



**HAL**  
open science

# Etude comparée de l'émission d'électrons de nanopointes de tungstène et de diamant : émission de champ et photoémission induite par laser femtoseconde

Olivier Torresin

## ► To cite this version:

Olivier Torresin. Etude comparée de l'émission d'électrons de nanopointes de tungstène et de diamant : émission de champ et photoémission induite par laser femtoseconde. Physique [physics]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2019. Français. NNT : 2019TOU30253 . tel-02965957

**HAL Id: tel-02965957**

**<https://theses.hal.science/tel-02965957v1>**

Submitted on 13 Oct 2020

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

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



# THÈSE

En vue de l'obtention du  
**DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE**

Délivré par l'Université Toulouse 3 - Paul Sabatier

---

Présentée et soutenue par

**Olivier TORRESIN**

Le 14 octobre 2019

**Etude comparée de l'émission d'électrons de nanopointes de tungstène et de diamant - Emission de champ et photoémission induite par laser femtoseconde**

---

Ecole doctorale : **SDM - SCIENCES DE LA MATIERE - Toulouse**

Spécialité : **Physique**

Unité de recherche :

**LCAR-IRSAMC - Laboratoire Collisions Agrégats Réactivité**

Thèse dirigée par  
**Benoît CHALOPIN**

Jury

**Mme Valérie BLANCHET**, Rapporteur  
**M. Roger MORIN**, Rapporteur  
**M. Luca PERFETTI**, Examineur  
**M. Pierre LEGAGNEUX**, Examineur  
**M. Vincent PAILLARD**, Examineur  
**M. Benoît CHALOPIN**, Directeur de thèse



## REMERCIEMENTS

---

Parce qu'une thèse n'est pas une aventure en solitaire, je voudrais profiter de cet espace pour adresser un grand merci à toutes les personnes qui m'ont accompagné, soutenu et appris durant ces trois années.

Un grand merci à mes deux superviseurs, qui m'ont accompagné au quotidien et dont, sans doute, j'ai le plus appris : Benoît Chalopin et Julien Mauchain. Ce travail n'aurait jamais pu aboutir sans votre immense aide et votre grande patience. Merci pour ces longs moments de discussion scientifique (ou pas) et pour votre gentillesse au cours de ces années. Si quelqu'un devait lire ce passage, hésitant à poursuivre une thèse avec ces deux personnes, je ne pourrais que lui conseiller de foncer !

Un grand merci à l'ensemble des membres de mon jury de thèse : Valérie Blanchet, Roger Morin, Luca Perfetti, Pierre Legagneux, Vincent Paillard et Angela Vella. Je vous remercie d'avoir accepté de relire mon manuscrit et d'avoir été présents à ma soutenance afin de partager sur mon sujet.

Un grand merci à toute l'équipe du laboratoire de Physique des Matériaux à Rouen sans qui ce travail sur les pointes de diamant n'aurait pu démarrer. Merci à Angela Vella d'avoir eu l'idée de tester ces nouveaux échantillons sur notre dispositif. Merci à Mario Borz d'être venu à Toulouse pendant deux semaines pour démarrer ce projet entre nos deux équipes. Et merci à Ivan Blum d'avoir pris le temps de nous fournir en pointes au fur et à mesure de ces trois années, malgré des échantillons difficiles à faire émettre.

Un grand merci à Arnaud, Florent, Sébastien et Giuseppe au CEMES pour ces très instructives réunions où l'on partageait sur nos sujets respectifs. Une pensée supplémentaire pour Sébastien qui m'a accueilli au LCAR lors de mon arrivée durant mon stage de M2.

Un grand merci à l'ensemble du personnel permanent du LCAR et de l'IRSAMC, au personnel de recherche comme au personnel technique et administratif. Merci de m'avoir accueilli dans votre communauté et de m'avoir accompagné jusqu'à l'aboutissement de ces trois années.

Un grand merci à l'ensemble des doctorants et stagiaires que j'ai pu côtoyer au cours de mes trois années à l'IRSAMC. On n'aura pas toujours été très studieux, mais ce sont aussi ces moments qui font que les années de thèse restent inoubliables. Merci à vous tous de m'avoir supporté avec mes coups de folie et mes délires particuliers. Une pensée particulière pour Michael, mon partenaire de bureau, Maxime B., avec qui j'ai partagé les mois de rédaction difficiles et les blindtest séries des années 90, Maxime A., que j'ai accueilli comme mon fils spirituel dans mon bureau à son arrivée, et qui s'en est enfuie dès qu'il en a pu, Julie R., qui n'aura plus personne pour lui dire de

laver sa tasse, Julien, pour tous ces dessins d'expressions au tableau, Eric M. (atomes froids), pour les pauses baby, jongles, discussions profondes et même frisbee (une fois!), Gabriel, pour toutes ces fois où tu m'accompagnes dans mes moments de procrastination. Et une pensée pour tous les autres, qu'ils soient encore présents ou non, Isabelle, Boris, Vincent, Citlali, Qi, Evgeny, Pierrot, Pierrot n°2, Nathan, Ashley, Eric M. n°2, Adrien, Maxime (CGT), Benjamin (senior), Benjamin (junior), Julie LPT, Olivier (pas moi l'autre), Hugo, Ulysse, Théo et tous ceux que j'oublie (désolé par avance).

Un grand merci à toute ma famille et à tous mes amis qui m'accompagnent depuis de nombreuses années. Merci à mes parents, à ma soeur, à Vincent, Marine, Vicky, Philou, Max, Nathan, Nico, Matthieu et même à Loevan, mon filleul, et neveu, né le jour de ma soutenance, comme un signe. Merci à toutes les personnes que j'ai croisées durant ma thèse et qui m'ont apporté, de toutes les manières possibles.

Et enfin, un grand merci à Céline, celle qui partage ma vie et qui va bientôt devenir ma femme. Ta bienveillance et ton amour m'ont permis de dépasser toutes les épreuves de ces trois années de thèse. Avec toi à mes côtés, je sais maintenant que je peux tout affronter.

Je finis ces remerciements en souhaitant le meilleur à tous ceux qui les liront. Ces trois années auront été géniales par de nombreux aspects. Les bons moments passés avec vous resteront dans ma mémoire. Merci à tous!

# TABLE DES MATIÈRES

---

Introduction	1
1 ASPECTS THÉORIQUES DE L'ÉMISSION D'ÉLECTRONS À PARTIR D'UNE NANOPOINTE	5
1.1 Émission à partir d'une surface métallique	7
1.1.1 Fonction d'occupation des électrons dans un métal	7
1.1.2 Potentiel vu par un électron à l'interface métal/vide	8
1.1.3 Mécanismes d'émission sans champ laser	9
1.1.3.1 Émission de champ à froid	9
1.1.3.2 Émission thermoionique	11
1.1.3.3 Émission de champ amplifiée thermiquement	12
1.1.4 Mécanismes de photoémission	12
1.1.4.1 Effet photoélectrique	12
1.1.4.2 Paramètre de Keldysh	13
1.1.4.3 Émission multiphotonique au-dessus du seuil	14
1.1.4.4 Émission par champ optique et recollision	16
1.1.5 Intérêt de l'utilisation de nanopointes	18
1.1.5.1 Facteur d'amplification géométrique pour un champ statique	18
1.1.5.2 Facteur d'amplification optique	19
1.1.5.3 Facette d'émission	20
1.2 Émission à partir d'une nanopointe diélectrique	21
1.2.1 Conduction dans un matériau diélectrique	22
1.2.2 Émission de champ à partir d'un diélectrique	23
1.3 Conclusion	25
2 OUTILS EXPÉRIMENTAUX	27
2.1 Fabrication et caractérisation des nanopointes	27
2.1.1 Pointes de tungstène	28
2.1.2 Pointes de diamant	30
2.2 Montages d'émission et de détection	32
2.2.1 Chambre à vide	32
2.2.2 Bride porte-échantillon	34
2.2.3 Méthode de focalisation du laser sur l'apex de la pointe	35
2.2.4 Spectromètre à retard pour les électrons	36
2.2.5 Cartographies d'émission FEM	39
2.3 Dispositif laser femtoseconde	40
2.3.1 Description et modélisation	41
2.3.2 Oscillateur	43
2.3.3 Tangerine	44
2.3.4 NOPA	44
2.3.5 Montage optique	46
2.4 Conclusion	46
3 RÉSULTATS SUR POINTES DE TUNGSTÈNE	49

3.1	Calcul numérique de l'amplification du champ à l'apex d'une nanopointe de tungstène	50
3.1.1	Rappels sur les coefficients d'amplification statique et optique	50
3.1.2	Modélisation géométrique du dispositif expérimental	51
3.1.3	Calcul numérique du coefficient d'amplification statique $\beta$	52
3.1.4	Calcul numérique du coefficient d'amplification optique $\xi$	53
3.1.4.1	Polarisation parallèle à l'axe de la pointe	55
3.1.4.2	Polarisation perpendiculaire à l'axe de la pointe	57
3.1.4.3	Lien avec les mécanismes d'émission dans le cas d'un laser femtoseconde	60
3.2	Cartographies de l'émission des électrons	61
3.2.1	Cartographie sous émission statique	61
3.2.2	Cartographie sous émission laser	62
3.3	Tracé de Fowler-Nordheim	63
3.4	Émission multiphotonique au-dessus du seuil	65
3.4.1	Dépendance en énergie des impulsions du laser	66
3.4.2	Dépendance en polarisation du laser	67
3.4.3	Spectre de photoémission	68
3.4.4	Émission entre les impulsions	69
3.5	Conclusion	70
4	ÉMISSION DE CHAMP À FROID SUR DES NANOPONTES DE DIAMANT	73
4.1	Précédentes expériences sur ce type de nanopointe de diamant	75
4.2	Résultats de l'émission de champ à froid	76
4.2.1	Émission au bout de la pointe	77
4.2.1.1	Mesure du courant d'émission	77
4.2.1.2	Cartographies d'émission des électrons	78
4.2.2	Courant de conduction le long de la pointe	79
4.2.2.1	Mesure de la chute de tension	79
4.2.2.2	Processus de conduction	80
4.2.3	Cas particulier : pointe sans chute de tension	81
4.3	Modèle électrique simple de l'émission d'électrons des pointes de diamant	82
4.3.1	Modélisation indépendante des mécanismes FN et PF et calcul de $\Delta V$ théorique	84
4.3.2	Modélisation double	85
4.3.3	Résistances associées à chaque mécanisme	86
4.4	Discussion sur les coefficients A,B,C,D	88
4.4.1	Influence de la température sur le modèle	90
4.4.1.1	Influence de la température sur les paramètres A et B	90
4.4.1.2	Influence de la température sur la chute de tension $\Delta V$	91
4.4.1.3	Influence de la température sur le courant d'émission	91
4.4.1.4	Influence de la température sur les résistances relatives FN et PF	91
4.5	Conclusion	93

5	ÉMISSION D'ÉLECTRONS DE NANOPONTES DE DIAMANT SOUS ILLUMINATION LASER	95
5.1	Rappels sur la photoémission à partir de nanopointes métalliques	96
5.2	Cartographies d'émission des électrons	96
5.3	Dynamique temporelle de l'émission	98
5.4	Étude du courant d'émission en fonction de l'énergie des impulsions du laser	101
5.4.1	Émission multiphotonique	103
5.4.2	Mesure de la chute de tension le long de la pointe lors de l'émission optique	104
5.4.3	Courant d'émission optique en fonction de la tension appliquée sur la pointe	105
5.5	Effet de seuil dans la transition entre les deux régimes	107
5.6	Effet du taux de répétition	107
5.7	Conclusion sur le modèle qualitatif	109
5.8	Modélisation du courant de remontée	110
5.9	Conclusion	112
6	MODÉLISATION ET INTERPRÉTATION DE L'ÉMISSION D'ÉLECTRONS SOUS ILLUMINATION LASER À PARTIR D'UNE NANOPONTE DE DIAMANT	113
6.1	Modélisation de la distribution de charge au sein de la pointe	113
6.2	Amélioration du modèle statique	116
6.3	Temps de remontée du courant FN entre impulsions lasers	118
6.4	Régime de saturation	122
6.5	Conclusion	124
7	MESURES DE STATISTIQUES TEMPORELLES DES ÉLECTRONS	127
7.1	Motivations	127
7.2	Dispositif expérimental	129
7.2.1	Cahier des charges	129
7.2.2	Channel Electron Multiplier	130
7.2.3	Mesure du temps de vol	131
7.3	Statistique temporelle de l'émission statique	132
7.3.1	Principe de la mesure	132
7.3.2	Mesures sur pointes de tungstène et de diamant	132
7.4	Statistique temporelle de l'émission laser	135
7.4.1	Principe de la mesure	135
7.4.2	Mesures sur pointes de tungstène	136
7.5	Conclusion	137
	Conclusion et perspectives	139
	BIBLIOGRAPHIE	143





## INTRODUCTION

---

Depuis plus d'un siècle, l'émission d'électrons dans le vide est un enjeu majeur de l'étude des propriétés des matériaux. Qu'elle soit thermique (émission thermoionique), ou due à un champ électrique statique (émission de champ à froid) ou laser (émission multiphotonique ou émission de champ optique), l'étude de ses propriétés permet la connaissance de nombreuses caractéristiques des matériaux émetteurs, tels que le travail de sortie ou la constante diélectrique par exemple. Ce phénomène est aussi très utile pour le développement de canons à électrons, notamment pour la microscopie (MEB = *Microscope Électronique à Balayage* ou MET = *Microscope Électronique à Transmission*), dont les caractéristiques dépendent fortement des propriétés de la source.

L'émission de champ à froid (*CFE = Cold Field Emission*) est un type d'émission permettant la génération et la manipulation d'électrons dans le vide sous l'effet d'un champ électrostatique élevé. Les électrons sont, dans la plupart des cas, émis d'une surface solide vers le vide, sous l'effet d'un champ électrique intense. Ce type d'émission fut expliquée en 1928 par Ralph H. FOWLER et Lothar W. NORDHEIM en utilisant une description quantique [FOWLER et al. (1928)]. Les électrons, présents au niveau de Fermi, transitent par effet tunnel à travers la barrière de potentiel solide/vide, abaissée par effet Schottky (action d'abaissement de la barrière de potentiel par le champ électrique). L'émission de champ à froid se produit pour des champs électriques supérieurs au GV/m et est fortement dépendante du travail de sortie du matériau. Le principal avantage de ce type d'émission sur les émissions thermiques est la forte cohérence spectrale (largeur spectrale typique de l'ordre de 0.1 eV : les électrons sont quasi-monochromatiques) des électrons émis. Ce point est particulièrement apprécié pour la microscopie électronique par exemple. L'étude de l'émission de champ à froid permet aussi la compréhension des phénomènes de claquage du vide, effets indésirables dans de nombreux domaines.

Depuis une cinquantaine d'années, l'utilisation de nanopointes, avec un rayon d'apex de l'ordre de la dizaine de nanomètres, comme cathodes froides pour l'émission de champ a connu un essor important [GOMER (1961); LEE (1973)]. Leur géométrie particulière permet une accumulation de charges à leur apex. Cette accumulation entraîne un effet d'amplification du champ très important. Des champs de l'ordre du GV/m, indispensable pour observer de l'émission de champ à froid, peuvent donc être atteints avec des tensions statiques de l'ordre de la centaine de volts. En plus de l'excellente cohérence spectrale naturelle de l'émission de champ à froid, l'utilisation de nanopointes ajoute une cohérence spatiale importante (caractérisée par la brillance). Ces propriétés permettent d'utiliser les nanopointes, par exemple, comme sources d'électrons ultra-brillantes pour la microscopie de haute-résolution. L'un des matériaux les plus utilisés pour la fabrication des nanopointes est le tungstène. En effet, son travail de sortie très avantageux dans sa configuration (310) ( $\sim 4.35$  eV) [MENDENHALL et al. (1937)] associé à sa haute température de fusion (3695 K) en font le candidat idéal pour l'émission d'électrons.

Des travaux ont été menés sur l'émission de champ à froid à partir d'émetteurs de

diamant [WANG et al. (1991); GEIS et al. (1996); ZHU et al. (1998); GÖHL et al. (2000)]. L'intérêt pour la diamant vient de son électro-affinité négative [WEIDE et al. (1994)]. Cette propriété, caractéristique d'une bande de conduction au-dessus de l'énergie du vide, permet, en théorie, l'émission d'un électron présent dans la bande de conduction instantanément. Le diamant est aussi étudié pour ces excellentes propriétés physiques (résistance mécanique, conductivité thermique, inertie chimique).

Parallèlement, au cours des cinquante dernières années, de nombreuses avancées technologiques ont permis l'essor de lasers de plus en plus énergétiques. Ces avancées ont fait émerger un nouveau domaine de la physique : la physique du champ fort. Ce phénomène permet la manipulation d'électrons, à l'aide d'impulsions lasers intenses (du  $\mu\text{J}$  au mJ). Les études ont principalement été faites sur des matériaux en phase gazeuse [BRABEC (2008)]. Dans les gaz d'atomes ou de molécules, l'interaction entre le champ électrique intense (impulsions lasers) et les atomes permet l'étude de nombreux phénomènes tels que la génération d'harmoniques élevés (*HHG = High Harmonic Generation*) [BURNETT et al. (1977); FERRAY et al. (1988); LEWENSTEIN et al. (1994); CHANG et al. (1997)] ou la création de paquets d'ondes électroniques par ionisation des atomes (*ATI = Above Threshold Ionization*) [AGOSTINI et al. (1979); FREEMAN et al. (1987); CORKUM et al. (1989); SCHAFFER et al. (1993)]. Ces phénomènes ont été largement étudiés dans les atomes ou les molécules, mais aussi dans des nanoobjets tels que des sphères diélectriques [ZHEREBTSOV et al. (2011)], des nanoparticules d'or [SCHERTZ et al. (2012)] ou des surfaces type photocathode. Plus généralement, la physique du champ fort permet l'étude de l'interaction matière-rayonnement à l'échelle attoseconde [KRAUSZ et al. (2009)]. L'essor des lasers femtosecondes ainsi que l'intérêt croissant de la communauté pour la physique du champ fort ont aussi permis l'étude de phénomènes physiques sur des temps de plus en plus courts. En 2007, une équipe du *Max-Planck-Institut* a par exemple mesuré pour la toute première fois le temps de traversé tunnel d'un électron dans un atome [UIBERACKER et al. (2007)].

Plus récemment, des équipes ont eu l'idée de réunir ces deux domaines de la physique et d'élargir les études en champ fort aux nanopointes métalliques. Les premières expériences furent menées par Peter HOMMELHOFF dans le groupe de KASEVICH à Stanford [HOMMELHOFF et al. (2006)] et en parallèle par le groupe de Mark ROPERS à l'institut Max Born [ROPERS et al. (2007)]. L'étude de cette nouvelle physique a permis l'observation de phénomènes inédits tels que l'émission multiphotonique au-dessus du seuil (*ATP = Above Threshold Photoemission*) [SCHENK et al. (2010); KRÜGER et al. (2011); BIONTA et al. (2014)] ou encore l'émission de champ optique suivi d'une recollision [KRÜGER et al. (2012); HERINK et al. (2012); BIONTA et al. (2016)]. Comme dans le cas statique, le principal avantage de l'utilisation des nanopointes est leur capacité à amplifier le champ électrique à leur apex. Des champs très intenses seront donc atteignables pour des énergies des impulsions lasers modérées. De nombreuses études ont depuis été faites sur des matériaux métalliques : tungstène [HOMMELHOFF et al. (2006); BARWICK et al. (2007); YANAGISAWA et al. (2009); KRÜGER et al. (2011); FÖRSTER et al. (2016); PASCHEN et al. (2017)], or [ROPERS et al. (2007); HERINK et al. (2012); PARK et al. (2012)], argent [BIONTA et al. (2016)], nanotubes de carbone [BIONTA (2015)], carbure d'hafnium (HfC) [KEALHOFER et al. (2012)]. L'étude des spectres de l'énergie cinétique des électrons émis a mis en évidence un phénomène d'émission multiphotonique

ainsi que de l'émission de champ optique, caractérisés respectivement par des pics d'émission et un plateau sur le spectre. Bien que des phénomènes d'HHG ont pu être observés sur des cristaux ou des semi-conducteurs, ils restent encore non-observés dans le cas de nanopointes métalliques.

La compréhension des mécanismes d'émission des nanopointes sous l'effet d'un champ fort passe par l'étude de l'amplification du champ électrique à l'apex. Des études ont montré que l'amplification était fortement dépendante du type de matériaux, tungstène [ARBOUET et al. (2012); THOMAS et al. (2013)], or [ARBOUET et al. (2012)] et HfC [KEALHOFER et al. (2012)], de la géométrie de la pointe [THOMAS et al. (2015)] ou encore de la polarisation du faisceau incident [YANAGISAWA et al. (2009)].

L'émission d'électrons induite par laser à partir des nanopointes métalliques a déjà su trouver de nombreuses applications. L'importante cohérence spatiale et temporelle de l'émission d'une nanopointe pourrait permettre le remplacement des photocathodes utilisées comme sources d'électrons dans la microscopie électronique 4D [ZEWAIL (2010); AIDELSBURGER et al. (2010); SCIAINI et al. (2011)]. Un autre avantage vient de la forte brillance des nanopointes, due à leur zone d'émission nanométrique, contrairement à d'autres sources dont la zone d'émission est de l'ordre du micromètre. Des équipes ont utilisé des nanopointes de tungstène comme canons à impulsions d'électrons pour de la microscopie résolue en temps [PAARMANN et al. (2012); BORMANN et al. (2015)]. Ces nouvelles sources d'électrons ont permis le récent développement de microscopes électroniques à transmission ultrarapides (*UTEM = Ultrafast Transmission Electronic Microscope*) atteignant des niveaux de brillance jamais atteints pour des UTEMs [FEIST et al. (2015); CARUSO et al. (2017); HOUELLELIER et al. (2018)]. La forte cohérence spatiale et temporelle des nanopointes en font aussi les candidats idéaux comme sources d'électrons pour la diffraction [BAUM (2013)].

Ce manuscrit prend comme points de départ tous les résultats déjà bien établis de l'émission statique et de la photoémission, obtenus dans le cas de nanopointes de tungstène, afin de les comparer aux cas de nanopointes de diamant. En collaboration avec une équipe de l'Université de Moscou ainsi qu'avec le Groupe de Physique des Matériaux de l'Université de Rouen, nous proposons une étude nouvelle de l'émission de champ statique et optique de monocristaux de diamant dont le rayon à l'apex est de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Les résultats, cohérent avec la littérature, obtenus dans le cas de l'émission statique seront associés aux résultats, complètement inédits, de la photoémission à partir d'impulsions femtosecondes, et nous permettront de développer un modèle électrique rendant compte des phénomènes observés. Nous présentons également des résultats préliminaires de mesures de statistiques temporelles des électrons en régime de comptage.

Le manuscrit de thèse est organisé de la façon suivante :

- Le **Chapitre 1** donne une description générale des concepts théoriques nécessaires à la compréhension du manuscrit. Nous y présentons les différents mécanismes d'émission d'électrons (thermique, champ à froid, optique) ainsi que les mécanismes de conduction des électrons dans les diélectriques.
- Le **Chapitre 2** décrit l'ensemble du dispositif expérimental utilisé pour nos expériences. Nous détaillons les mécanismes de fabrication des nanopointes. Dans un

deuxième temps, nous présentons les différents composants de notre dispositif expérimental (chambre à vide, système de détection, système optique...).

- Le **Chapitre 3** présente les résultats obtenus sur des nanopointes de tungstène pour une émission statique et optique. Ce chapitre propose aussi la comparaison entre des calculs numériques de l'amplification du champ électrique à l'apex de la pointe avec des cartographies spatiale de l'émission des électrons (FEM).
- Le **Chapitre 4** présente les résultats de l'émission purement statique de nanopointes de diamant. Ce chapitre introduit un modèle électrique permettant la compréhension des phénomènes physiques mis en jeu dans ce type d'émission.
- Le **Chapitre 5** présente les résultats de l'émission d'électron sous illumination laser à partir de nanopointes de diamant. Les nombreuses mesures effectuées nous permettent d'introduire un modèle qualitatif décrivant les phénomènes observés. Ce modèle, reprenant le modèle électrique introduit dans le chapitre précédent, ne sera pas entièrement satisfaisant pour l'étude quantitative des phénomènes.
- Le **Chapitre 6** propose une amélioration du modèle décrivant les phénomènes d'émission statique et optique introduit dans les chapitres précédents. Contrairement, au modèle précédent, celui-ci est capable de modéliser quantitativement les données expérimentales obtenus pour l'émission statique et optique.
- Le **Chapitre 7** propose une introduction à la mesure du temps de vol et des statistiques temporelles des électrons émis. Nous présentons les changements opérés sur le dispositif expérimental afin de permettre de telles mesures ainsi que les résultats préliminaires obtenus sur une nanopointe de tungstène.

## ASPECTS THÉORIQUES DE L'ÉMISSION D'ÉLECTRONS À PARTIR D'UNE NANOPOINTE

---

### Sommaire

---

1.1	Émission à partir d'une surface métallique	7
1.1.1	Fonction d'occupation des électrons dans un métal	7
1.1.2	Potentiel vu par un électron à l'interface métal/vide	8
1.1.3	Mécanismes d'émission sans champ laser	9
1.1.3.1	Émission de champ à froid	9
1.1.3.2	Émission thermoionique	11
1.1.3.3	Émission de champ amplifiée thermiquement	12
1.1.4	Mécanismes de photoémission	12
1.1.4.1	Effet photoélectrique	12
1.1.4.2	Paramètre de Keldysh	13
1.1.4.3	Émission multiphotonique au-dessus du seuil	14
1.1.4.4	Émission par champ optique et recollision	16
1.1.5	Intérêt de l'utilisation de nanopointes	18
1.1.5.1	Facteur d'amplification géométrique pour un champ statique	18
1.1.5.2	Facteur d'amplification optique	19
1.1.5.3	Facette d'émission	20
1.2	Emission à partir d'une nanopointe diélectrique	21
1.2.1	Conduction dans un matériau diélectrique	22
1.2.2	Émission de champ à partir d'un diélectrique	23
1.3	Conclusion	25

---

Les nanopointes sont depuis longtemps connues pour leurs excellentes performances en terme d'émission de champ [GOMER (1961)]. Leur rayon à l'apex, de l'ordre de la dizaine de nanomètres, permet une amplification du champ électrique jusqu'au GV/m pour des tensions statiques appliquées très faibles ( $\sim 100$  V). De tels champs sont nécessaires pour produire, à l'apex des pointes, une émission de champ à froid très utile par exemple pour la microscopie électronique. Ces pointes sont aussi très intéressantes pour la cohérence spatiale de leur émission.

Au cours des dernières décennies, l'utilisation de ces mêmes nanopointes pour l'observation d'une émission induite par laser s'est multipliée [HOMMELHOFF et al. (2006); ROPERS et al. (2007); KRÜGER et al. (2012); BIONTA et al. (2016)]. La géométrie particulière des pointes, notamment leur taille inférieure à la longueur d'onde des lasers dans le visible, leur permet d'amplifier le champ électrique laser et ainsi atteindre des intensités lumineuses très importantes. Ces champs électriques lasers très élevés permettent deux types d'émissions différentes induites par laser : émission multiphotonique et émission de champ optique. Ces types d'émission pourront être

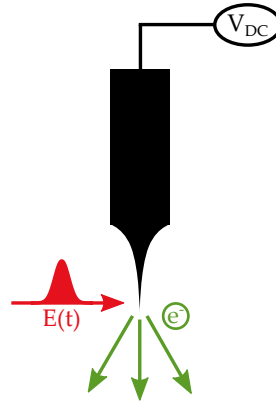


FIGURE 1.1 – Schéma de l'interaction entre une impulsion laser femtoseconde et une nanopointe pour l'émission d'électrons. Un champ statique est appliqué via une tension  $V_{DC}$  modérée. L'illumination laser focalisée permet d'atteindre des intensités lasers très intense.

utilisés par exemple dans le cas de la microscopie électronique résolue en temps [YANG et al. (2010); GULDE et al. (2014)]. Pour une nanopointe, les paramètres étudiés seront donc la tension statique qui lui est appliquée, son rayon, sa longueur, sa constante diélectrique et le travail de sortie de la facette utilisée pour l'émission.

L'amplification du champ électrique est un phénomène ayant lieu à la fois pour des champs statiques et des champs lasers. Dans nos études, nous nous intéressons à l'émission d'électrons à partir d'un champ électrique laser femtoseconde appliqué à l'apex de la pointe, Figure 1.1. Les électrons émis sont étudiés à partir de leur diagramme d'énergie, ce qui nous permet de définir le mécanisme d'émission mis en jeu. Le faisceau laser qui éclaire la pointe sera caractérisé par sa puissance moyenne, son taux de répétition (nombre d'impulsions par seconde), sa longueur d'onde et la durée de ses impulsions.

Dans ce chapitre, nous discuterons des aspects théoriques régissant l'émission de champ à partir de matériaux métalliques et diélectriques. Dans un premier temps, nous nous intéresserons à ce type de phénomène pour des échantillons métalliques. Nous rappellerons qu'il existe de multiples mécanismes d'émission d'électrons qui nécessitent ou non l'illumination de l'échantillon par un laser. Les mécanismes d'émission qui nous intéressent sont facilités par des facteurs d'amplification du champ électrique à l'apex dépendant de divers paramètres, comme la géométrie de l'échantillon ou les paramètres de l'illumination laser par exemple. Dans la deuxième partie, nous discuterons des mécanismes d'émission d'électrons à partir de matériaux non-métalliques. Nous verrons que les théories régissant l'émission d'échantillons métalliques ne peuvent plus être appliquées simplement. Nous nous intéresserons alors aux mécanismes de conduction du courant au sein des diélectriques, dans le cas particulier des nanopointes.

## 1.1 ÉMISSION À PARTIR D'UNE SURFACE MÉTALLIQUE

Pour un métal, l'émission d'électrons est gouvernée par la distribution en énergie des électrons en surface, ainsi que par la probabilité de transmission d'un électron à l'interface métal/vide. Dans cette partie, nous détaillons les différents mécanismes d'émission d'un électron à partir d'une surface métallique. Ces mécanismes pourront être caractérisés par le potentiel statique appliqué sur la pointe, la température du gaz d'électrons ou encore par une illumination laser.

## 1.1.1 Fonction d'occupation des électrons dans un métal

La statistique de Fermi-Dirac désigne la distribution statistique de fermions indiscernables sur les états d'énergie d'un système à l'équilibre thermodynamique. Elle a été introduite en 1926 par Enrico FERMI et Paul DIRAC. En 1927, elle fut appliquée aux électrons dans un métal par Arnold SOMMERFELD. La distribution d'électrons dans un état d'énergie  $E$  à la température  $T$  est donnée par :

$$f(E, T) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E - \mu}{k_B T}\right)} \quad (1.1)$$

avec  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $\mu$  le potentiel chimique. A  $T = 0$  K, le potentiel chimique est équivalent à l'énergie de Fermi, i.e. l'énergie maximale des électrons

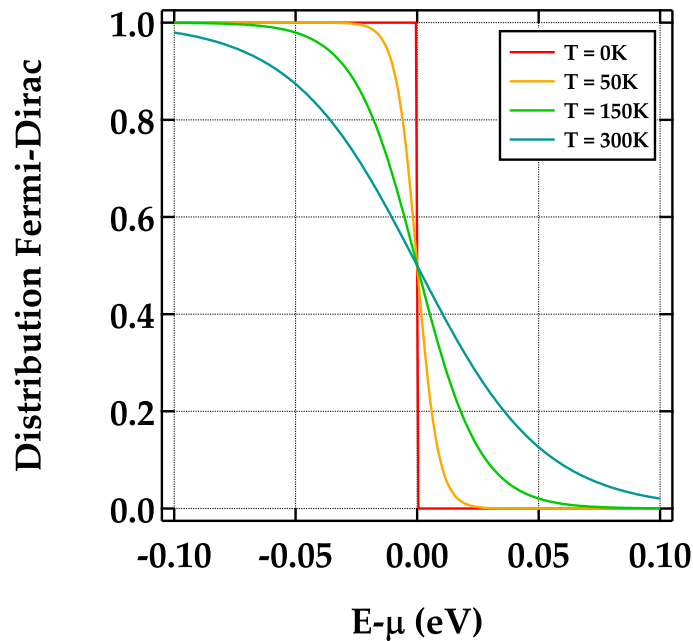


FIGURE 1.2 – Courbe de la distribution de Fermi-Dirac à différentes températures. L'augmentation de la température permet un allongement de la queue de la distribution vers les hautes énergies. Ce phénomène sera clé dans certains types d'émission mettant en jeu un échauffement du gaz d'électrons.



dans le métal. La [Figure 1.2](#) présente le tracé de la distribution de Fermi-Dirac pour différentes températures entre 0 K et 300 K.

### 1.1.2 Potentiel vu par un électron à l'interface métal/vide

L'effet Schottky [SCHOTTKY (1923)] est un mécanisme de la matière condensée ayant lieu dans des matériaux soumis à un champ électrique. Cet effet abaisse la barrière de potentiel vue par les électrons pour sortir du matériau et facilite donc leur émission. Pour expliquer ce phénomène, on s'intéresse au potentiel  $U$  vu par un électron à l'interface métal/vide sans champ électrique appliqué :

$$U(x) = \mu + \phi \quad (1.2)$$

avec  $x$  la coordonnée spatiale selon l'axe perpendiculaire à la surface du matériau et  $\phi$  le travail de sortie du métal. Le travail de sortie correspond à l'énergie minimale qui doit être fournie à un électron pour qu'il soit éjecté du métal. Le travail de sortie dépend de la surface du métal (orientation des facettes et défauts).

On considère maintenant un champ électrique  $F$  statique et uniforme appliqué sur le métal dans la direction perpendiculaire à la surface. La barrière de potentiel vue par l'électron devient alors :

$$U(x) = \mu + \phi - eFx \quad (1.3)$$

avec  $e$  la charge élémentaire (positive), [Figure 1.3a](#). Le champ électrique appliqué sur le métal a pour effet de courber la barrière de potentiel. Un électron pourra alors la traverser par effet tunnel, c'est ce qu'on appelle l'émission de champ. Cette courbure de la barrière de potentiel est liée à l'amplitude du champ électrique, une augmentation de ce champ entraînera une augmentation de la probabilité de passage des électrons par effet tunnel.

En quittant le métal, l'électron crée une particule ponctuelle de charge opposée à la sienne à l'intérieur du métal. L'interaction coulombienne entre les deux charges (l'électron et son image virtuelle) rajoute un terme à la barrière de potentiel appelé potentiel image :

$$U(x) = \phi + \mu - eFx - \frac{e^2}{16\pi\epsilon_0 x} \quad (1.4)$$

avec  $\epsilon_0$  la permittivité diélectrique du vide.

L'interaction entre l'électron et son image virtuelle a donc pour effet d'abaisser la hauteur de la barrière de potentiel. L'électron verra un travail de sortie plus faible. Cette réduction du travail de sortie facilitant l'émission des électrons est appelée l'effet Schottky. Le travail de sortie effectif vu maintenant par l'électron est donc :

$$\phi_{eff} = \phi - \sqrt{\frac{e^3 F}{4\pi\epsilon_0}} \quad (1.5)$$

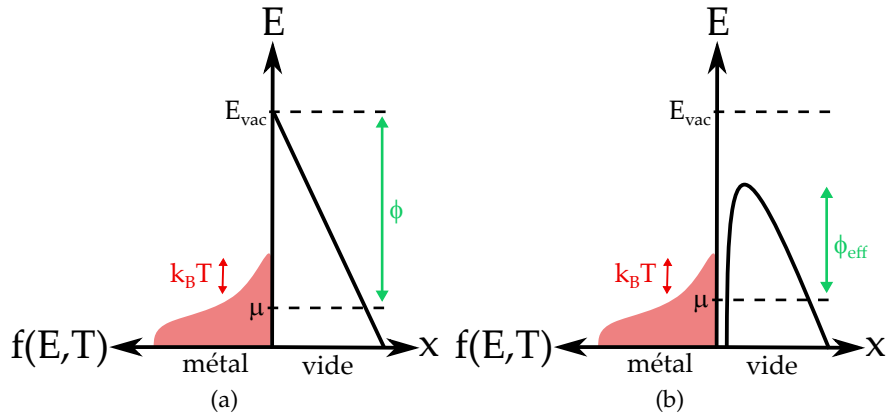


FIGURE 1.3 – Schéma de la barrière de potentiel vue par un électron à la surface métal/vide. (a) L'électron voit un travail de sortie  $\phi$  non corrigé par l'effet de la charge virtuelle. (b) L'électron voit un travail de sortie effectif  $\phi_{eff}$  dû à la correction de l'effet Schottky.

Les Figures 1.3a et 1.3b présentent un schéma de la barrière de potentiel vue par un électron à la surface d'un métal en appliquant un champ électrique sur ce dernier. La Figure 1.3a montre le cas où la correction due à l'image miroir n'est pas prise en compte. La barrière de potentiel est donc courbée mais sa hauteur reste la même. Dans la Figure 1.3b, on applique la correction due à l'effet Schottky, ce qui abaisse la hauteur de la barrière de potentiel.

La Figure 1.4 montre la courbe du travail de sortie effectif vu par l'électron en fonction du champ électrique appliqué à la surface du métal. On remarque une réduction de l'ordre de l'eV pour des champs supérieurs au GV/m. Nous verrons que des champs électriques aussi intenses sont facilement atteignables sur des nanoobjets tels que des nanopointes grâce à l'effet de pointe qui permet une amplification importante du champ électrique à leur apex.

### 1.1.3 Mécanismes d'émission sans champ laser

#### 1.1.3.1 Émission de champ à froid

L'émission de champ à froid est une méthode d'émission d'électrons pouvant intervenir sous l'effet d'une tension appliquée sur une cathode. Le champ électrique alors créé permet aux électrons de traverser la barrière de potentiel entre le métal et le vide par effet tunnel. Pour permettre l'observation d'une telle émission, le champ électrique doit être de l'ordre du GV/m ou plus. Des champs aussi intenses peuvent être atteints à l'apex de pointes métalliques grâce à l'effet de pointe. Ce phénomène accumule les charges à l'apex de la pointe, ce qui a pour effet d'y amplifier le champ électrique. Par exemple, pour des pointes de tungstène dont le rayon est de l'ordre d'une dizaine de nanomètres, une tension électrique d'une centaine de volts est suffisante. L'émission de champ à froid est une technique d'émission très utilisée en microscopie électronique de part la forte cohérence spatiale des électrons émis, caractérisée par le coefficient de

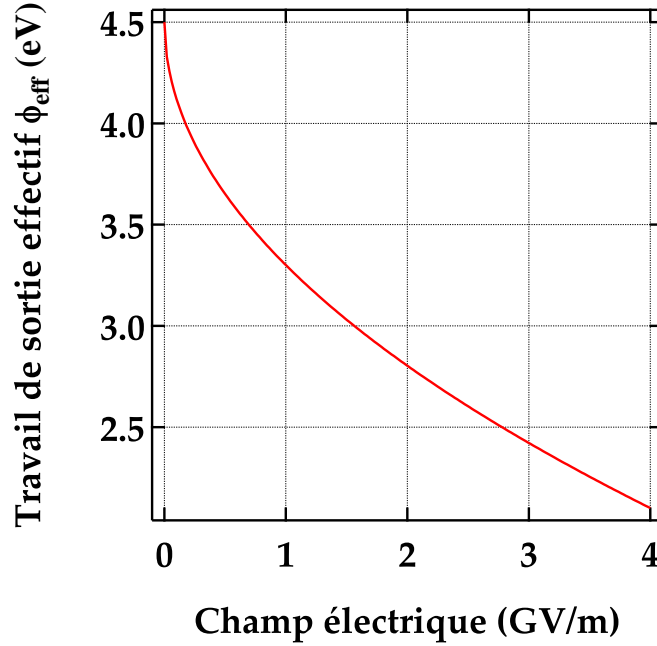


FIGURE 1.4 – Courbe du travail de sortie effectif vu par un électron à l'interface métal/vide en fonction du champ électrique appliqué sur l'échantillon dans le cas où  $\phi = 4.5$  eV.

brillance, ainsi que leur spectre d'émission étroit [GOMER (1961)].

Une explication complète du phénomène quantique ayant lieu dans ce type d'émission a pour la première fois était donnée par FOWLER et NORDHEIM en 1928 [FOWLER et al. (1928)] puis réajustée par MURPHY et GOOD en 1956 [MURPHY et al. (1956); FORBES et al. (2007)]. La théorie de Fowler-Nordheim est originellement prévue pour le cas  $T = 0$  K mais reste valable tant que  $k_B T \ll \phi$ . L'équation Fowler-Nordheim (FN) établit le lien entre la densité de courant d'émission  $J$  et le champ électrique statique  $F$  tel que :

$$J \propto \frac{e^3 F^2}{4\pi h \phi} \cdot \exp\left(-\frac{4\sqrt{2m_e}\phi^{3/2}}{3e\hbar F} \nu(y)\right) \quad (1.6)$$

avec  $e$  la charge élémentaire (positive),  $m_e$  la masse de l'électron,  $h$  ( $\hbar$ ) la constante de Planck (réduite),  $\phi$  le travail de sortie du métal,  $\nu(y)$  une fonction sans dimension et  $y$  le paramètre de Nordheim tel que :

$$y = \sqrt{\frac{e^3 F}{4\pi\epsilon_0 \phi^2}} \quad (1.7)$$

avec  $\epsilon_0$  la constante diélectrique du vide.

Le paramètre  $y$  est simplement lié au ratio entre le travail de sortie effectif  $\phi_{eff}$  et le travail de sortie  $\phi$  vu par l'électron à la surface du métal. La fonction  $\nu(y)$  dépend principalement de la géométrie de la pointe. Pour nos type de pointes de tungstène,

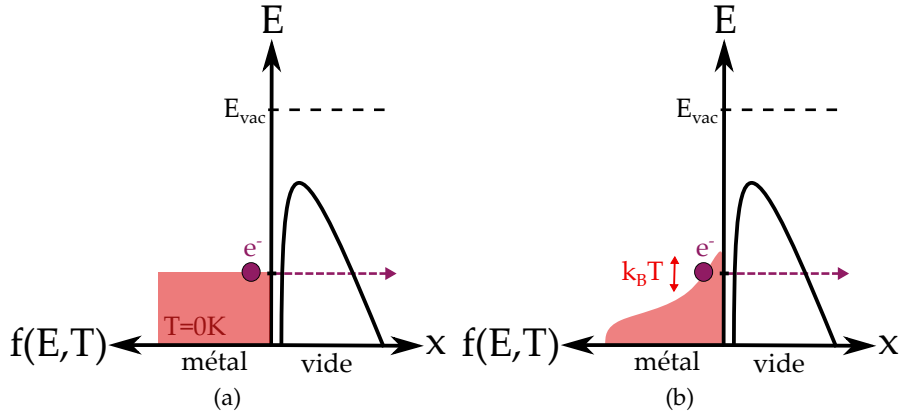


FIGURE 1.5 – Schéma du mécanisme d’émission de champ à froid à  $T = 0\text{ K}$  (a) et pour une température non-nulle telle que  $k_B T \ll \phi$  (b). Un électron proche du niveau de Fermi traverse la barrière de potentiel courbée par un champ électrique intense et abaissée par effet Schottky.

on peut reprendre des études de HOMMELHOFF [HOMMELHOFF et al. (2006)] et FORBES [FORBES (2008)] qui définissent :  $0.59 < \nu(y) < 0.74$ .

La Figure 1.5 présente un schéma du mécanisme d’émission de champ à froid. Sous un champ électrique très intense, l’électron est capable de traverser la barrière de potentiel par effet tunnel.

### 1.1.3.2 Émission thermoionique

L’émission thermoionique est un mécanisme d’émission d’électrons intervenant en chauffant fortement le métal sans application de champ électrique. De ce fait, les électrons les plus énergétiques peuvent être émis en dépassant la barrière de potentiel, si la queue de la distribution de Fermi-Dirac dépasse le niveau du vide. Le courant d’émission  $J$  est gouverné par la loi Richardson-Dushman [DUSHMAN (1923); RICHARDSON (1924)] :

$$J = A\eta T^2 \cdot \exp\left(\frac{-\phi}{k_B T}\right) \tag{1.8}$$

avec  $\eta$  un pré-facteur dépendant du matériau,  $\phi$  le travail de sortie du métal,  $k_B$  la constante de Boltzmann,  $A$  la constante de Richardson définie comme :

$$A = \frac{4\pi m_e k_B^2 e}{h^3} \tag{1.9}$$

$m_e$  la masse de l’électron,  $e$  la charge élémentaire et  $h$  la constante de Planck. Cette émission est gouvernée par les électrons ayant les plus hautes énergies dans la distribution de Fermi-Dirac.

La Figure 1.6a présente un schéma de principe de l’émission thermoionique. L’énergie thermique est telle qu’elle permet à la queue de la distribution de Fermi-Dirac de

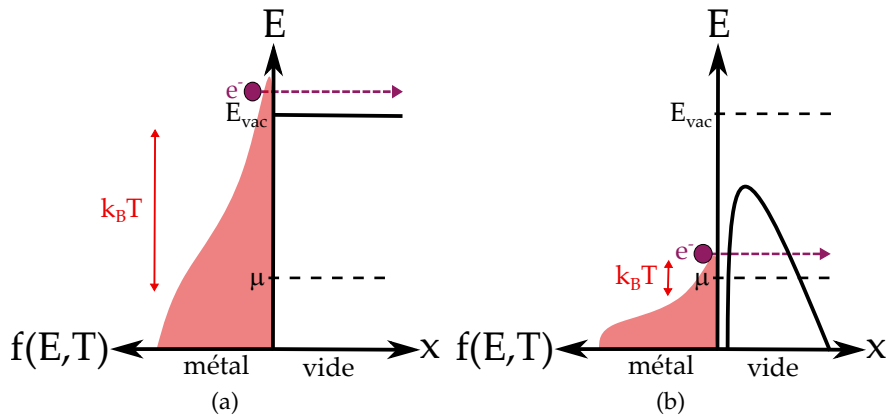


FIGURE 1.6 – (a) Schéma du mécanisme d'émission thermoionique. L'augmentation de la température permet à la queue de la distribution de Fermi-Dirac de dépasser la barrière de potentiel. Les électrons présents à ces hautes énergies peuvent être émis en passant par dessus la barrière de potentiel. (b) Schéma du mécanisme d'émission de champ amplifiée thermiquement. Un électron présent dans les hauts niveaux d'énergie de la distribution de Fermi-Dirac peut traverser par effet tunnel la barrière de potentiel abaissée par effet Schottky.

dépasser le travail de sortie du métal. Les électrons présents à ce niveau d'énergie sont alors émis de façon classique en dépassant la barrière de potentiel.

### 1.1.3.3 Émission de champ amplifiée thermiquement

Il existe un mécanisme d'émission intermédiaire entre l'émission de champ à froid et l'émission thermoionique [MURPHY et al. (1956)]. L'émission de champ amplifiée thermiquement est un mécanisme mettant en jeu l'effet Schottky et le chauffage du gaz d'électrons à la surface du métal. Dans ce cas, un électron présent dans la queue de la distribution de Fermi-Dirac voit un travail de sortie plus faible que celui qu'il verrait dans le cas d'une température nulle. Cet électron ayant une énergie plus élevée peut alors être émis par effet tunnel.

La Figure 1.6b présente un schéma de l'émission de champ amplifiée thermiquement. Le gaz d'électrons est chauffé ce qui permet à sa distribution en énergie de s'étendre au-delà de l'énergie de Fermi. Un électron présent dans ces hauts niveaux d'énergie pourra alors être émis par effet tunnel comme pour l'émission de champ à froid.

## 1.1.4 Mécanismes de photoémission

### 1.1.4.1 Effet photoélectrique

En 1887, Heinrich HERTZ est le premier à décrire l'effet photoélectrique. En illuminant une plaque de zinc chargée négativement par un rayonnement UV, il remarque une décharge se produisant à l'intérieur d'un électroscope relié à la plaque de zinc. Il faudra attendre 1905 pour que Albert EINSTEIN relie ce phénomène à une description utilisant la mécanique quantique [EINSTEIN (1905)]. Cette description lui permettra

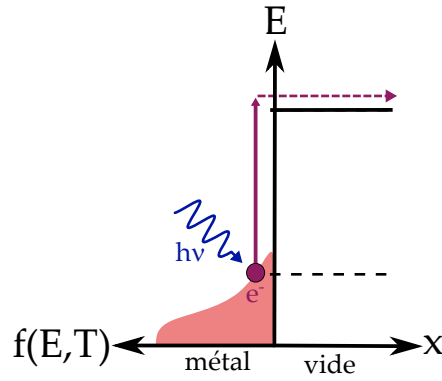


FIGURE 1.7 – Schéma de l'effet photoélectrique. Un photon UV excite un électron et lui permet d'être émis en dépassant la barrière de potentiel.

d'obtenir le prix Nobel de physique en 1921.

La Figure 1.7 présente un schéma du mécanisme en jeu dans l'effet photoélectrique. Un électron présent dans les états occupés du métal est excité par un photon d'énergie  $E = h\nu$  avec  $\nu$  la fréquence du photon. Si l'énergie du photon est supérieure au travail de sortie  $\phi$  nécessaire à l'électron pour être éjecté, alors l'électron est émis avec une énergie cinétique  $E_{kin} = h\nu - \phi$ . Ce phénomène n'impliquant qu'un unique photon, il est parfaitement linéaire en fonction de la puissance lumineuse reçue par le métal. Le travail de sortie typique de la plupart des métaux se situant entre 3 et 5 eV, il faut donc un éclairage lumineux dont l'énergie se situe au minimum dans l'UV.

Pour nos expériences, les lasers femtosecondes utilisés ont des longueurs d'onde dans le visible ou l'infrarouge (IR) correspondant à des photons d'énergie de 1 à 2 eV. Un effet photoélectrique à photon unique est donc non-réalisable. Dans la partie suivante, nous décrirons un phénomène d'émission à plusieurs photons qui permettra une émission réalisable à partir des lasers femtosecondes à notre disposition.

#### 1.1.4.2 Paramètre de Keldysh

Pour la suite de cette partie, nous nous intéressons à deux des mécanismes de photoémission principaux dans le cas d'une illumination laser intense (domaine de la physique du champ fort). Le premier est un mécanisme où le système est excité par plusieurs photons en même temps (émission multiphotonique). Le deuxième, prenant place pour des intensités lasers plus importantes que le premier, est un mécanisme d'émission tunnel à travers la barrière de potentiel. Pour décrire ces mécanismes, KELDYSH [KELDYSH (1965)] a établi en 1965 un paramètre  $\gamma$  dépendant du matériau :

$$\gamma = \sqrt{\frac{\phi}{2U_p}} \quad (1.10)$$

avec  $\phi$  le travail de sortie du matériau et  $U_p$  l'énergie pondéromotive des électrons, i.e. l'énergie cinétique moyenne d'un électron de charge  $-e$  et de masse  $m_e$  dans un champ électromagnétique laser d'amplitude  $E_0$  et de fréquence angulaire  $\omega$  tel que :

$$U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega^2} \propto I \lambda^2 \quad (1.11)$$

avec  $I$  l'intensité lumineuse (ou éclaircissement, en  $W/m^2$ ) et  $\lambda$  la longueur d'onde du champ électrique.

A partir de la probabilité d'émission d'un électron, on peut écrire le courant d'émission  $J$  tel que [KELDYSH (1965); BUNKIN et al. (1965); TÓTH et al. (1991)] :

$$J \propto \exp \left[ -\frac{2\phi}{\hbar\nu} \cdot \left(1 + \frac{1}{2\gamma^2}\right) \cdot \left(\operatorname{argsinh}(\gamma) - \gamma \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{1+2\gamma^2}\right) \right] \quad (1.12)$$

A partir de cette formule, il est possible d'extraire deux cas limites du paramètre de Keldysh  $\gamma$ . Dans le cas  $\gamma \gg 1$ , l'Équation 1.12 peut être approximée par :

$$J \propto \exp \left( -\frac{2\phi}{\hbar\nu} \cdot \ln(2\gamma) \right) \propto \left( \frac{1}{2\gamma} \right)^{2\phi/\hbar\nu} \propto (I \lambda^2)^{\phi/\hbar\nu} \quad (1.13)$$

Ce régime est appelé le régime d'émission multiphotonique. On remarque que le courant est directement proportionnel à l'intensité lumineuse à la puissance  $\phi/\hbar\nu$  qui est le nombre de photons minimum nécessaire à l'électron pour franchir le travail de sortie. De l'autre côté, dans le cas où  $\gamma \ll 1$ , on obtient :

$$J \propto \exp \left( -\frac{4\sqrt{2m_e}\phi^{3/2}}{3e\hbar E_0} \right) \quad (1.14)$$

On remarque que le courant est le même que celui obtenu dans le cas de l'émission de champ à froid, Équation 1.6, où le champ statique  $F$  est remplacé par le champ laser  $E_0$ . Ce régime mettant lui aussi en jeu une émission par effet tunnel est appelé le régime d'émission par champ optique car c'est le champ électrique laser (et non le champ statique) qui permet à l'électron de franchir la barrière tunnel. Nous détaillerons ces deux mécanismes dans les paragraphes suivants.

#### 1.1.4.3 Émission multiphotonique au-dessus du seuil

Avec l'utilisation des lasers femtosecondes, il est possible de concentrer une grande quantité de photons sur un temps très court. Cette accumulation de photons permet d'augmenter la probabilité du système d'absorber plusieurs photons avant d'avoir le temps de relaxer. Si un électron acquiert assez d'énergie pour dépasser le travail de sortie, il peut être émis par un mécanisme d'émission multiphotonique.

Comme décrit par l'Équation 1.13, le phénomène est d'autant plus important que l'intensité lumineuse appliquée sur le métal est forte. L'ordre multiphotonique,

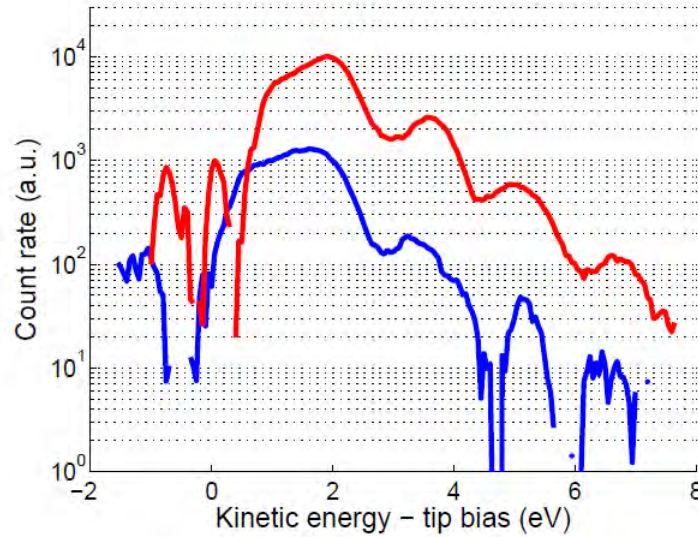


FIGURE 1.8 – Spectre de photoémission d'électrons pour un laser avec une puissance moyenne de 35 mW (bleu) et de 70 mW (rouge). La tension de pointe est de 20 V. Des pics d'émission séparés par l'énergie d'un photon sont visibles pour les deux puissances. Ces pics sont la signature d'un mécanisme d'émission multiphotonique au-dessus du seuil. D'après [BIONTA et al. (2014)].

$\phi/h\nu$ , représente le nombre minimum de photons que le système doit absorber pour permettre à un électron de dépasser la barrière de potentiel. L'énergie absorbée par le système est alors  $E = n h \nu$  avec  $n$  le nombre de photons absorbés et  $\nu$  la fréquence du photon. On peut décrire le courant d'émission multiphotonique  $J$  en fonction de l'intensité lumineuse  $I$  tel que :

$$J \propto I^n \quad (1.15)$$

avec  $n$  proche de  $\phi/h\nu$ .

Au cours de ce type d'émission, il est possible pour le système d'absorber plus de photons que le minimum nécessaire pour l'émission d'un électron. On a alors :

$$J \propto \sum_{n \geq \frac{\phi}{h\nu}} a_n I^n \quad (1.16)$$

avec  $a_n$  un coefficient. Ce phénomène peut être vu sur les mesures de spectres en énergie des électrons émis. On parle alors d'émission multiphotonique au-dessus du seuil (ATP = *Above Threshold Photoemission*) pour les métaux et d'émission par ionisation au-dessus du seuil (ATI = *Above Threshold Ionisation*) pour les atomes. Ce phénomène a pour la première fois été observé sur des atomes par AGOSTINI et al. [AGOSTINI et al. (1979)] puis sur des métaux par LUAN et al. [LUAN et al. (1989)]. Il se caractérise sur les spectres en énergie des électrons émis par la présence de pics séparés par une distance correspondant à l'énergie d'un photon. La Figure 1.8 montre les spectres en énergie d'électrons émis par une nanopointe de tungstène



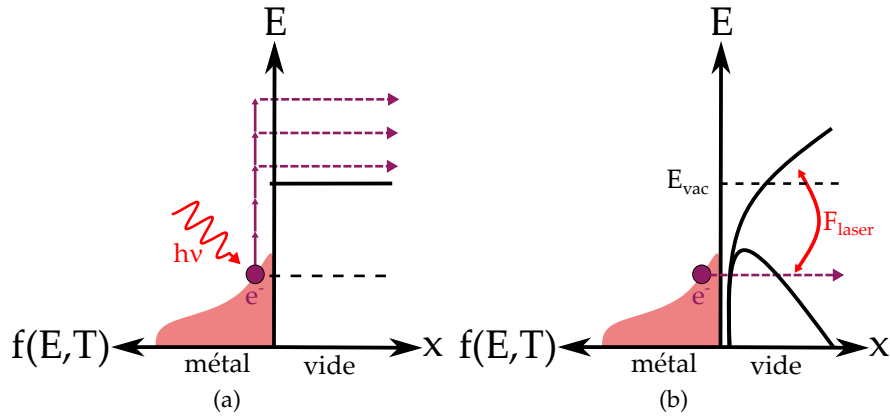


FIGURE 1.9 – (a) Schéma de l'émission multiphotonique au-dessus du seuil. Le système absorbe plusieurs photons et permet à un électron de dépasser la barrière de potentiel pour être émis. (b) Schéma de l'émission de champ optique. L'électron traverse la barrière de potentiel liée au champ du laser par effet tunnel. Ce mécanisme d'émission prend place pour des amplitudes du champ plus élevés que ceux requis pour l'émission multiphotonique.

pour deux puissances lasers différentes. La distance entre chaque pic est exactement égale à l'énergie d'un photon du laser, ce qui est caractéristique d'une émission multiphotonique au-dessus du seuil [SCHENK et al. (2010); BIONTA et al. (2014)].

#### 1.1.4.4 Émission par champ optique et recollision

En augmentant l'intensité lumineuse appliquée sur le métal, le laser ne peut plus être considéré comme une perturbation photonique. Le modèle ondulatoire doit alors être utilisé. Au cours du cycle optique, le champ électrique crée une barrière de potentiel franchissable par effet tunnel pour l'électron pendant une durée courte inférieure à la période optique. Ce modèle est équivalent au champ électrique statique nécessaire à l'émission de champ à froid. Une fois émis, l'électron est accéléré dans le champ à l'extérieur du métal. Une fois l'électron à quelques nanomètres de la surface, le champ électrique laser change de signe et l'électron est alors renvoyé vers la surface du métal. Ce mécanisme n'est possible que si le temps tunnel  $\tau$  est inférieur à la période optique du champ  $2\pi/\omega$ , ce qui est équivalent à  $\gamma \ll 1$  [KRAUSZ et al. (2009)]. Lors de la recollision de l'électron avec la cathode, plusieurs phénomènes physiques peuvent arriver. Le premier est la collision élastique. Dans ce cas, l'électron « rebondit » sur la surface et repart avec la même énergie avec laquelle il était arrivé. Dans d'autres cas, l'électron peut être réabsorbé par le système lors d'une recombinaison radiative et émettre un photon à haute énergie ( $HHG = \text{High Harmonic Generation}$ ) [BURNETT et al. (1977); MCPHERSON et al. (1987); FERRAY et al. (1988); L'HUILLIER et al. (1993)].

L'émission utilisant le recollision élastique peut être synthétisée en utilisant le « Modèle à trois étapes » (Figure 1.10) formulé par Paul CORKUM [CORKUM (1993)] :

1. Photoémission de l'électron par effet tunnel
2. Accélération de l'électron hors du système. Changement de signe du champ, l'électron est renvoyé vers la cathode.

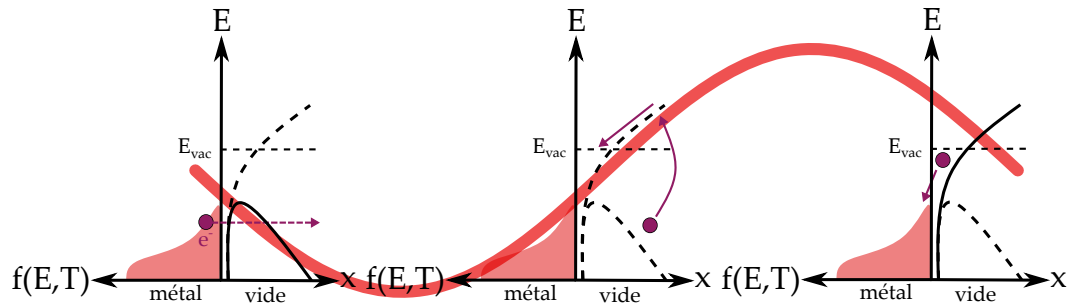


FIGURE 1.10 – Schéma du modèle à trois étapes de l'émission par champ optique. (1) Photoémission de l'électron par effet tunnel. (2) Le champ change de signe et accélère l'électron de l'autre sens. (3) L'électron rentre en collision avec le système.

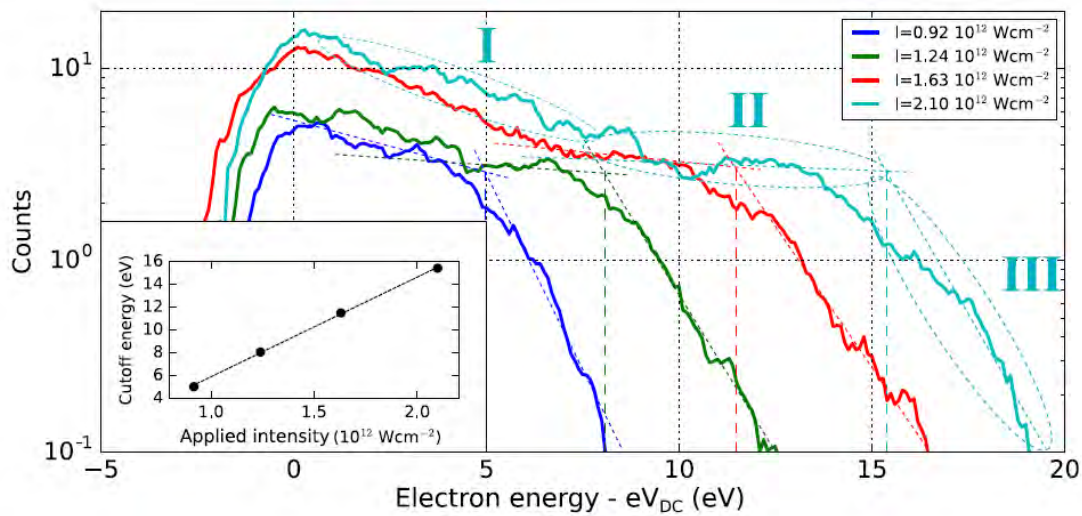


FIGURE 1.11 – Série de spectres de photoémission obtenue en augmentant la puissance laser à 1 kHz de taux de répétition à 800 nm. Les droites en tirets sont les asymptotes tracées pour définir le point de « cut-off ». Sur la courbe à plus haute intensité lumineuse, on distingue nettement les trois zones (émission multiphotonique, plateau, chute du courant) signatures d'une émission par champ optique. D'après [BIONTA et al. (2016)].

### 3. Recollision de l'électron avec le système.

Le spectre des électrons émis par photoémission peut être divisé en trois parties distinctes (Figure 1.11). A basse énergie, les électrons correspondant sur le spectre sont ceux émis par émission multiphotonique, zone I. A plus haute énergie, les électrons forment un plateau, zone II. Ces électrons sont ceux émis par recollision élastique. Le plateau a pour la première fois été observé par PAULUS et al en 1994 [PAULUS et al. (1994)]. Enfin, pour une énergie correspondant à  $10U_p$ , on remarque une chute dans le spectre. Le point entre le plateau et la zone de chute est connu comme le « cut-off ». La Figure 1.11 montre quatre spectres d'électrons émis à partir d'une nanopointe d'argent illuminée par un laser femtoseconde à 800 nm pour trois intensités lumineuses du laser différentes [BIONTA et al. (2016)]. Les trois zones décrites précédemment sont clairement établies.

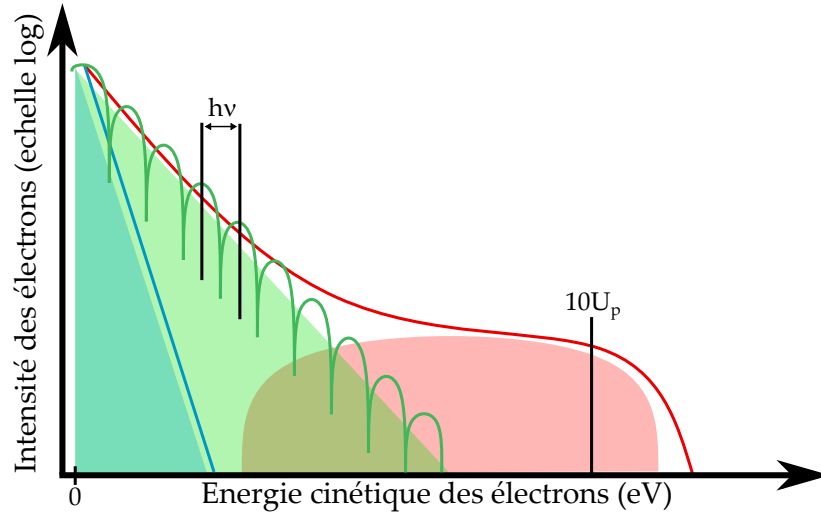


FIGURE 1.12 – Ce schéma présente les différentes formes spectrales pour trois mécanismes d'émission identifiées dans ce manuscrit. La portion bleue représente l'émission de champ amplifié thermiquement, la verte représente l'émission multiphotonique et la rouge représente l'émission par champ optique. Les lignes solides montrent le spectre attendu pour chacun des mécanismes.

La Figure 1.12 présente un schéma récapitulatif du spectre en énergie des électrons pour trois différents mécanismes d'émission. On retrouve en bleu l'émission de champ amplifié thermiquement, en vert l'émission multiphotonique et en rouge l'émission par champ optique.

### 1.1.5 Intérêt de l'utilisation de nanopointes

#### 1.1.5.1 Facteur d'amplification géométrique pour un champ statique

En décrivant l'émission de champ à froid dans la partie précédente, nous avons vu qu'une telle émission demandait des champs électriques à l'apex très importants (de l'ordre du GV/m). De tels champs peuvent être atteints dans des échantillons de type nanopointe pour des tensions appliquées sur la pointe de l'ordre de la centaine de volts. La géométrie particulière des pointes permet l'accumulation de charges à leur apex. Cette accumulation appelée « effet de pointe » permet une forte amplification du champ électrique local à l'apex. La valeur du champ électrique  $F$  à l'apex en fonction de la tension statique  $V_{DC}$  appliquée sur la pointe peut s'écrire :

$$F = \beta V_{DC} \quad (1.17)$$

où  $\beta$  est le facteur d'amplification du champ tel que  $\beta = 1/kr$  avec  $k$  un facteur géométrique et  $r$  le rayon à l'apex de la pointe. Il est à noter que la définition que nous donnons du facteur  $\beta$  n'est pas universelle. Dans notre cas,  $\beta$  est exprimé en  $m^{-1}$ . On peut aussi trouver dans la littérature  $F = \beta V_{DC}/r$  avec un facteur  $\beta$  sans dimension. Le facteur  $k$  peut être pris  $\sim 5$  pour nos formes de pointes [GOMER (1961)]. La Figure 1.13 montre l'évolution du champ électrique local à l'apex de la pointe en fonction du rayon de la pointe pour une tension statique  $V_{DC} = 500$  V. Pour nos

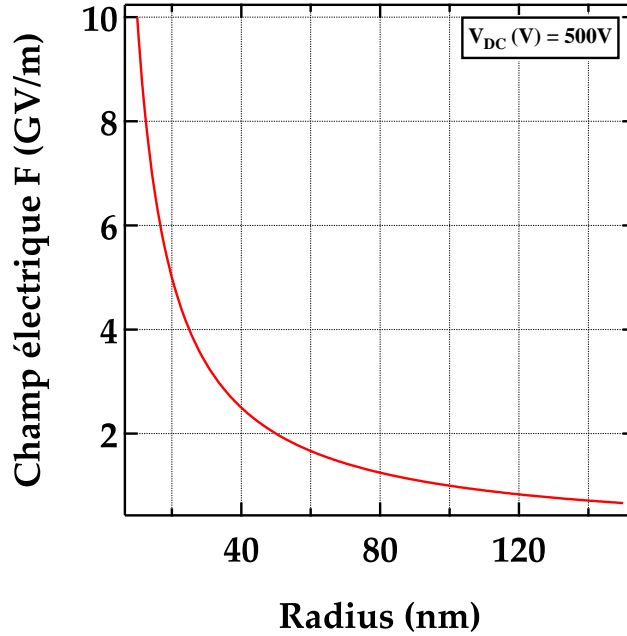


FIGURE 1.13 – Courbe du champ électrique statique à l’apex d’une nanopointe en fonction du rayon de celle-ci pour une tension statique appliquée de 500 V. Des champs électriques de l’ordre du GV/m (nécessaire à l’émission de champ à froid) sont atteints pour des rayons à l’apex de l’ordre de 100 nm.

pointes, dont le rayon est en moyenne autour de 50 nm, le champ électrique à l’apex pour une tension de 500 V appliquée sera de 2 GV/m.

#### 1.1.5.2 Facteur d’amplification optique

Nous avons vu dans la partie précédente que des champs électriques très intenses permettant une émission de champ à froid pouvaient être atteints facilement sur des objets nanométriques tels que des pointes. De la même façon, il est possible d’accroître fortement le champ électrique d’un rayonnement laser sur ce type d’objet. Le facteur d’amplification optique  $\zeta$  permet de relier de façon proportionnelle le champ incident laser  $E_{in}$  au champ proche optique à l’apex de la pointe  $E_{nf}$ . Cette amplification n’est possible que pour des objets dont la taille est plus faible que la longueur d’onde du faisceau laser ( $< 800$  nm pour nos lasers). Des nanopointes dont le rayon est de l’ordre de grandeur de la dizaine de nanomètres suffisent donc pour voir cet effet. On note le facteur d’amplification optique  $\zeta$  :

$$\zeta = \max_{(r)} \{ |E_{nf}(r)| / |E_{in}(r)| \} \quad (1.18)$$

avec  $r$  une coordonnée curviligne suivant la géométrie de la pointe. Le profil du champ E local étant inhomogène,  $\zeta$  représente donc la valeur maximale que le champ prend sur la surface de la pointe.

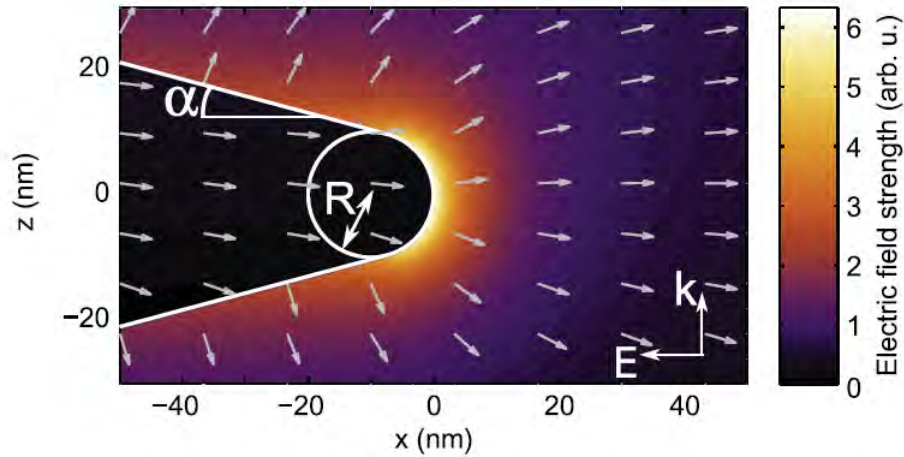


FIGURE 1.14 – Facteur d’amplification optique du champ pour un laser femtoseconde à 800 nm, 5 fs à l’apex d’une pointe de tungstène de rayon  $r = 10$  nm et d’angle d’ouverture  $\alpha = 15^\circ$ . La direction de propagation du laser est selon l’axe  $z$  et sa polarisation est selon l’axe  $x$ . La couleur et les flèches correspondent respectivement à l’amplitude et à la polarisation du champ. L’image est prise au temps où le champ à l’apex est à son maximum. D’après [THOMAS et al. (2015)].

Dans un article de 2015, THOMAS et al. [THOMAS et al. (2015)] mettent en évidence les différents paramètres agissant sur le facteur d’amplification  $\zeta$ . On retrouve dans ces paramètres les constantes de la géométrie de la pointe (rayon et angle d’ouverture à l’apex), les propriétés du faisceau laser (longueur d’onde et largeur minimale) ainsi que les propriétés optiques du matériau (fonction diélectrique dépendant de la fréquence).

Dans ce même article, la valeur du coefficient d’amplification optique a été calculée à l’aide d’une méthode par éléments finis (Figure 1.14). La pointe, d’un rayon de 10 nm à l’apex, est illuminée par un laser femtoseconde, considéré comme un faisceau gaussien, à 800 nm avec une durée d’impulsion de 5 fs. La pointe est prise de forme conique avec un angle d’ouverture de  $15^\circ$  et terminée par une sphère. Les valeurs du facteur d’amplification du champ vont de 4 à 10 ce qui signifie une amplification sur l’intensité lumineuse de 16 à 100. On remarque sur la simulation que l’amplification du champ suit la courbure de la pointe et s’atténue très rapidement sur une longueur de l’ordre du rayon de la pointe. Nous reviendrons sur le calcul numérique du facteur d’amplification optique à l’apex d’une nanopointe dans le chapitre 3, en soulignant notamment l’effet de la phase et de la polarisation du champ électrique incident du faisceau laser.

### 1.1.5.3 Facette d’émission

Dans ce paragraphe, nous discutons de l’importance de la structure cristalline du matériau de la pointe pour l’émission d’électrons. En effet, le travail de sortie vu par les électrons sera différent en fonction de l’orientation cristalline de la facette. Toutes nos nanopointes (tungstène et diamant) sont des monocristaux. Cela permet de s’assurer la localisation des facettes qui nous intéressent lors de la fabrication des

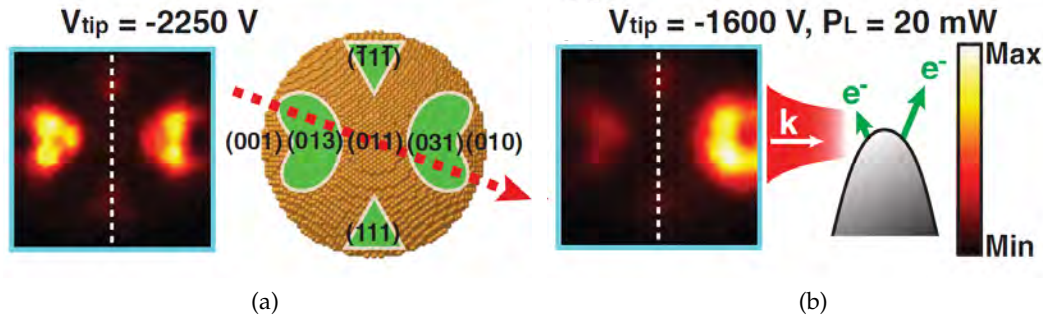


FIGURE 1.15 – (a) Cartographie de l'émission statique d'une nanopointe de tungstène orientée (001). Les facettes (310) ont clairement l'émission d'électrons la plus intense. Le schéma montre l'orientation des facettes du cristal de la nanopointe. (b) Cartographie de l'émission d'électrons à partir de la même nanopointe illuminée par un faisceau laser. La zone d'émission se trouve du côté opposé à l'arrivée du laser. D'après [YANAGISAWA et al. (2009)].

pointes.

Pour les pointes de tungstène, l'orientation cristalline (310) est la plus intéressante car elle possède le travail de sortie le plus faible pour le tungstène,  $\phi = 4.35$  eV. Dans la Figure 1.15a, YANAGISAWA et al. [YANAGISAWA et al. (2009)] montre que l'émission est la plus forte à partir des facettes (310) du cristal. Lorsque l'apex de la pointe est illuminé par un laser, Figure 1.15b, l'émission devient fortement asymétrique. La facette avec la plus forte émission est celle opposé à l'arrivée du faisceau laser. Nous verrons que ce résultat est confirmé par nos propres calculs ainsi que par nos expériences dans la suite du manuscrit.

## 1.2 EMISSION À PARTIR D'UNE NANOPOINTE DIÉLECTRIQUE

Un matériau diélectrique est par définition un matériau pour lequel un courant électrique ne peut être établi dans la plupart des cas. Nous verrons cependant que sous certaines conditions particulières, il est possible de déplacer les charges de façon macroscopique afin d'établir un courant électrique. Les matériaux diélectriques possèdent une faible conductivité ( $10^{-20} \sim 10^{-8} \Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ ) ainsi qu'une énergie au niveau du gap élevée ( $3 \sim 5$  eV). A 0 K, la bande de valence est complètement remplie et la bande de conduction complètement vide. Quand la température augmente, des électrons peuvent être excités thermiquement de la bande de valence ou de niveaux d'impuretés vers la bande de conduction. Ces électrons contribuent alors au courant électrique au sein des diélectriques.

Dans cette partie, nous verrons que les matériaux diélectriques peuvent établir un courant électrique sous l'application d'un champ électrique extérieur. Ces matériaux étant très peu conductifs, une chute de tension le long de l'échantillon va apparaître équivalente à une pénétration du champ électrique dans le matériau. Il existe plusieurs types de mécanisme de conduction dans les diélectriques. Pour la suite, nous en étudierons trois différents. Cette étude permettra de mieux comprendre ces mécanismes

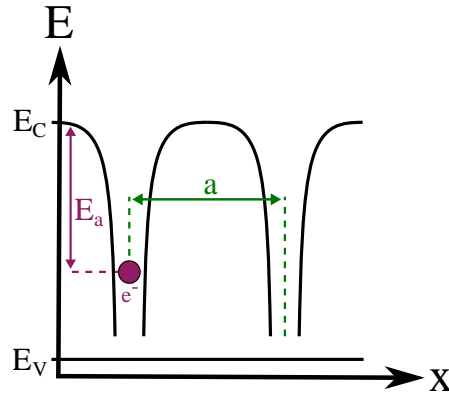


FIGURE 1.16 – Schéma de la structure de bande d'un diélectrique.  $E_C$  et  $E_V$  correspondent respectivement à la bande de conduction et à la bande de valence. Certains porteurs sont piégés dans des puits de potentiel dus à des impuretés. L'énergie séparant ces porteurs de la bande de conduction est notée  $E_a$ . La distance séparant deux pièges consécutifs est notée  $a$ .

et d'en déduire, dans la suite du manuscrit, celui mis en jeu dans nos nanopointes de diamant.

### 1.2.1 Conduction dans un matériau diélectrique

Sous l'effet d'un champ électrique externe, un diélectrique est capable d'établir un courant électrique. Nous nous intéressons ici à trois mécanismes de conduction mis en jeu dans les matériaux diélectriques. Ces mécanismes dépendent directement des propriétés électriques du diélectrique. Le paramètre physique le plus important dans tous ces mécanismes est l'énergie  $E_a$  entre l'énergie des puits de potentiel pouvant piéger des charges et la bande de conduction. On notera aussi  $a$  la distance séparant deux pièges consécutifs. La Figure 1.16 présente un schéma d'un diagramme de bandes d'un diélectrique. La bande de conduction et la bande de valence sont séparées par un gap important. Dans le gap, des impuretés créent des puits de potentiel piégeant des porteurs. On retrouve sur le schéma les constantes  $E_a$  et  $a$  définis ci-dessus.

Le premier mécanisme qui nous intéresse est la conduction de Poole-Frenkel (PF) [FRENKEL (1938)]. Ce type de mécanisme agit sur les charges piégées au sein d'impuretés. En appliquant un champ électrique sur le matériau, il est possible de réduire l'énergie potentielle coulombienne d'un électron en dissymétrisant le puits de potentiel dans lequel il est bloqué. La réduction de cette énergie augmente la probabilité pour cet électron d'être excité thermiquement et de passer du site du piège à la bande de conduction, Figure 1.17a.

Pour un champ électrique  $F$  appliqué sur un diélectrique, on peut écrire le courant de conduction Poole-Frenkel  $J$  tel que [FRENKEL (1938)] :

$$J = e\mu N_C F \cdot \exp\left(\frac{\sqrt{Fe^3/\pi\epsilon_0\epsilon_i} - E_a}{k_B T}\right) \quad (1.19)$$

avec  $e$  la charge élémentaire,  $\mu$  la mobilité des porteurs,  $N_C$  la densité d'états dans la bande de conduction,  $\epsilon_0$  la constante diélectrique du vide,  $\epsilon_i$  la constante diélectrique du matériau,  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température du gaz d'électrons.

Le deuxième mécanisme qui nous intéresse est la conduction par sauts à distances variables (VRH = *variable range hopping*) [MOTT et al. (1971)]. Ce mécanisme est dû à la conduction par effet tunnel des porteurs piégés d'un puits de potentiel à un autre. Ce type de conduction a lieu quand l'énergie des porteurs est plus faible que l'énergie de la barrière de potentiel entre deux puits de potentiel. Sous l'action d'un champ électrique intense abaissant la barrière de potentiel, les électrons piégés peuvent traverser la barrière de potentiel par effet tunnel pour se retrouver dans un autre site piégé, Figure 1.17b.

De la même façon que pour la conduction PF, on peut écrire le courant de conduction par sauts à distances variables tel que [MOTT et al. (1971)] :

$$J \propto \sinh\left(\frac{AF}{k_B T}\right) \quad (1.20)$$

avec  $A$  une constante. Les deux mécanismes présentés précédemment (PF et VRH) sont très similaires. Il prennent tous les deux effets quand un champ électrique est appliqué sur le matériau afin de dissymétriser les puits de potentiel piégeant les porteurs. La conduction PF correspond à l'effet thermique et la conduction VRH à l'effet tunnel.

Le troisième mécanisme qui nous intéresse est la conduction limitée par charge d'espace (SCL = *Space Charge Limited*). Ce type de conduction peut avoir lieu lorsque le nombre de porteurs est très élevé. Dans ce cas, le courant de conduction est réduit à cause de l'interaction coulombienne entre les porteurs. Le courant de conduction  $J$  est défini par [ROSE (1955); LAMPERT et al. (1970)] :

$$J \propto F^{L+1} \quad (1.21)$$

avec  $L = T_t/T$  où  $T_t = E_a/k_B$  est la température de piégeage. Ces trois mécanismes seront testés dans la suite du manuscrit afin de savoir lequel est le plus conforme au mécanisme de conduction des électrons dans les pointes de diamant.

### 1.2.2 Émission de champ à partir d'un diélectrique

Dans cette partie, nous discutons de l'émission de champ à partir de matériaux diélectriques. Contrairement aux métaux dont l'émission de champ est très bien documentée, l'émission de champ à partir des diélectriques est soumise à de nombreux problèmes notamment dus à la difficulté pour ces matériaux d'avoir une surface propre sans impuretés. L'intérêt de l'émission de champ pour les diélectriques vient en particulier du fait qu'elle permet l'étude de la physique à leur surface et permet de remonter à de nombreux paramètres tels que le travail de sortie, l'affinité électronique



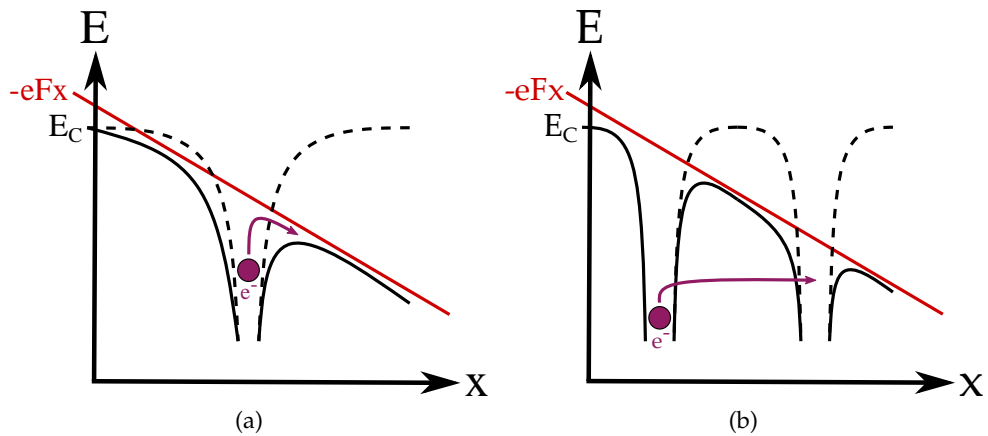


FIGURE 1.17 – Schéma de la conduction de Poole-Frenkel (a) et VRH (b) sous l'effet d'un champ électrique  $F$  appliqué sur le matériau. Dans les deux cas, le champ abaisse la bande de conduction et dissymétrise les puits de potentiel piégeant les porteurs. (a) Sous l'effet du réchauffement du gaz d'électrons, un électron présent dans les plus hautes énergies de la queue de distribution de Fermi-Dirac pourra dépasser la barrière de potentiel et se retrouver dans la bande de conduction. (b) De la même façon, des électrons avec moins d'énergie pourront traverser la barrière tunnel entre deux puits de potentiel pour passer d'un puits à l'autre.

ou la tension de surface par exemple.

Pour les métaux, nous avons décrit, avec le mécanisme de Fowler-Nordheim (FN), la relation directe entre le champ statique présent à la surface d'un matériau et le courant d'émission des électrons. De nombreuses études [ARTHUR (1965); BORZYAK et al. (1966); NEUMANN (1967)] ont montré qu'au sein d'un diélectrique, la caractéristique courant-tension tracé en coordonnées FN n'était pas linéaire contrairement aux métaux. Ceci est en partie dû à la faible concentration de porteurs dans la bande de conduction pour un diélectrique. Dans ces différentes études, il a été montré que la courbe de caractéristique courant-tension pouvait être divisée en trois parties distinctes, Figure 1.18a et Figure 1.18b. La région I (basses tensions appliquées sur le matériau) présente une dépendance courant-tension linéaire comme pour un métal. En augmentant la tension appliquée sur la matériau, on remarque une saturation dans le courant d'émission due à un manque de charges dans la bande de conduction. Cette zone de saturation est représentée comme la zone II sur les figures. Enfin, à hautes tension, partie III, le courant réaugmente très fortement, parfois plus que pour la partie I. Dans ce cas, l'augmentation du courant provient du champ électrique très élevé qui permet une ionisation à l'impact. La ionisation à l'impact est un phénomène qui permet à un électron très énergétique de perdre son énergie cinétique en apportant avec lui un électron, lié à la bande de valence, dans la bande de conduction. On crée alors un phénomène d'avalanche qui permet d'atteindre des courants très importants.

Pour la plupart des études, dont celles citées précédemment, les auteurs, bien que conscient de la présence d'une chute de tension  $\Delta V$  dans le matériau, ont choisi de tracer les caractéristiques courant-tension en fonction de la tension statique  $V_{DC}$  appliquée sur le matériau. Pour nos études, il nous a semblé plus pertinent de tracer

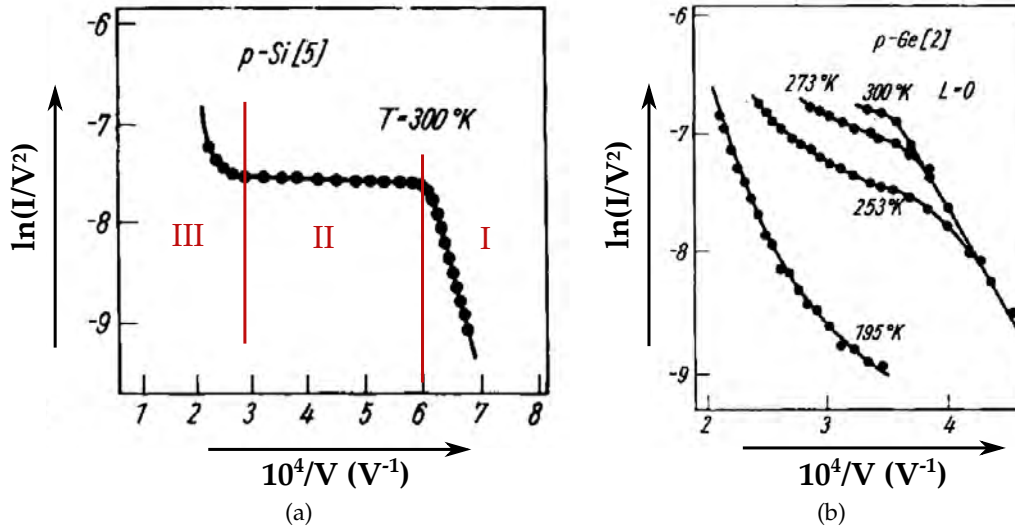


FIGURE 1.18 – Caractéristique courant-tension d'un échantillon de silicium dopé p (a) et d'un échantillon de germanium dopé p (b). Les trois zones sont clairement distinctes sur le silicium. Pour le germanium, les courbes dépendent fortement de la température. Il n'est possible d'apercevoir que des parties de la courbe sauf à  $T = 253\text{ K}$  où les trois zones sont visibles. D'après FURSEY (2007).

ces caractéristiques en fonction de la tension présente au point d'émission. Pour nos nanopointes, cette tension présente à l'apex est :  $V_{apex} = |V_{DC} - \Delta V|$  avec  $V_{DC}$  la tension statique appliquée sur la pointe. Nous verrons que ce changement nous permettra de retrouver des caractéristiques courant-tension linéaire sur les gammes de tension appliquées sur nos pointes.

### 1.3 CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons décrit les aspects théoriques de l'émission d'électrons. La première méthode d'émission d'électrons qui nous intéresse est l'émission de champ à froid. Celle-ci prend place lorsque l'on applique un champ électrique intense à l'apex de la pointe. Les électrons sont alors émis par effet tunnel à travers la barrière de potentiel. C'est la géométrie de la pointe, et notamment la taille de son rayon à l'apex, qui permet d'atteindre des champs électriques à l'apex très intenses ( $\sim\text{GV/m}$ ), pour des tensions appliquées de l'ordre de la centaine de volts. Les deux autres méthodes d'émission qui nous intéressent prennent place lorsque la pointe est illuminée par un laser femtoseconde intense. En fonction de la puissance du laser, l'émission peut être multiphotonique ou par champ optique. Dans le premier cas, le système absorbe un nombre de photons supérieur au nombre minimal nécessaire pour dépasser le travail de sortie. Dans le deuxième cas, l'électron est émis par effet tunnel sous la barrière, pendant une fraction de cycle optique. L'émission par champ optique est l'analogue optique de l'émission de champ à froid, avec un champ électrique laser au lieu de statique.

Dans la deuxième partie du chapitre, nous avons décrit les phénomènes de conduction et d'émission à partir de diélectrique. Cette description nous permettra, dans la

suite du manuscrit, de mieux comprendre les phénomènes régissant l'émission des nanopointes de diamant.

---

**Sommaire**


---

2.1	Fabrication et caractérisation des nanopointes	27
2.1.1	Pointes de tungstène	28
2.1.2	Pointes de diamant	30
2.2	Montages d'émission et de détection	32
2.2.1	Chambre à vide	32
2.2.2	Bride porte-échantillon	34
2.2.3	Méthode de focalisation du laser sur l'apex de la pointe	35
2.2.4	Spectromètre à retard pour les électrons	36
2.2.5	Cartographies d'émission FEM	39
2.3	Dispositif laser femtoseconde	40
2.3.1	Description et modélisation	41
2.3.2	Oscillateur	43
2.3.3	Tangerine	44
2.3.4	NOPA	44
2.3.5	Montage optique	46
2.4	Conclusion	46

---

A mon arrivée en thèse, le dispositif expérimental était opérationnel depuis quelques années. Il a été décrit dans la thèse de Mina BIONTA [BIONTA (2015)]. Nous y avons apporté quelques modifications mineures. Il est composé d'une chambre à vide dont les éléments à l'intérieur ont été fabriqués au LCAR par les équipes techniques. Il permet la mesure du courant d'émission d'électrons à partir de nanopointes en illuminant l'apex par des impulsions lasers femtosecondes focalisées. Cette mesure de courant s'associe à une mesure du spectre en énergie des électrons émis ainsi que de cartographies spatiales de l'émission. Nous utilisons plusieurs sources lasers femtosecondes à différentes longueurs d'onde et différents taux de répétition.

Dans ce chapitre, nous décrivons les différentes parties du dispositif expérimental. En premier lieu, nous présentons les méthodes de fabrication des pointes de diamant et de tungstène ainsi que leurs observations au microscope MEB. Dans la deuxième partie, nous nous intéressons à la chambre à vide ainsi qu'aux différentes méthodes de mesure des grandeurs physiques qui nous intéressent. La dernière partie permettra de présenter l'ensemble du dispositif optique.

## 2.1 FABRICATION ET CARACTÉRISATION DES NANOPOINTES

Dans cette partie, nous présentons les différents protocoles de fabrication des nanopointes de tungstène et de diamant utilisées pendant nos mesures. Pour chaque

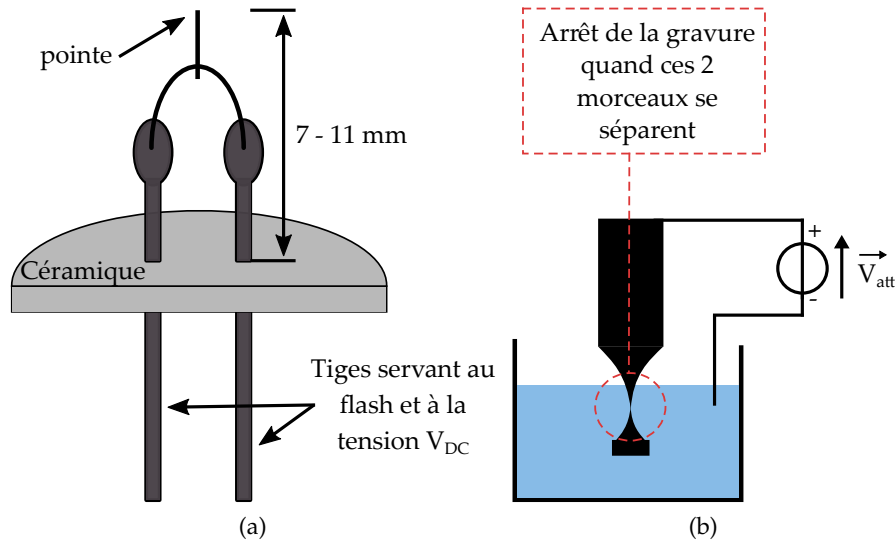


FIGURE 2.1 – (a) Schéma du montage des nanopointes de tungstène. Un pont de tungstène est soudé sur deux tiges tenues par une plaque de céramique. Ces deux tiges permettent l'application d'une tension statique ainsi que d'un courant de flash utile au nettoyage de la pointe. (b) Schéma du montage électrique utilisé pour la fabrication des nanopointes de tungstène. Cette technique, appelée gravure électro-chimique, permet d'atteindre des rayons à l'apex de l'ordre de la dizaine de nanomètres.

type de pointe, nous décrivons dans un deuxième temps le processus d'observation après fabrication ainsi que la méthode de nettoyage utilisée pour permettre une émission plus stable.

### 2.1.1 Pointes de tungstène

Les nanopointes de tungstène sont utilisées pour l'émission de champ à froid pour la microscopie depuis plusieurs décennies. Son haut point de fusion (3695 K) ainsi que son travail de sortie de  $\sim 4.5$  eV en font le candidat idéal pour les types d'émission que nous étudions dans ce manuscrit. De plus, la technique de fabrication de ce type de nanopointe par gravure électrochimique (electro-chemical etching) est très bien maîtrisée, répétable et facile à mettre en place [TSONG (1994); EKVALL et al. (1999); LUCIER (2004); BIONTA (2015)].

Les nanopointes de tungstène ont été fabriquées par nous-mêmes au CEMES (Centre d'Élaboration de Matériaux et d'Études Structurales) à Toulouse. Les portes-pointes sont des *FEI and Philips Standard V Loop Filament*. Ils sont composés d'un demi-cercle, coupé pour des raisons techniques, de céramique (isolant électrique) de 26 mm de diamètre et de deux tiges de tungstène, de diamètre 1 mm, traversant la céramique. Un des côtés de ces tiges est aplati afin de pouvoir y souder un filament de tungstène en forme de pont. L'autre côté des tiges permettra d'appliquer une tension statique sur la pointe. La présence de deux tiges au lieu d'une permet de flasher la pointe, i.e. imposer un courant de plusieurs ampères dans le filament qui la retient pour la

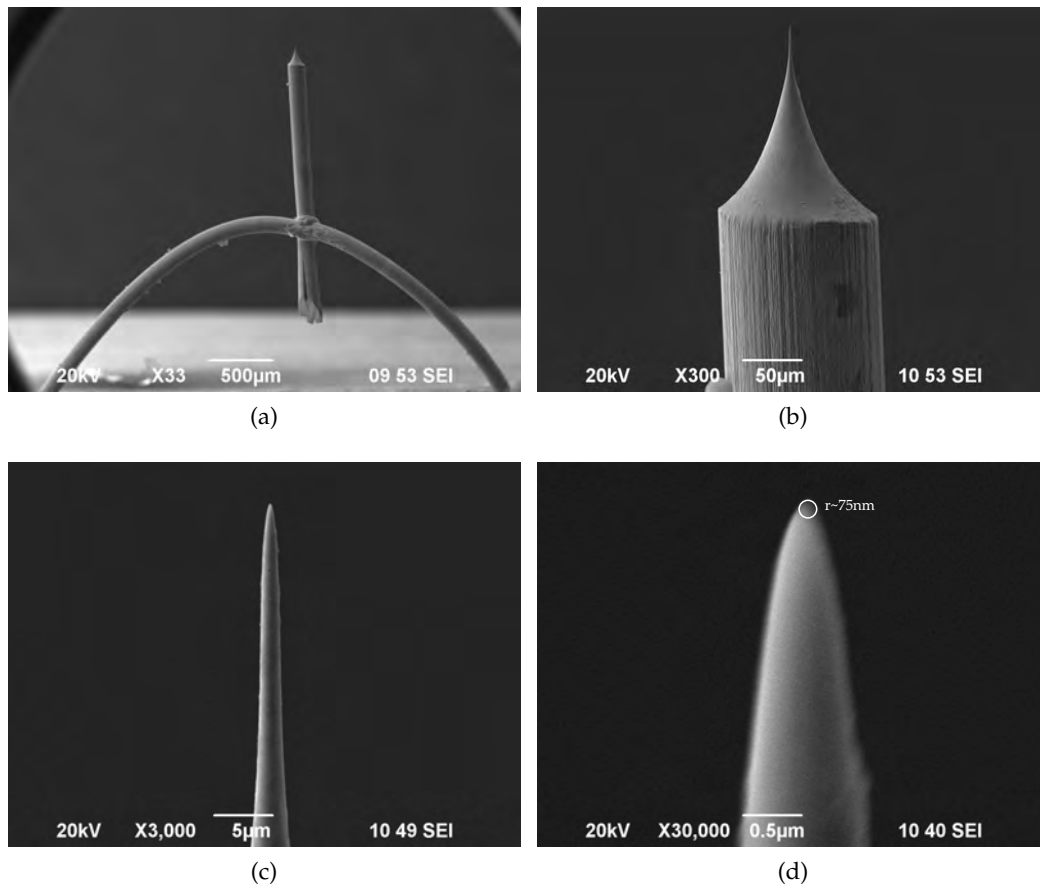


FIGURE 2.2 – Photos prise au MEB d'une pointe de tungstène fabriquée par gravure électrochimique. Les photos ont été prises pour différents agrandissements. On peut établir un rayon à l'apex de  $\sim 75$  nm.

nettoyer en la chauffant à quelques milliers de Kelvins.

Pour tenir la pointe, nous utilisons un filament de tungstène polycristallin de diamètre 0.125 mm que nous plions pour qu'il prenne la forme d'un pont. Ce pont est soudé sans ajout de matière à l'aide d'un fort courant électrique sur les tiges plus larges. Le pont est utile pour flasher la pointe puisque c'est le long de celui-ci qu'un courant électrique de plusieurs ampères sera induit. La pointe sera donc nettoyée par effet de conduction thermique. Une fois le pont fixé, on lui soude un filament monocristallin d'orientation (310) servant à fabriquer la pointe. Ce filament de diamètre 0.125 mm est placé au milieu du pont de manière la plus symétrique possible. Un schéma de ce montage est présenté sur la [Figure 2.1a](#).

C'est sur le filament monocristallin que l'on pratique une gravure électrochimique permettant la fabrication de nanopointes de l'ordre de la dizaine de nanomètres. L'orientation du tungstène est prise selon l'axe (310) puisqu'il s'agit de l'orientation pour laquelle le travail de sortie est le plus faible (4.35 eV). Le filament est placé dans une solution d'oxyde de sodium (NaOH) concentré à 2 mol/L. La gravure électrochimique est faite en appliquant une tension entre le filament et la solution. Pour cela, le filament agit comme l'anode, reliée à la borne positive, et la solution comme la cathode,

relié à la borne négative. Le filament est alors immergé de 1 mm dans la solution puis remonté de 0.1 mm afin de former un ménisque sur ses côtés. Une tension d'attaque de 7.5 V est appliquée sur le système. Sous l'effet de la tension, la gravure prend place à l'interface entre le filament et la solution. L'angle du ménisque déterminera la forme de la pointe fabriquée. Cet angle dépend de la quantité de matière plongée dans la solution. Au fur et à mesure de la gravure, l'angle du ménisque s'abaisse afin de former un ménisque de plus en plus plat. C'est cette chute du ménisque qui donne au filament cet aspect de pointe. Une fois la gravure terminée, le morceau de la pointe encore à l'intérieur de la solution mais non gravé se détache du filament. Cet effet se caractérise par une chute drastique du courant électrique. Le filament doit alors être rapidement remonté hors de la solution puis plongé dans une solution d'éthanol afin de le nettoyer de potentiels restes de solution. Un schéma du montage électrique utilisé est présenté sur la [Figure 2.1b](#).

Une fois la fabrication de la pointe terminée, la pointe est observée au microscope électronique à balayage (MEB) afin d'évaluer son rayon à l'apex. Les pointes seront réobservées après leur placement dans le dispositif expérimental afin de voir l'évolution du rayon à l'apex suite à l'émission. La [Figure 2.2](#) présente les photos pour une pointe de tungstène utilisée dans les mesures des chapitres suivants. La pointe photographiée a été fabriquée par gravure électro-chimique et son rayon à l'apex peut être pris  $\sim 75$  nm.

Une fois placées à l'intérieur du dispositif expérimental, les pointes de tungstène sont flashées avant toutes tentatives d'émission afin d'être nettoyées. Pour cela, on applique un courant de 2 A à 4 A pendant 750 ms au travers du filament-pont tenant la pointe. Le niveau de pression dans la chambre à vide est en même temps observé afin de voir son évolution. Ce niveau de pression est observé sur le contrôleur de la pompe ionique. Une augmentation de pression lors d'un flash permet de s'assurer du dégazage d'une partie des impuretés présentes sur la pointe. Ce protocole est répété jusqu'à ce qu'il n'y ait plus de signature de nettoyage sur le niveau de pression du vide. Ce flash peut être reproduit au milieu des expériences si l'on estime que la pointe n'est plus assez propre, ce qui se manifeste par un courant d'émission de champ à froid instable.

### 2.1.2 Pointes de diamant

Les nanopointes de diamant sont fabriquées par nos collaborateurs à l'université de Moscou en Russie (Alexander N. OBRAZTSOV et Victor I. KLESHCH). Les pointes sont ensuite envoyées à nos collaborateurs à l'université de Rouen (groupe d'Angela VELLA au laboratoire GPM) pour être montées sur des pointes de tungstène. Toutes les mesures présentées dans cette thèse sont faites soit au LCAR à Toulouse soit plus marginalement à Rouen. Dans cette partie, nous décrivons la fabrication de ces pointes ainsi que les techniques d'observation et de nettoyage.

Les pointes sont fabriquées par dépôt chimique en phase vapeur (*CVD = Chemical Vapor Deposition*) [OBRAZTSOV et al. (2010)]. Ce type de procédé utilise un ou plusieurs précurseurs en phase gazeuse qui se décomposent sur la surface d'un substrat afin

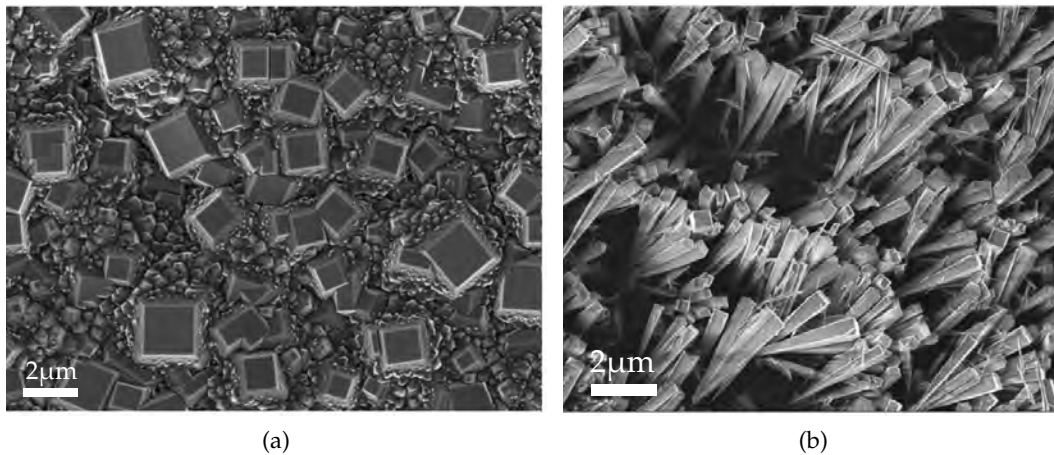


FIGURE 2.3 – (a) Photo MEB de la surface de diamant fabriquée par CVD. On remarque la présence de cristaux rectangulaires avec des dimensions de l'ordre du micromètre. Une oxydation thermique permettra de ne garder que ces cristaux et d'éliminer ceux avec des dimensions plus faibles. (b) Photo MEB des nanopointes de diamant couchées sur la surface du substrat. Cette photo est prise après l'oxydation thermique. D'après [OBRAZTSOV et al. (2010)].

d'obtenir le dépôt désiré. Ici, le précurseur utilisé est un gaz d'hydrogène-méthane ( $\text{CH}_4 : \text{H}_2 = 5 : 95$ ). Il est activé par une densité de courant de décharge de  $0.7 \text{ A/cm}^2$  à partir d'une tension statique de  $750 \text{ V}$ . La pression totale du gaz a été prise à  $9.5 \text{ kPa}$  pour un temps de déposition de  $180 \text{ min}$ . Le substrat utilisé est une plaque de silicium [Si(100),  $460 \mu\text{m}$  d'épaisseur] chauffé à  $900 \text{ }^\circ\text{C}$ . Avant d'être utilisées comme substrat, les plaques sont traitées avec de la poudre de diamant micrométrique permettant d'augmenter la densité des sites de nucléations. Le traitement a été fait soit par abrasion mécanique soit par ultrasonification dans un milieu aqueux contenant de la poudre de diamant en suspension. Les deux méthodes ont montrées des résultats similaires [OBRAZTSOV et al. (2010)].

Une fois la CVD terminée, on obtient un film de diamant présentant des cristaux rectangulaires de l'ordre du micromètre à la surface (Figure 2.3a). Ces cristaux sont orientés le long du plan cristallin (100). Le film CVD est alors oxydé afin d'y supprimer tous les cristaux dont les dimensions sont trop faibles. Pour cela, on les expose à l'atmosphère classique à  $650 \text{ }^\circ\text{C}$  pendant 10 heures. L'oxydation permet d'obtenir une « forêt » de pointes de diamant dont l'apex est dirigé vers le substrat. Les pointes sont alors poussées délicatement sur le côté afin de prendre une position allongée sur le substrat (Figure 2.3b).

Une fois les pointes fabriquées, elle sont envoyées à Rouen afin de les coller à la sonde ionique focalisée (*FIB = Focus Ion Beam*) sur un filament de tungstène polycristallin. Le collage se fait à base d'un apport de platine. Le filament de tungstène est ensuite inséré dans un tube de nickel pincé afin de le maintenir immobile. La Figure 2.4 présente des photos MEB prises après la soudure d'une pointe de diamant sur le filament de tungstène pour différents grossissements. On peut y estimer le



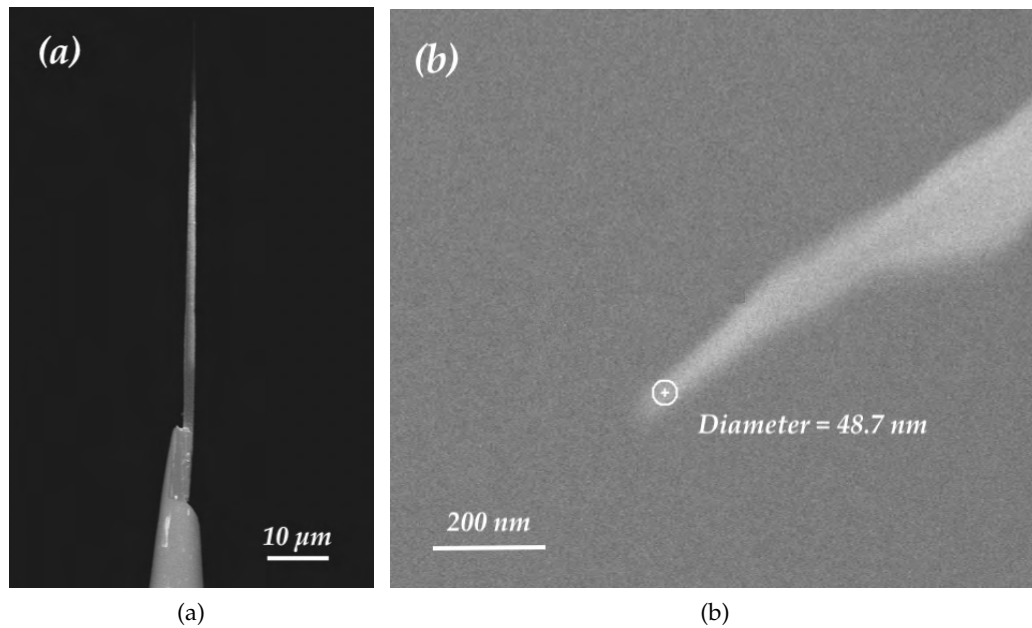


FIGURE 2.4 – Photos prises au MEB d’une nanopointe de diamant accrochée à un filament de tungstène. Les photos sont prises pour différents grossissements. Le rayon à l’apex peut être estimé sur la deuxième photo.

rayon à l’apex  $\sim 25$  nm.

Les pointes de diamant ne sont pas montées sur la même céramique que les pointes en tungstène. La différence se situe sur le nombre bornes pouvant être reliées sur la pointe. En effet, la soudure du filament support de tungstène sur le pont de la monture pourrait fragiliser la soudure tungstène/diamant. Pour les pointes de diamant, il n’y a qu’une seule borne permettant la mise en place de la tension statique. L’absence d’une deuxième borne nous empêche d’effectuer des flashes pour ces types de pointe. Pour nettoyer les pointes de diamant, nous utilisons donc une forte tension positive ( $\sim +2500V$ ) pendant 3 min suivie d’une illumination par un laser femtoseconde 200 mW (300 fs) pendant 30 min.

## 2.2 MONTAGES D’ÉMISSION ET DE DÉTECTION

Nous présentons dans cette partie les différents éléments du dispositif expérimental permettant l’émission et la détection des électrons (Figure 2.5).

### 2.2.1 Chambre à vide

Nos expériences d’émission d’électrons à partir de nanopointes prennent place à l’intérieur d’une chambre à vide (*Ultra-high Vacuum Chamber = UHV*) en acier inox. Le vide à l’intérieur est maintenu à  $\sim 10^{-10}$  mbar. Un tel vide permet de diminuer drastiquement la contamination de surface de nos échantillons. La chambre à vide est composée de différents hublots de verre permettant l’insertion des faisceaux lasers et l’observation de la pointe durant l’alignement. Ces hublots ont une épaisseur entre 3

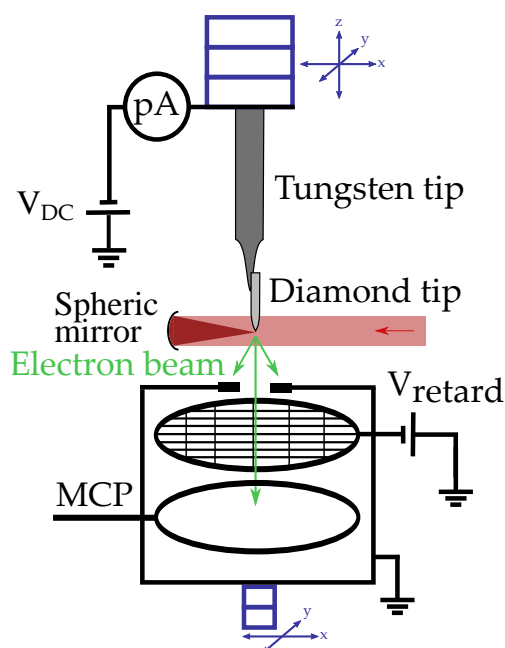


FIGURE 2.5 – Schéma du dispositif expérimental. Un laser femtoseconde est focalisé, à l'aide d'un miroir sphérique, à l'apex d'une nanopointe placée sous une tension statique  $V_{DC}$ . Les électrons émis sont mesurés par un spectromètre à retard placé sur des translations piézoélectriques. Le courant peut être mesuré par des MCPs ou par un picoampèremètre. Une deuxième série de translations piézoélectriques est placée sur la pointe afin de la déplacer le plus précisément possible dans la focalisation du faisceau laser.

et 6 mm présentant une forte dispersion pour nos faisceaux lasers. Cette dispersion sera pré-compensée en amont pour chacun des faisceaux laser à l'aide de miroirs à dérive de fréquence négative (*chirped mirrors*).

À l'intérieur de la chambre à vide, la pression est mesurée à l'aide d'une jauge à cathode chaude de type Bayard-Alpert. Le vide est quant à lui maintenu grâce à l'association d'une pompe ionique et d'une NEG (*Non-Evaporable Getter*). Pour certaines expériences, nous nous sommes aperçus que la pompe ionique créait un bruit électronique mesuré par notre détecteur. Celle-ci est donc éteinte pour certaines mesures et compensée par une pompe turbomoléculaire. L'inconvénient de cette pompe peut être la présence de vibrations mécaniques. Dans notre cas, cela n'influe ni sur l'émission ni sur la position du faisceau laser.

Après chaque ouverture, la chambre à vide dont un schéma est présenté sur la [Figure 2.6](#) est chauffée jusqu'à 125 °C pendant 48 heures. Après cela, elle est redescendue à température ambiante en 24 heures avec un arrêt autour de 50 °C afin de chauffer les différents filaments présents dans la chambre (deux filaments Bayard-Alpert, un filament NEG et un filament sur le spectromètre de masse). Ce chauffage permet de dégazer les dernières contaminations présentes sur les filaments. En cas de fuite, il est possible d'utiliser un détecteur de gaz résiduels (*RGA = Residual Gas Analyser*). Celui-ci est placé directement à l'intérieur de la chambre à vide et permet de détecter

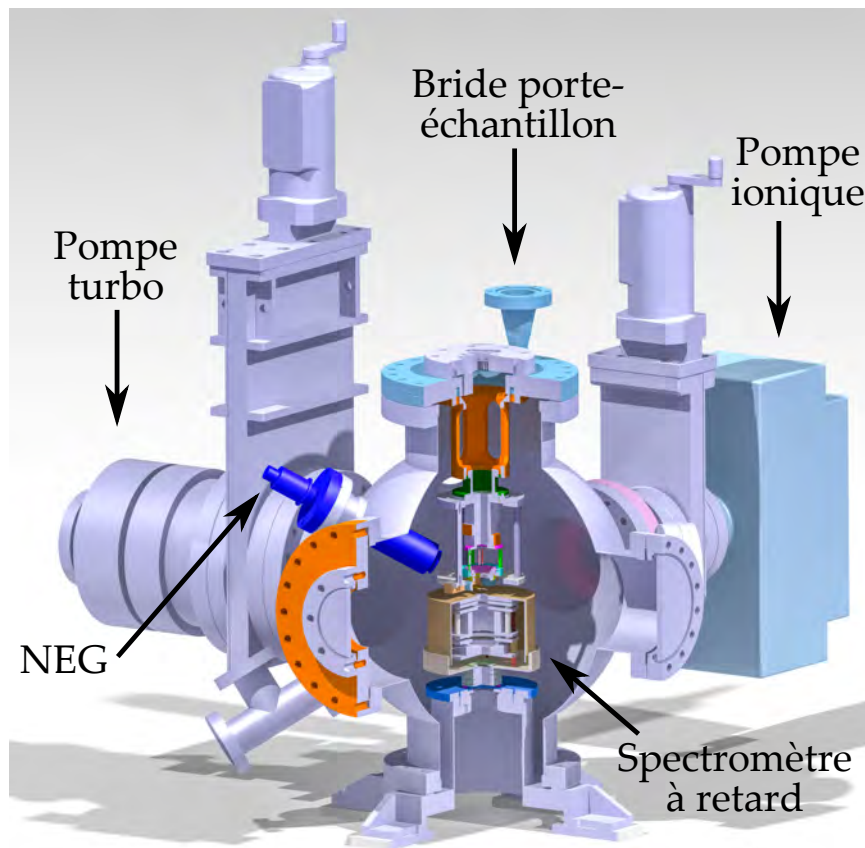


FIGURE 2.6 – Schéma de la chambre à vide et de ses divers composants.

des gaz tel que l'hélium, pratique pour la détection de fuites.

Les différents éléments présents à l'intérieur de la chambre sont représentés schématiquement sur la [Figure 2.5](#) et détaillés dans les paragraphes suivants.

### 2.2.2 Bride porte-échantillon

Comme vu dans la partie précédente, les pointes de diamant et de tungstène ne sont pas installées sur la même pièce mécanique. Les pointes de tungstène sont montées sur un filament accroché à deux tiges insérées dans un demi-disque de céramique ([Figure 2.7a](#)). Les pointes de diamant sont quant à elles insérées dans un tube de nickel pincé à son extrémité ([Figure 2.7b](#)). Pour chacune des pointes, le porte pointe est installé sur des pylônes isolants, eux-mêmes installés sur trois translations piézo-électriques (*Attocube systems AG*) permettant un mouvement dans les trois directions de l'espace. Elles permettent un déplacement sur une portée de quelques micromètres avec une résolution de l'ordre du nanomètre. Ces translations sont utiles afin de déplacer le plus précisément possible l'apex de la pointe dans le foyer du miroir, ceci permettant la focalisation du faisceau laser sur l'apex ([Figure 2.8](#)).

Notre dispositif expérimental permet d'appliquer une tension statique sur les différentes pointes. Cette tension négative  $-V_{DC}$  (nous prendrons par la suite  $V_{DC} > 0$ ) est prise entre 0 et  $-1500$  V. Pour les tensions entre 0 et  $-600$  V, un générateur de tension

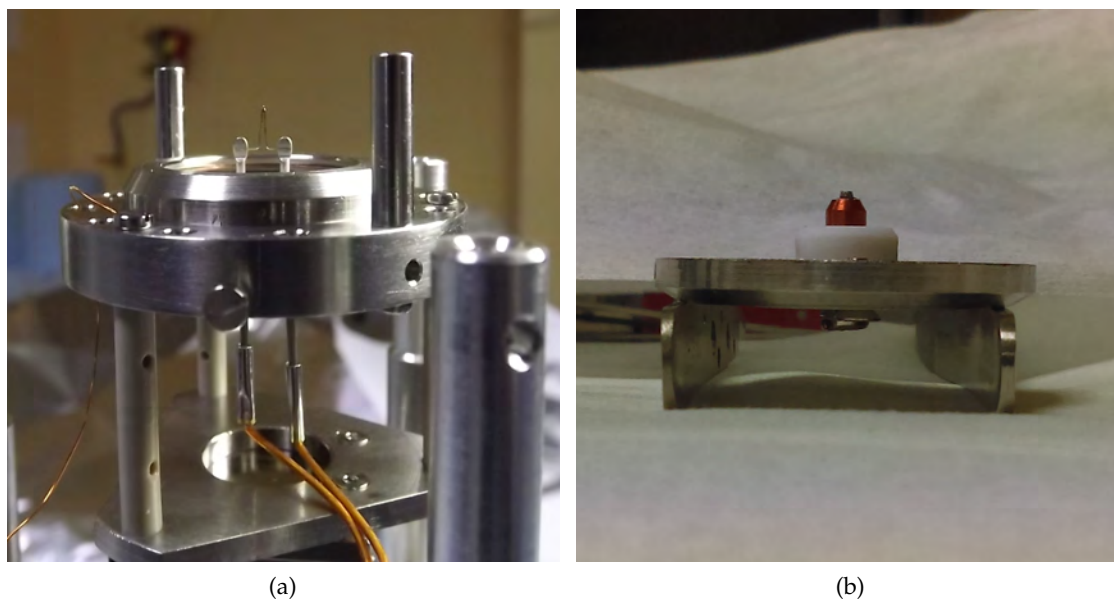


FIGURE 2.7 – Porte-pointe dans le cas d'une pointe de tungstène (a) et d'une pointe de diamant (b). Sur le premier, on remarque les deux tiges accrochées au pont de tungstène et permettant le flash de la pointe.

TDK (*TDK-Lambda GEN600-1.3*) est utilisé. Pour des tensions supérieures, on utilise un générateur de tension Stanford Researchs (*SRS-PS325*) qui possède en contrepartie une moins bonne résolution. Un spectromètre à retard, dont le potentiel est nul, est placé en face de la pointe afin de servir d'anode (voir partie 2.2.4).

La tension statique appliquée sur la pointe permet dans le cas statique d'émettre des électrons par émission de champ à froid. Dans le cas optique, elle sert à accélérer les électrons jusqu'au détecteur en leur appliquant une énergie cinétique supplémentaire. Cette énergie cinétique sera :  $E_{kin} = e|V_{DC}|$  avec  $e$  la charge élémentaire.

### 2.2.3 Méthode de focalisation du laser sur l'apex de la pointe

A l'intérieur de notre dispositif expérimental, la focalisation du laser sur l'apex de la pointe se fait à l'aide d'un miroir sphérique de longueur focale 4.5 mm qui permet d'atteindre des largeurs de faisceau minimale à  $\sim 3 \mu\text{m}$  de rayon. Dans la plupart des cas, nous commençons par placer l'apex de la pointe dans le foyer du miroir à l'aide des translations piézoélectriques du support de pointe. Ceci se fait à l'aide d'une caméra placée dans l'axe du faisceau laser et dirigée vers le miroir sphérique. En utilisant les translations piézoélectriques du porte-pointe, il est possible de placer grossièrement la pointe dans le foyer du miroir (Figure 2.9a). La méthode est décrite précisément dans la thèse de Mina BIONTA [BIONTA (2015)]. A la suite de ça, le laser est envoyé au centre du miroir sphérique. A l'aide d'une monture de miroir précise, il est possible de bouger les axes horizontal et vertical du dernier miroir avant la chambre à vide. C'est ce dernier miroir qui nous permet de déplacer le foyer laser le plus précisément possible sur l'apex de la pointe jusqu'à la détection du courant.

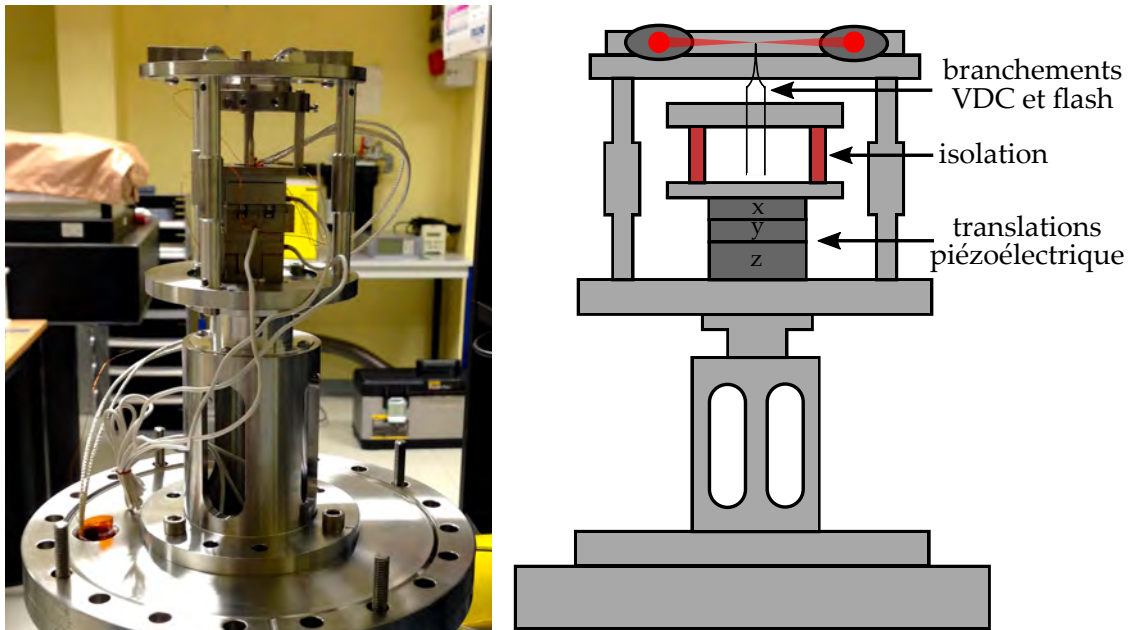


FIGURE 2.8 – Photo (gauche) et schéma (droite) des pièces mécaniques permettant la manipulation de la pointe. On remarque la présence des translations piézoélectriques permettant un déplacement très précis de l’apex dans le foyer du miroir.

Notre dispositif permet la mise en place d’une deuxième méthode de focalisation du laser à l’apex de la pointe. Cette technique fut très peu utilisée tout au long de ma thèse. Elle utilise deux miroirs paraboliques de part et d’autre de la pointe. Le laser est alors envoyé sur un des deux miroirs puis renvoyé à l’extérieur de la chambre avec le deuxième miroir (Figure 2.9b). Cette méthode est très utile dans le cas où l’on souhaite récupérer le faisceau laser après émission, ou observer un éventuel rayonnement émis par la pointe (non-réalisé dans cette thèse).

#### 2.2.4 Spectromètre à retard pour les électrons

Les électrons émis sont mesurés par un spectromètre à champ retardé [HORI et al. (1975)]. Ce type de spectromètre permet la mesure de l’énergie cinétique des électrons (Figure 2.10). Dans notre dispositif expérimental, il est entièrement recouvert d’un blindage magnétique fait de mu-métal. Ceci permet de protéger les électrons des champs magnétiques externes. Ce type de protection est particulièrement utile étant donné que des électrons avec de faibles énergies cinétiques sont très sensibles aux champs magnétiques résiduels (champ terrestre par exemple).

Les électrons sont détectés à l’aide de galettes de micro-canaux (*MCP = Micro Channel Plate*). Deux MCP sont placées l’une après l’autre dans des sens opposés en chevron afin d’éviter tous cas pour lequel un électron pourrait traverser un canal sans ne toucher aucune paroi. Nous utilisons des MCP Hamamatsu qui ont un diamètre de 32 mm. La face d’entrée des MCP est polarisée à une tension de +200 V avec une anode à leur sortie polarisée à une tension de +2200 V. Ces valeurs de tensions ont été prises car elles correspondaient à une tension d’entrée ainsi qu’à une différence de

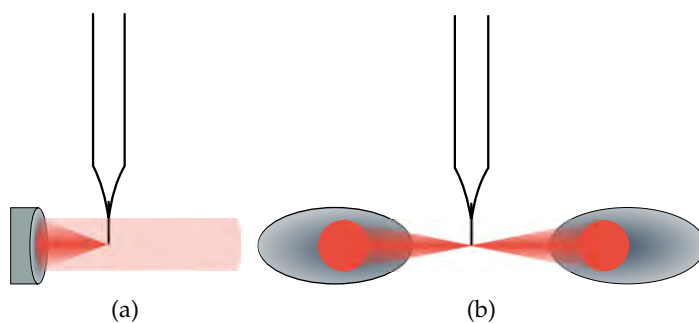


FIGURE 2.9 – Schéma des différentes techniques de focalisation du faisceau laser à l'apex de la pointe. Utilisation d'un miroir sphérique (a) ou de deux miroirs paraboliques (b) permettant la récupération du faisceau.

tension entre les faces d'entrée et de sortie présentant le gain le plus important dans notre cas. Les MCP nous permettent de mesurer un courant d'émission en fonction du nombre d'électrons détectés pendant un temps donné.

Le spectromètre décrit dans la [Figure 2.10](#) est composé d'une grille de retard polarisée à une tension négative  $V_{retard}$ . Cette grille agit comme un filtre passe-haut pour les électrons en fonction de leur énergie cinétique. Une variation de  $V_{retard}$  permet l'obtention de spectre de l'énergie cinétique de la distribution des électrons émis. Les électrons ayant assez d'énergie pour traverser la grille de retard, traversent à la suite une grille polarisée avec une tension de +30 V. Cette tension  $V_{kick}$  permet de réaccélérer les électrons afin qu'ils rejoignent les MCP. Avant cela, ils traversent une lentille de Einzel afin de focaliser les électrons sur la partie active des MCP.

Le signal des MCP est ensuite envoyé dans un découpleur suivi d'un amplificateur ([Figure 2.11](#)). Le signal transite alors vers un discriminateur. Celui-ci permet de ne sélectionner que des signaux dont l'amplitude est supérieure à une amplitude donnée. Il est alors possible d'éliminer une grande partie du bruit électronique venant des différents appareils électriques autour de la chambre à vide. Le discriminateur transforme le signal reçu en un signal TTL (*Transistor-Transistor Logic*) qui peut être compté par le système d'acquisition de notre ordinateur.

Ce type de spectromètre à retard permet la réalisation de spectre en énergie des électrons émis. Pour cela, nous déplaçons  $V_{retard}$  autour de  $V_{DC}$  avec des pas de 0.05 V minimum et nous mesurons le courant d'émission à chaque point. Ceci nous permet l'acquisition d'un spectre d'énergie intégré ([Figure 2.12a](#)). En dérivant celui-ci, il est possible de retrouver le spectre non-intégré (au signe près). Un lissage Savitsky-Golay peut être appliqué afin d'apercevoir plus facilement certains détails (pics multiphotoniques par exemple) ([Figure 2.12b](#)). La résolution de notre spectromètre a été évaluée à  $\Delta E/E \sim 4 \times 10^{-3}$  à partir de simulations de SIMION [BIONTA (2015)] et confirmé en mesurant des spectres d'émission de champ à froid. Le champ électrique  $F$  doit donc être pris le plus faible possible afin de maximiser la précision sur la mesure.

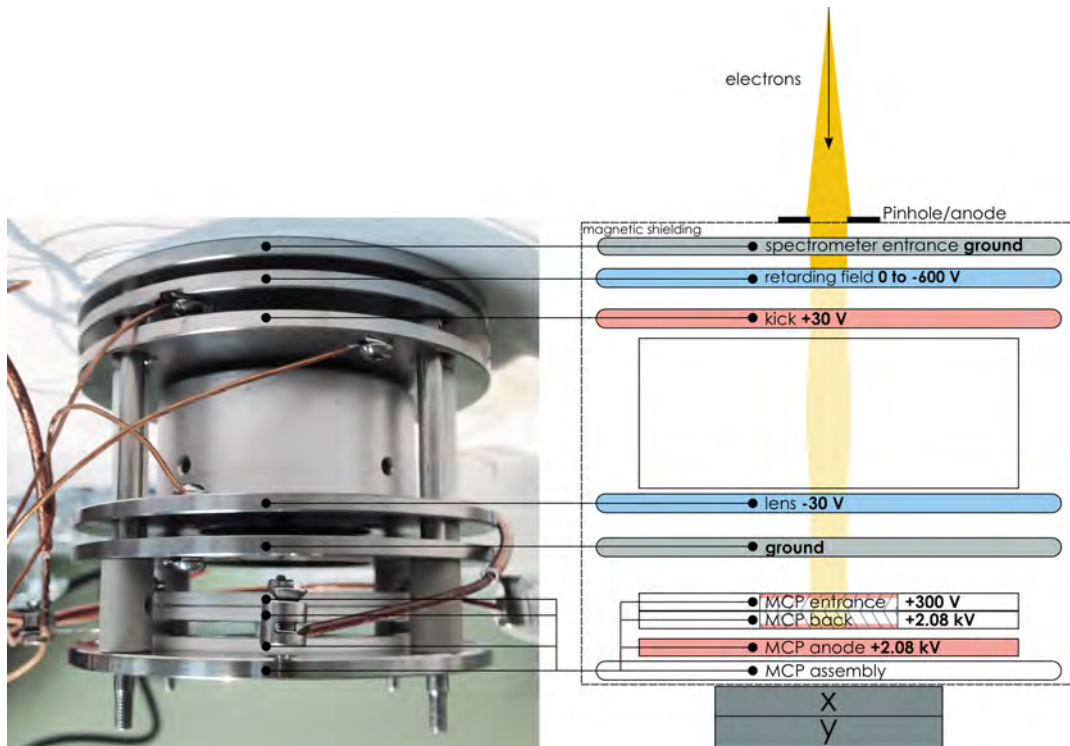


FIGURE 2.10 – Gauche : Photo du spectromètre sans la boîte de mu-métal empêchant le champ magnétique de pénétrer. Droite : Schéma du spectromètre.

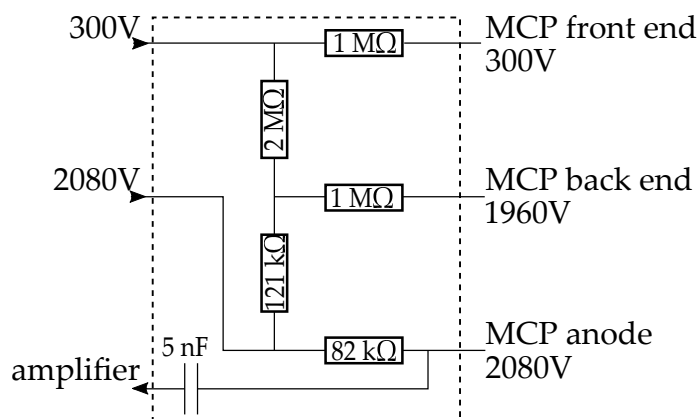


FIGURE 2.11 – Schéma électrique de la boîte de mise sous tension des MCP. Elle contient aussi le découpleur et l'amplificateur du signal d'anode.

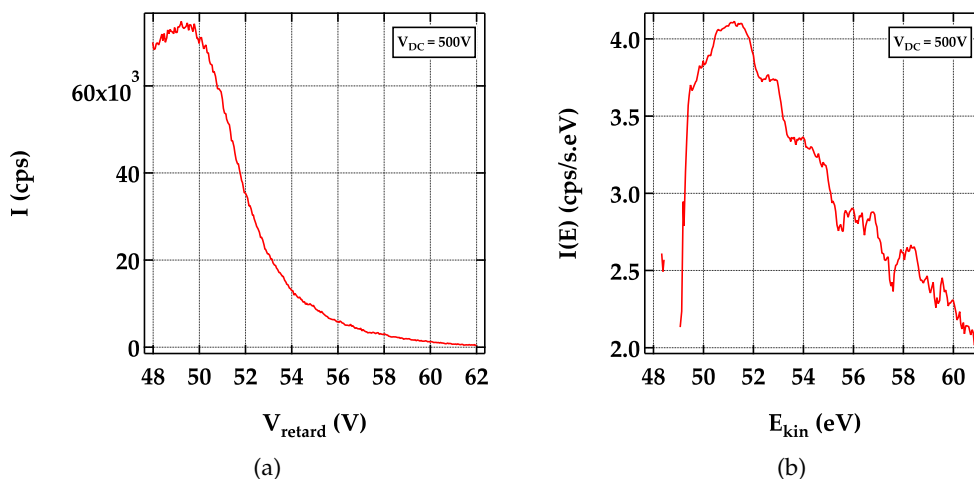


FIGURE 2.12 – (a) Spectre intégré mesuré en faisant varier la tension de retard  $V_{retard}$  autour de la tension de pointe  $V_{DC}$ . (b) Spectre obtenu en dérivant le spectre (a) et en appliquant un lissage Savitsky-Golay.

Le principal défaut du spectromètre est sa très faible efficacité. En effet, la présence de multiple grilles avant l'entrée des MCP élimine une partie des électrons émis de la pointe (taux de traversée des grilles = 60%). De plus, les MCP ne peuvent détecter qu'un électron à la fois. De ce fait, si plusieurs électrons rentrent dans les canaux au même moment, il n'en sera compté qu'un seul sur le courant. Le taux d'efficacité des MCP a été mesurée à  $\sim 1\%$ . Pour remédier à cela et avoir une vraie idée de la valeur du courant total d'émission, nous avons placé un picoampèremètre sur la pointe. Ce picoampèremètre est placé à la même tension que la pointe à l'aide d'un transformateur d'isolement (Figure 2.13a). Il nous permet de mesurer des courants d'émission allant de 50 pA ( $\sim 300$  millions d'électrons par seconde) qui est la limite du bruit jusqu'au milliampère. Les MCPs ne pouvant compter qu'au maximum  $\sim 1$  million d'électrons par seconde, on comprend que les deux dispositifs permettent des mesures de courant dans des gammes de tensions bien différentes.

### 2.2.5 Cartographies d'émission FEM

L'entrée du spectromètre est délimitée par un trou de taille variable par l'ajout d'une pièce percée (0.2 mm ou 0.7 mm de diamètre). Ce trou permet de sélectionner qu'une partie des électrons émis. Le spectromètre à retard et son blindage sont placés sur des translations piézoélectriques (Attocube systems AG). Elles ont une portée de 20 mm avec une résolution de l'ordre du nanomètre. Ces translations, combinées au trou d'entrée de l'anode, nous permettent d'effectuer des cartographies de l'émission (FEM = *Field Emission Microscopy* (Figure 2.13b)) [GOMER (1961)] des électrons en déplaçant le spectromètre en spirale autour du point chaud de l'émission (Figure 2.14a). Les électrons sont accélérés principalement proches de l'apex de la pointe et suivent une trajectoire rectiligne. On peut alors faire correspondre le point d'émission de l'électron avec l'endroit où il est détecté. La résolution des cartes est directement lié à la taille du trou présent à l'entrée du spectromètre. Les cartes peuvent



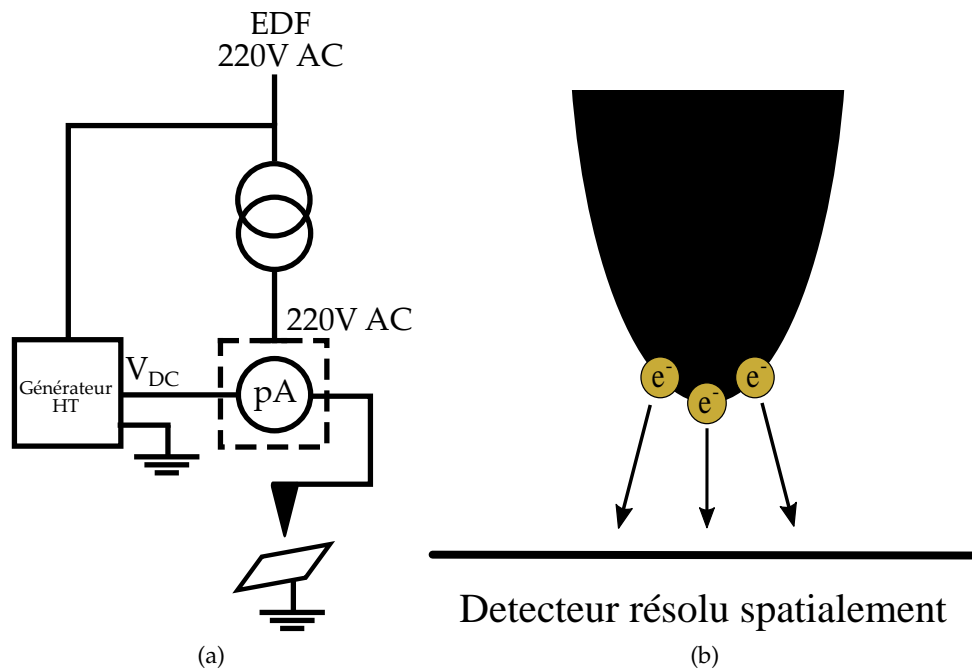


FIGURE 2.13 – (a) Schéma électrique de la mise en place du picoampèremètre. La carcasse de l'appareil est isolée de la terre par un transformateur d'isolement. (b) Schéma du principe de la FEM (*Field Emission Microscopy*). Les électrons étant accélérés proches de l'apex, ils suivent une trajectoire rectiligne. La zone d'émission peut donc être directement reliée à la zone de détection.

être lissées afin d'apparaître moins pixélisées en tenant compte de la taille du trou d'entrée (Figure 2.14b). Avec ces cartes, il est possible d'étudier la résolution spatiale de l'émission des électrons et de la mettre en lien avec des calculs d'amplification du champ au bout de la pointe par exemple.

### 2.3 DISPOSITIF LASER FEMTOSECONDE

Afin de faciliter l'émission d'électrons à partir de nanopointes sous l'effet d'un champ laser, de fortes intensités lumineuses du laser sont nécessaires. Celles-ci permettent de maximiser la probabilité d'émission des électrons car les mécanismes de photoémission sont non-linéaires. Afin d'éviter le chauffage du matériau, les lasers femtosecondes possédant des temps d'impulsions très courts sont donc les systèmes optiques les plus pertinents. Ils permettent d'atteindre des puissances crêtes très hautes (> MW voir GW) sur des temps très courts de l'ordre de la dizaine de femtosecondes.

Durant toutes nos expériences, trois systèmes laser différents ont été utilisés. Le premier est un oscillateur femtoseconde Ti :saphire à 62 MHz de taux de répétition. Le deuxième est un laser fibré IR à taux de répétition variable (de l'impulsion unique à 2 MHz). Ce laser peut être utilisé pour pomper un dispositif optique non-linéaire. Cette source laser secondaire, nommée NOPA (*Noncollinear Optical Parametrical Amplifier*), permet de réduire la durée de l'impulsion tout en gardant la propriété du taux

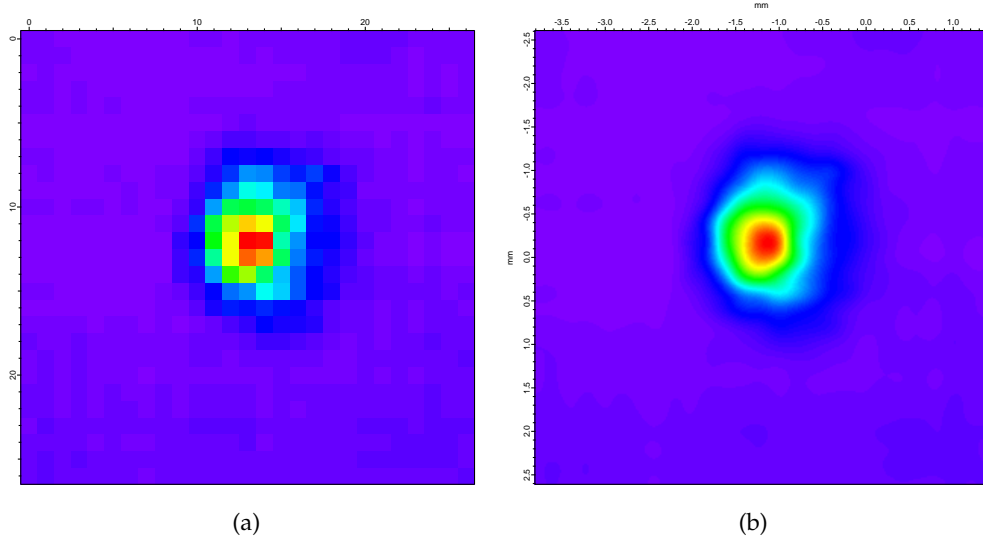


FIGURE 2.14 – Exemple de cartographies d'émission FEM mesurées avec les données brutes (a) et les données lissées (b).

de répétition variable.

Dans la suite de cette partie, nous rappelons les grandeurs physiques pertinentes pour la description des impulsions laser femtosecondes, puis nous décrivons les caractéristiques des sources laser. Enfin, nous détaillons le montage optique utilisé pour l'illumination des pointes.

### 2.3.1 Description et modélisation

Une impulsion laser est décrite par un champ électrique complexe solution des équations de Maxwell tel que :

$$\mathbf{E}(t) = A(t) \cdot e^{-i(\omega_0 t + \Phi(t))} \boldsymbol{\epsilon} \quad (2.1)$$

avec  $A(t)$  l'enveloppe temporelle de l'impulsion,  $\omega_0$  la pulsation centrale de l'impulsion,  $\Phi(t)$  la phase temporelle et  $\boldsymbol{\epsilon}$  la polarisation du faisceau laser. Il est possible de réécrire cette définition dans le domaine fréquentiel :

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{A}(\omega) \cdot e^{i\phi(\omega)} = \int dt E(t) e^{i\omega t} \quad (2.2)$$

avec  $\phi(\omega)$  la phase spectrale et  $\tilde{A}(\omega)$  l'enveloppe spectrale de l'impulsion. L'enveloppe  $\tilde{A}(\omega)$  n'est pas modifiée par la propagation. C'est la phase  $\phi(\omega)$  qui est principalement responsable du profil temporel  $A(t)$  de l'impulsion. Pour  $\phi(\omega) = \text{constante}$ , la durée est minimale et l'impulsion est dite limitée par transformée de Fourier (durée  $\propto 1/\Delta\omega$  avec  $\Delta\omega$  la largeur spectrale de  $\tilde{A}(\omega)$ ). En appliquant un développement limité jusqu'à l'ordre 2 sur la phase spectrale, on obtient :

$$\phi(\omega) = \phi(\omega_0) + \phi'(\omega_0)(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\phi''(\omega_0)(\omega - \omega_0)^2 \quad (2.3)$$

Dans ce développement limité, l'ordre 0 représente la phase de l'enveloppe de l'impulsion par rapport à la porteuse ( $CEP = Carrier Envelope Phase$ ); l'ordre 1 le délai relatif de l'impulsion; l'ordre 2 la dispersion de groupe ( $GDD = Group Delay Dispersion$ ) aussi appelée chirp. Les ordres supérieurs, bien que pertinents pour des impulsions  $< 20$  fs ne seront pas discutés ici.

Nous revenons ici sur le phénomène de dispersion d'ordre 2, la dérive de fréquence. Il représente la dilatation ou la compression de la durée temporelle de l'impulsion en fonction de la différence d'arrivée des différentes composantes spectrales de l'impulsion. On peut alors noter la durée temporelle de l'impulsion  $\Delta T$  telle que :

$$\Delta T = \sqrt{\Delta T_0 + \left( \frac{2\phi''(\omega_0)}{\Delta T_0} \right)} \quad (2.4)$$

avec  $\Delta T_0$  la durée minimale possible de l'impulsion. Dans un matériau dispersif, la vitesse de la lumière dépend de sa longueur d'onde. Une impulsion laser réunissant plusieurs composantes spectrales, leur vitesse ne seront pas les mêmes. Cette différence de vitesse peut entraîner une dilatation de la durée de l'impulsion par exemple durant la traversée d'un hublot de verre présent au-niveau de la chambre à vide. Une dérive de fréquence positive correspond au cas où les faibles énergies (rouge) sont plus rapides que les hautes énergies (bleu). De la même façon, une dérive de fréquence négative représente le cas inverse.

Il est possible d'établir une relation entre la durée temporelle d'une impulsion minimale  $\Delta t$  et sa largeur spectrale à mi-hauteur  $\Delta\omega$  à partir de l'incertitude d'Heisenberg énergie/temps :

$$\Delta\omega\Delta t \geq 2\pi K \quad (2.5)$$

avec  $K$  une constante dépendant de la forme de l'enveloppe. Pour des impulsions de forme Gaussienne,  $K = 2\ln(2)$ . Cette équation nous donne une relation directe entre la largeur spectrale d'une impulsion et la durée temporelle minimale possible sans aucune dispersion. La dispersion d'ordre 2 étant un phénomène pouvant agrandir ou diminuer la largeur temporelle d'une impulsion, elle agit donc sur la puissance crête de l'impulsion.

Dans notre dispositif expérimental, la présence d'un puissance-mètre le long du parcours optique nous permet de mesurer la puissance moyenne du faisceau laser  $P_{mean}$ . En connaissant le taux de répétition du laser  $R$  (en Hertz), on peut remonter à l'énergie de chaque impulsion  $E$  (en Joule) tel que :

$$E = \frac{P_{mean}}{R} \quad (2.6)$$

A partir de cette énergie, il est possible de définir une puissance crête  $P_{peak}$  en prenant la durée de l'impulsion  $\Delta t$  tel que :

$$P_{peak} = \frac{E}{\Delta t} \quad (2.7)$$

avec un facteur multiplicatif dépendant du profil temporel de l'impulsion. Avec la taille de la section du faisceau laser  $\Delta x$ , on peut remonter à l'intensité crête  $I_{peak}$  (en  $W/cm^2$ ) :

$$I_{peak} = \frac{P_{peak}}{(\Delta x)^2} \quad (2.8)$$

Pour un faisceau gaussien de waist  $w_0$  :

$$I_{peak} = \frac{2P_{peak}}{\pi w_0^2} \quad (2.9)$$

Au cours des mesures effectuées, nous considérerons que la surface du faisceau illuminant la pointe reste constante avec  $w_0 \sim 3 \mu m$ . Nous utiliserons donc le plus souvent l'énergie de chaque impulsion (du nJ au  $\mu J$ ) ainsi que le taux de répétition du faisceau laser (du kHz au MHz).

### 2.3.2 Oscillateur

Le premier système laser utilisé pour nos mesures est un laser très courant pour l'émission de champ optique. Il s'agit d'un laser oscillateur Ti :saphire (*Femtolasers femto source synergy*) avec un taux de répétition de 62 MHz. Ce laser est pompé par la deuxième harmonique d'un laser YAG (532 nm) lui-même pompé par des photodiodes. La longueur d'onde est centrée sur 800 nm avec une largeur spectrale de 70 nm à mi-hauteur ( $FWHM = Full Width at Half Maximum$ ) correspondant à une durée d'impulsion de minimale  $\sim 15$  fs. En pratique, on se situe plutôt à 20 fs. La puissance moyenne maximale en sortie d'oscillateur est  $\sim 360$  mW correspondant à une énergie par impulsion de  $\sim 5.8$  nJ.

A la sortie de l'oscillateur, le faisceau laser est minutieusement travaillé pour atteindre des valeurs de dérive de fréquence, polarisation et puissance moyenne souhaitées (Figure 2.17). Une série de paires de miroirs à dérive de fréquence est utilisée afin de compenser la dispersion du faisceau laser traversant le hublot d'entrée de la chambre à vide. Le choix des paires de miroirs permet de minimiser la durée de l'impulsion mesurée sur un auto-corrélateur (*Femtoeasy single shot autocorrelation*). Cette mesure est effectuée avant l'entrée du faisceau laser dans la chambre à vide et après la traversée d'un hublot identique à celui de la chambre. La différence sur la durée de l'impulsion est très fine car les optiques à la suite de la précompensation n'ajoutent que très peu de dispersion, au même titre que l'air ambiant qui sert de milieu de propagation au faisceau. Avant cela, la puissance moyenne est contrôlée avec une lame d'onde  $\lambda/2$  suivie d'un polariseur. Un autre polariseur est ajouté à la suite afin de nettoyer la polarisation. Enfin, une dernière lame d'onde  $\lambda/2$  permet de sélectionner la polarisation rectiligne incidente sur la pointe. Tous les miroirs utilisés sont des miroirs métalliques ou diélectriques adaptés spécialement à l'utilisation d'impulsions très courtes.

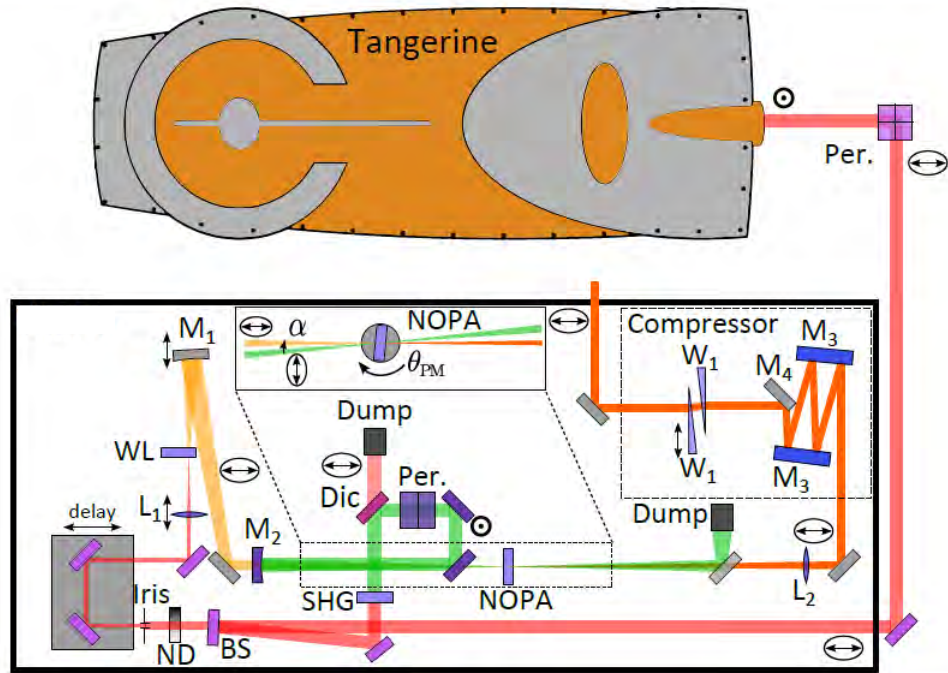


FIGURE 2.15 – Dispositif expérimental : un laser Tangerine, 1030 nm, 300 fs, est utilisé comme pompe pour un NOPA à un taux de répétition de 1 MHz. Per. : périscope pour régler la polarisation. ND : filtré à densité variable. WL (*White Light*) : génération de lumière blanche dans un cristal YAG de 4 mm. SHG (*Second Harmonic Generation*) : génération de seconde harmonique dans un cristal BBO de 3 mm d'épaisseur coupé à 23.5°. L<sub>1</sub> : lentille de distance focale 40 mm, L<sub>2</sub> : lentille de distance focale 250 mm. BS (*Beam-Splitter*) : lame séparatrice avec une réflexion de 90%, M<sub>1</sub> : miroir d'or concave de distance focale 75 mm, M<sub>2</sub> : miroir diélectrique de distance focale 250 mm, Dic : miroir dichroïque, M<sub>3</sub> : miroir à dérive négative, M<sub>4</sub> : miroir D-shaped.

### 2.3.3 Tangerine

Le deuxième laser utilisable est un laser fibré Tangerine de chez *Amplitude Systems* à une longueur d'onde centrale de 1030 nm. La propriété intéressante de ce laser est sa particularité d'avoir un taux de répétition variable entre l'impulsion unique et 2 MHz pour des durées d'impulsion de 300 fs. Cette propriété est utile pour nous dans le cas de l'étude des nanopointes de diamant puisque nous nous intéressons à l'émission entre les impulsions lasers. Il permet d'atteindre une puissance moyenne de 20 W pour un taux de répétition de 2 MHz, ce qui correspond à une énergie par impulsion de 10  $\mu$ J. De la même façon que pour l'oscillateur, un ensemble de lame d'onde  $\lambda/2$ -cube polariseur est utilisé afin de sélectionner la puissance moyenne et la polarisation souhaitée.

### 2.3.4 NOPA

Un NOPA (Noncollinear Optical Parametric Amplifier) est une source laser secondaire femtoseconde artisanale fabriquée directement au LCAR au moment du début de

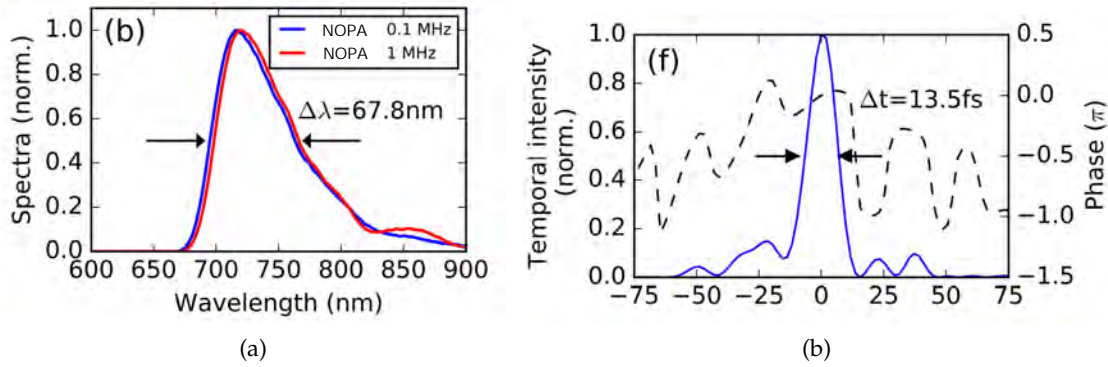


FIGURE 2.16 – (a) Spectre du faisceau laser à la sortie du NOPA pour deux taux de répétition différents. (b) Reconstitution temporelle d’une trace FROG. La ligne bleue (axe gauche) représente l’intensité temporelle et la ligne pointillée représente la phase temporelle en unité de  $\pi$ .

ma thèse. Il génère des impulsions accordables à partir d’une source primaire qui est ici un laser Tangerine. L’intérêt de ce laser est de pouvoir choisir le taux de répétition souhaité mais en ayant une durée d’impulsion plus de dix fois inférieure à celle de sa source primaire. La longueur d’onde du NOPA est comprise entre 700 nm et 800 nm.

Un NOPA [CERULLO et al. (2003)] reprend le même principe qu’un OPA. Cette technique permet d’amplifier un faisceau signal  $\omega_s$  par un faisceau pompe très intense  $\omega_p$  en les faisant se propager tous les deux dans un cristal non-linéaire. On parle alors de génération par différence de fréquence (*DFG = Difference Frequency Generation*). Un photon du faisceau pompe est divisé en deux photons d’énergie plus faible : un photon identique à ceux du faisceau signal  $\omega_s$  et un photon complémentaire (*idler*)  $\omega_i$ . Par conservation de l’énergie, on satisfait  $\omega_p = \omega_s + \omega_i$ . Afin d’augmenter l’efficacité de l’amplification, il est important de satisfaire la conservation du vecteur d’onde (ou quantité de mouvement). Ce processus est appelé l’accord de phase.

Un NOPA réutilise la physique d’un OPA en rajoutant un degré de liberté sur l’arrivée des faisceaux signal et pompe sur le cristal. Il consiste à placer un angle entre ces deux faisceaux. En faisant varier cet angle, on permet à une plus grande largeur spectrale de vérifier la condition d’accord de phase et donc d’être amplifiée. Cette largeur spectrale permet d’obtenir des impulsions plus courtes que les impulsions pompe après compression. Pour nos caractéristiques physiques, l’angle  $\alpha = 2.6^\circ$  permet d’amplifier des longueurs d’onde entre 650 nm et 1000 nm tout en conservant l’accord de phase.

Pour construire notre NOPA (Figure 2.15), nous utilisons le faisceau laser Tangerine à 1 MHz (20  $\mu\text{J}$ /impulsion) que nous séparons en deux. 90% est envoyé dans un premier cristal de BBO afin d’être doublé en fréquence et de produire des impulsions vertes 515 nm (efficacité de conversion 30% – 40%). L’autre partie (10%) est envoyé dans un cristal de YAG pour créer un continuum de lumière blanche [BRADLER et al. (2009)]. Ces deux faisceaux sont alors renvoyés dans un deuxième cristal BBO afin d’amplifier le faisceau blanc (signal) par le faisceau vert (pompe). On choisit un angle entre les deux de  $2.6^\circ$  qui correspond à l’amplification optimale dans notre cas. Le

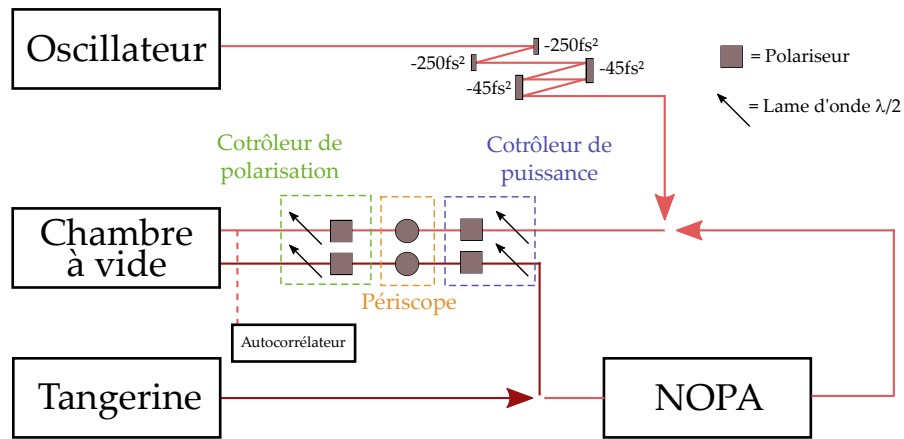


FIGURE 2.17 – Schéma du montage optique global. Les différentes sources lasers suivent un chemin optique différent jusqu'à leur focalisation à l'apex de la pointe. Le contrôle de la puissance et de la polarisation se fait à l'aide de lames d'onde et de polariseurs.

faisceau laser ainsi créé est alors envoyé vers un compresseur pour réduire la durée de son impulsion de 300 à 20 fs. Ce compresseur utilise des miroirs à dispersion négative ( $\sim 250\text{fs}^2$ ). La mesure de cette durée est réalisée à partir d'un autocorrélateur ou d'un dispositif FROG [DELONG et al. (1994)] réalisé au laboratoire.

La longueur d'onde du faisceau de sortie est de 720 nm avec une largeur à mi-hauteur de 67.8 nm pour deux taux de répétition différents (Figure 2.16a). Il est possible de la faire varier entre 700 et 800 nm. Les impulsions ont une énergie maximale de  $1\ \mu\text{J}$ . La durée temporelle de l'impulsion à la sortie du NOPA est de 13.5 fs à mi-hauteur (Figure 2.16b). Cette mesure est refaite juste avant l'entrée dans la chambre à vide où l'on obtient une durée de  $\sim 21\text{ fs}$ .

### 2.3.5 Montage optique

La Figure 2.17 présente un schéma récapitulatif et simplifié du montage optique. La présence des trois faisceaux lasers est clairement identifiée. Les faisceaux lasers oscillateur et NOPA empruntent les mêmes composants optiques à cause de leur longueur d'onde proche. Le Tangerine opère lui sur un autre chemin optique avec la possibilité non présentée sur le schéma de le doubler en fréquence pour obtenir du vert à 515 nm.

## 2.4 CONCLUSION

Ce chapitre a été consacré à la description du dispositif expérimental. Les nanopointes de tungstène, utilisées lors des mesures, ont été fabriquées par nous mêmes au CEMES par gravure électro-chimique. Ce procédé nous permet d'atteindre des rayons à l'apex de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Les nanopointes de diamant ont été fabriquées par nos collaborateurs en Russie par CVD. Dans les deux cas, les matériaux utilisés sont des monocristaux.

Dans un deuxième temps, nous avons décrit la chambre à vide utilisée durant nos mesures ainsi que les éléments qui la composent. Un spectromètre à retard, placé sur des translations piézoélectriques, permet l'acquisition de l'énergie cinétique des électrons émis, ainsi que des mesures de la disposition spatiale de l'émission (FEM). La présence de MCP et d'un picoampèremètre nous permet l'acquisition du courant d'émission en comptage ou total.

Enfin dans la dernière partie, nous avons décrit l'ensemble du dispositif optique. Il est composé de trois systèmes lasers différents possédant des longueurs d'onde, des énergies, des taux de répétition et des durées temporelles différents. Le montage optique permet un contrôle en puissance et en polarisation des impulsions lasers illuminant la nanopointe.





---

**Sommaire**


---

3.1	Calcul numérique de l'amplification du champ à l'apex d'une nano-pointe de tungstène	50
3.1.1	Rappels sur les coefficients d'amplification statique et optique	50
3.1.2	Modélisation géométrique du dispositif expérimental	51
3.1.3	Calcul numérique du coefficient d'amplification statique $\beta$	52
3.1.4	Calcul numérique du coefficient d'amplification optique $\xi$	53
3.1.4.1	Polarisation parallèle à l'axe de la pointe	55
3.1.4.2	Polarisation perpendiculaire à l'axe de la pointe	57
3.1.4.3	Lien avec les mécanismes d'émission dans le cas d'un laser femtoseconde	60
3.2	Cartographies de l'émission des électrons	61
3.2.1	Cartographie sous émission statique	61
3.2.2	Cartographie sous émission laser	62
3.3	Tracé de Fowler-Nordheim	63
3.4	Émission multiphotonique au-dessus du seuil	65
3.4.1	Dépendance en énergie des impulsions du laser	66
3.4.2	Dépendance en polarisation du laser	67
3.4.3	Spectre de photoémission	68
3.4.4	Émission entre les impulsions	69
3.5	Conclusion	70

---

Le tungstène apparaît depuis de nombreuses années comme le matériau idéal pour l'émission d'électrons par la communauté d'émission de champ et de photoémission [YANAGISAWA et al. (2009)]. Son haut point de fusion (3695 K) [GOOD et al. (1956)] associé à une excellente robustesse mécanique et à de bonnes conductivités électrique ( $\sigma_{tung} = 8.9 \times 10^6$  S/m comparable à celle de l'étain  $\sigma_{etain} = 8.7 \times 10^6$  S/m) et thermique ( $\lambda_{tung} = 174$  W · m<sup>-1</sup> · K<sup>-1</sup>) permettent une émission stable et répétable. Dans son plan cristallin (310), il possède un travail de sortie avantageux de  $\sim 4.35$  eV [MENDENHALL et al. (1937)]. D'un autre côté, le tungstène est un matériau oxydable, ce qui nous oblige à travailler dans des vides poussés de l'ordre de 10<sup>-10</sup> mbar.

L'émission de champ à froid ainsi que la photoémission à partir de nanopointes de tungstène (Figure 3.1) ont été longuement étudiées [HOMMELHOFF et al. (2006); BARWICK et al. (2007); SCHOTTKY (1923); BIONTA et al. (2014)]. Ces études reprennent les différents types d'émission décrits dans la partie 1.1 (champ à froid, multiphotonique et champ optique). En utilisant ces études, il nous est possible dans un premier

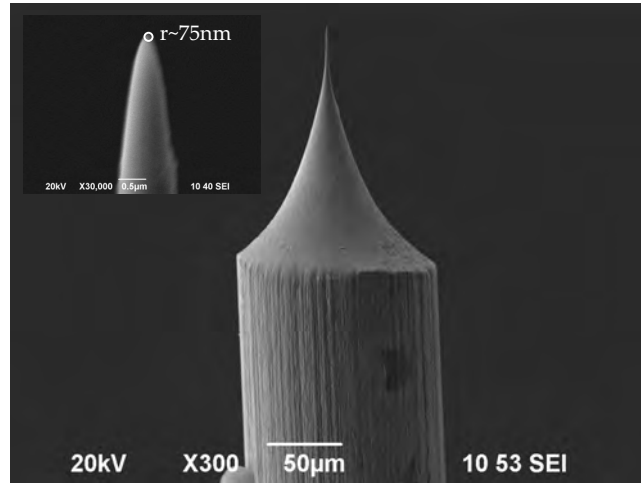


FIGURE 3.1 – Photo MEB des types de nanopointes de tungstène utilisées. Leur rayon est entre 50 et 100 nm.

temps de les comparer aux résultats sur nos nanopointes de tungstène à l'intérieur du dispositif expérimental. Ce calibrage sur des nanopointes de tungstène nous permettra dans un second temps de comparer le type d'émission de ces pointes avec l'émission de nanopointes de diamant.

Dans ce chapitre, nous discuterons de l'émission de champ à froid ainsi que de la photoémission induite par un laser femtoseconde focalisé à l'apex de nanopointes de tungstène. Des simulations ont été faites afin de caractériser la valeur des coefficients d'amplification des champs statique et optique à l'apex de ce type de pointe. Dans la première partie, après avoir rappelé les définitions de ces coefficients, nous présenterons les détails de la simulation ainsi que ses résultats. Ces calculs seront alors comparés aux cartographies de l'émission d'électrons dans la deuxième partie. Dans la troisième partie, nous présenterons les résultats expérimentaux de l'émission de champ à froid d'une nanopointe de tungstène. Ces résultats nous permettront de montrer la capacité à suivre l'évolution de la géométrie de la pointe au fur et à mesure des expériences sans avoir à la sortir du dispositif expérimental pour la placer au MEB. Dans la dernière partie, nous reviendrons sur les résultats expérimentaux de la photoémission induite par un laser femtoseconde focalisé à l'apex d'une nanopointe de tungstène. Cette partie présentera des résultats bien connus d'émission multiphotonique, notamment de sa dépendance par rapport à la puissance du laser.

### 3.1 CALCUL NUMÉRIQUE DE L'AMPLIFICATION DU CHAMP À L'APEX D'UNE NANOPOINTE DE TUNGSTÈNE

#### 3.1.1 Rappels sur les coefficients d'amplification statique et optique

Dans cette partie, nous rappelons les définitions des coefficients d'amplification statique  $\beta$  et optique  $\zeta$  décrites dans la partie 1.1.5.

Il est possible, à partir de la tension statique  $V_{DC}$  appliquée sur une nanopointe, de calculer le champ électrique local  $F$  à l'apex à partir du facteur d'amplification du champ local  $\beta$ . On définit  $\beta$  tel que :  $\beta = F/V_{DC}$ . Dans cette formule,  $\beta$  dépend du rayon de la pointe à l'apex  $r$  et d'un facteur géométrique  $k$  tel que  $\beta = \frac{1}{kr}$ . Pour nos types de pointe, le facteur géométrique  $k$  peut être pris égal à 5 [GOMER (1961)]. Nous verrons que cette approximation peut être soumise à discussion. En utilisant la formule reliant le champ statique local  $F$  à la tension appliquée  $V_{DC}$ , une pointe de tungstène avec un rayon  $r = 50$  nm soumise à une tension statique  $V_{DC} = 250$  V possédera un champ électrique local à l'apex  $F = 1$  GV/m correspondant au champ statique minimum pour observer l'émission de champ à froid.

De la même façon, on peut définir un coefficient d'amplification optique  $\xi$  tel que :  $\xi = \max_{(r)} \{|E_{nf}(r)|/|E_{in}(r)|\}$  avec  $r$  l'abscisse curviligne le long de la pointe,  $E_{nf}$  (NF = *Near Field*) le champ optique amplifié proche de la pointe et  $E_{in}$  le champ incident. Ce facteur dépend principalement des propriétés géométriques de la pointe, des propriétés optiques du matériau et des propriétés du faisceau laser. L'intensité lumineuse est alors multipliée par  $|\xi|^2$  qui peut atteindre des valeurs de 10 à 100.

Dans la suite de cette partie, nous calculerons à partir d'une simulation faite grâce au logiciel COMSOL (éléments finis) la valeur de ces deux coefficients pour une nanopointe de tungstène dont la géométrie se rapproche de nos échantillons. La démarche pour calculer numériquement chacun des coefficients sera différente mais la modélisation du système restera la même. Nous décrivons cette dernière dans la partie suivante.

### 3.1.2 Modélisation géométrique du dispositif expérimental

Cette partie est commune au calcul des coefficients statique et optique. Nous détaillons les différences dans les sous-parties à la suite de ce paragraphe. Notre dispositif expérimental se compose entre autres d'une nanopointe de tungstène à l'intérieur d'une chambre à vide. Dans notre simulation, nous ne modélisons que ces deux éléments et laissons de côté volontairement le porte-pointe ou les porte-miroirs par exemple. Pour modéliser la pointe ainsi que l'enceinte à vide, nous utilisons une méthode par éléments finis à base de tétraèdres ( $\sim 1$  million d'éléments). Dans le cas de l'émission statique, la pointe ne sera modélisée qu'en surface car sa surface représentera une des conditions aux limites de notre calcul (le champ électrique ne pénètre pas dans le tungstène qui est considéré comme un métal parfait). Pour le cas optique, le volume de la pointe sera modélisée avec les paramètres optiques du tungstène. La pointe est modélisée par un cône tronqué d'angle  $\alpha$ , avec une calotte hémisphérique de rayon  $r$  au bout (apex). C'est une approximation, car en réalité, la surface de la pointe n'est pas aussi régulière. La chambre à vide est représentée par un parallélépipède rectangle de dimensions ( $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$ ) sur une hauteur de  $7 \mu\text{m}$ . Dans notre dispositif expérimental, la chambre à vide a des dimensions de l'ordre de la trentaine de centimètres. On peut donc considérer qu'un champ étant réfléchi sur un des bords ne reviendra pas contaminer l'émission au niveau de l'apex de la pointe. Pour éviter ce phénomène de réflexions parasites dans la simulation, nous avons

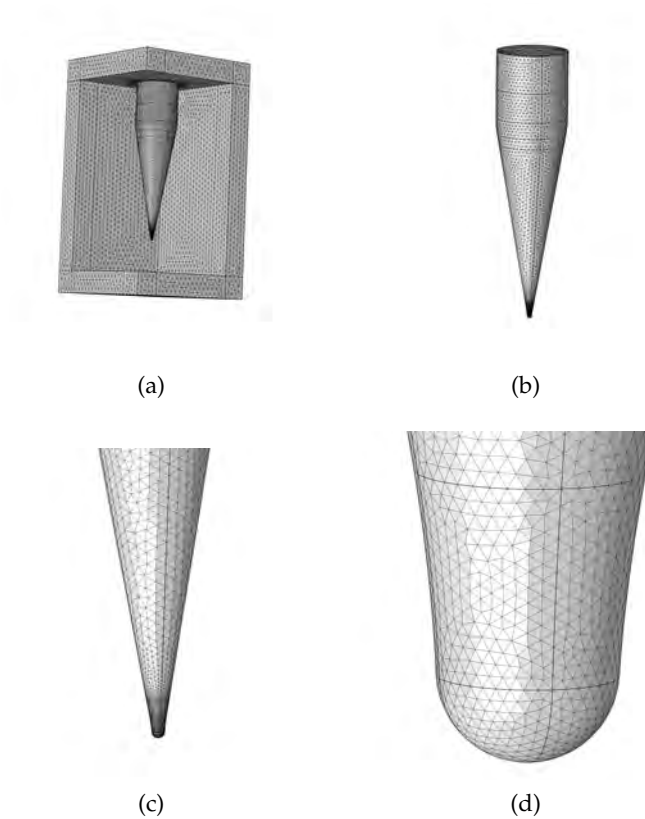


FIGURE 3.2 – Image de la modélisation géométrique de la pointe et de son enceinte à vide pour différents zooms.

entouré la chambre vide de couches de matériau absorbant appelées PML (*Perfectly Match Layer*). Ces couches ont une épaisseur correspondant à une longueur d'onde du faisceau laser (800 nm) afin d'atténuer complètement le champ électrique y pénétrant.

La [Figure 3.2](#) présente des images de la modélisation de la chambre à vide et de la pointe dans la simulation pour différents zooms. On représente sur ces éléments les mailles tétraédriques.

### 3.1.3 Calcul numérique du coefficient d'amplification statique $\beta$

Dans cette partie, nous présentons le calcul du champ statique à l'apex d'une nanopointe de tungstène soumise uniquement à une tension statique  $V_{DC}$ . Ce calcul décrit très bien le cas de l'émission de champ à froid par exemple. Dans ce cas là, la pointe ainsi que les conditions aux limites sont toutes symétriques par rotation selon l'axe de la pointe. Notre modèle utilise donc un maillage entièrement en 2D. Les éléments tétraédriques de la pointe et du vide sont remplacés par des éléments triangulaires.

Le calcul du champ se fait en appliquant un potentiel  $V_{DC}$  sur la surface à l'apex de la pointe et en forçant le potentiel loin de celle-ci ( $\sim 11 \mu\text{m}$  qui correspond à 220 fois le rayon de la pointe) à 0 V pour simuler l'anode. Le programme résout donc l'équation de Laplace  $\Delta V = 0$  avec des conditions aux limites. Pour ce calcul, le rayon

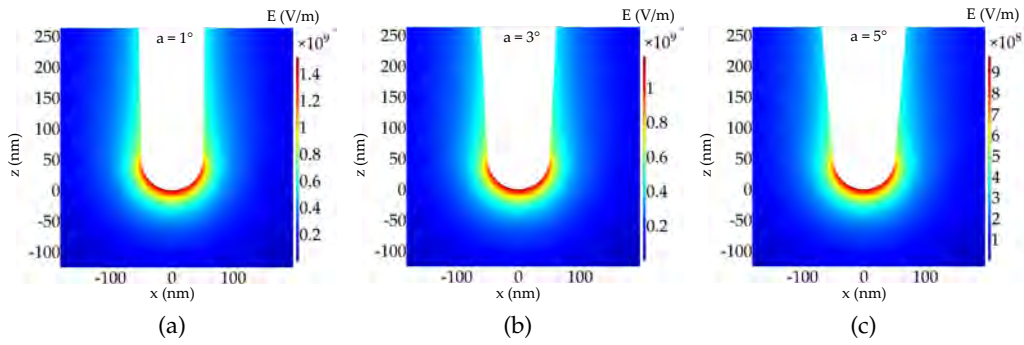


FIGURE 3.3 – Calcul numérique de la norme du champ électrique à l'apex d'une nanopointe de tungstène pour une tension appliquée de 250 V. L'angle d'ouverture de la pointe est pris égal à  $1^\circ$ (a),  $3^\circ$ (b) et  $5^\circ$ (c) pour un rayon de la pointe à l'apex de 50 nm.

de la pointe sera pris égal à 50 nm avec une tension appliquée  $V_{DC} = 250$  V.

La Figure 3.3 présente le calcul de la norme du champ électrique statique pour une nanopointe de tungstène prise avec trois angles d'ouverture  $\alpha$  différents entre  $1^\circ$  et  $5^\circ$ . En connaissant la tension statique appliquée sur la pointe  $V_{DC}$ , il est possible de remonter au coefficient d'amplification du champ  $\beta$  pour chacun des cas, Équation 1.17 Par exemple, pour le cas  $\alpha = 3^\circ$ , la valeur maximale de la norme du champ est  $F_{max} \sim 1.1$  GV/m. Cela correspond à une valeur de  $\beta = 4.4 \times 10^6 \text{ m}^{-1}$  avec  $V_{DC} = 250$  V. Pour un rayon  $r = 50$  nm, on trouve  $k = 4.54$ .

Cette étude permet de comprendre l'évolution du facteur  $k$  en fonction de la géométrie de la pointe et notamment de son angle d'ouverture. Nous avons vu dans la partie précédente que le facteur  $k$  pouvait être pris égal à 5 pour la forme de nos pointes. Cependant, en reprenant les images MEB de nos échantillons, il est difficile d'établir une valeur de l'angle d'ouverture. Pour des angles allant de  $1^\circ$  à  $5^\circ$ , en reprenant le champ maximum calculé numériquement pour chacun des cas, le coefficient  $k$  varie de 3.44 à 5.11. Pour la suite de notre étude, nous prendrons la valeur  $k = 5$  en se référant aux études [GOMER (1961)] déjà menées sur ce type de pointe mais en gardant à l'esprit que cela reste une approximation (incertitude de l'ordre de 10% environ).

### 3.1.4 Calcul numérique du coefficient d'amplification optique $\zeta$

De la même façon que pour le champ électrique statique, il est possible de calculer numériquement le champ électrique optique provenant d'une source laser focalisée à l'apex d'une nanopointe. En ajoutant le faisceau laser dans l'enceinte à vide, nous brisons la symétrie de révolution autour de l'axe de la pointe. Les calculs dans le cas de la simulation optique sont donc faits à partir d'un maillage en 3D tétraédriques.

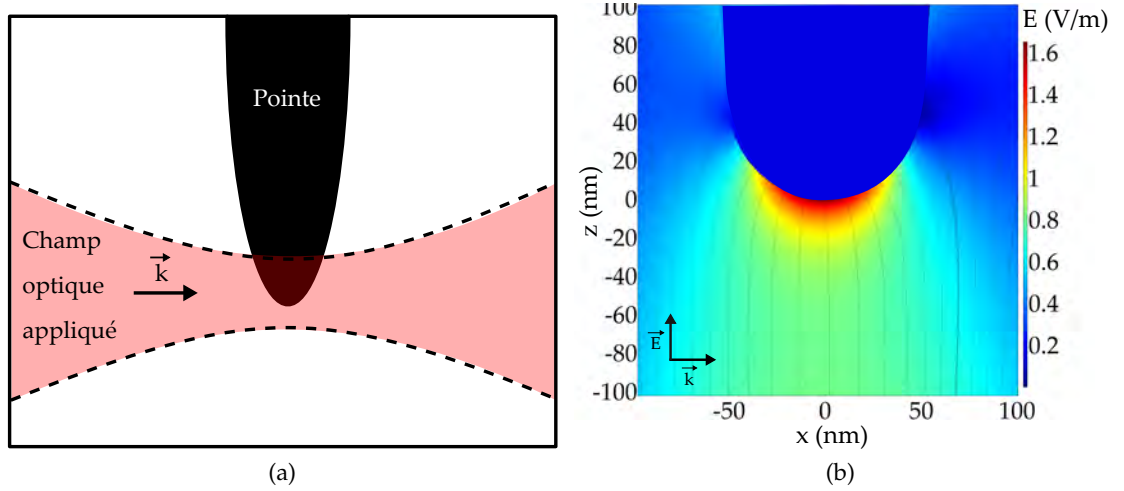


FIGURE 3.4 – (a) Schéma de l'arrivée du faisceau laser sur l'apex de la pointe. (b) Calcul numérique des lignes de champ présentes aux abords de l'apex de la pointe illuminée par un champ laser de polarisation parallèle à l'axe de la pointe.

Dans notre simulation, nous résolvons l'équation de propagation du champ électrique dans le domaine fréquentiel. Le champ  $E$  est considéré comme un champ gaussien. L'équation à résoudre est :

$$\vec{\nabla} \times \frac{1}{\mu_r} \vec{\nabla} \times \vec{E} - k_0^2 \epsilon_{r,gen}(\omega_0) \vec{E} = \vec{0} \quad (3.1)$$

avec  $\mu_r = 1$  la perméabilité relative du milieu,  $k_0 = 2\pi/\lambda_0$  le vecteur d'onde de  $E$  dans le vide et  $\epsilon_{r,gen}(\omega_0)$  la permittivité relative généralisée du matériau trouvée dans la littérature, et contenant le conductivité du matériau.

Notre étude n'étant pas résolue en temps, elle se fait pour une pulsation  $\omega_0$  et une phase  $\phi$  particulière du faisceau laser. La phase initiale  $\phi = 0^\circ$  est choisie comme la phase pour laquelle le champ à l'apex de la pointe, i.e. pour  $z = 0$ , est maximal en l'absence de celle-ci. Le faisceau du laser est généré sur un des bords du vide à l'aide d'un champ électrique dont la valeur maximale est  $E_{max} = 1$  V/m. Ce faisceau est pris avec une taille à mi-hauteur en champ  $w_G = 2 \mu\text{m}$ . Les propriétés optiques de la pointe de tungstène sont choisies à la longueur d'onde du faisceau laser  $\lambda = 800$  nm. Sa permittivité relative est donc  $\epsilon_{r,gen}(\omega_0) = 6.0657 + i \times 19.707$  [ORDAL et al. (1988)]. La pointe est prise avec un rayon à l'apex  $r = 50$  nm et un angle d'ouverture  $\alpha = 3^\circ$ . La Figure 3.4 présentent un schéma du champ optique laser appliqué sur la pointe ainsi que des lignes de champ présentes à l'apex de la pointe lors du calcul numérique.

Dans les parties suivantes, nous présentons les résultats du calcul de la norme du champ électrique optique à l'apex de cette pointe dans le cas de deux polarisations différentes : la polarisation parallèle à l'axe de la pointe et la polarisation perpendiculaire à l'axe de la pointe.

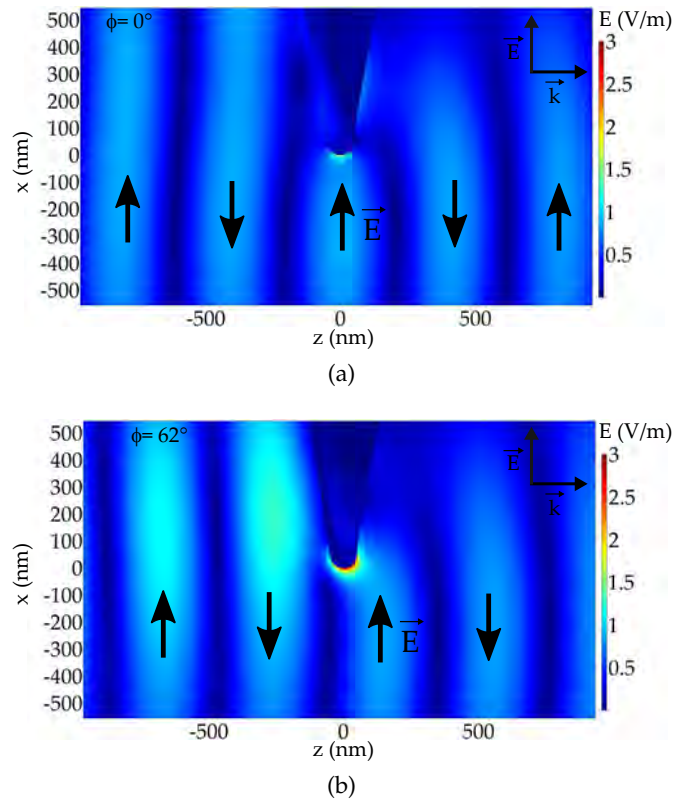


FIGURE 3.5 – Calcul numérique de la norme du champ électrique optique à l'apex d'une nanopointe de tungstène illuminée par un laser de la gauche vers la droite. Le champ électrique correspondant au faisceau laser est pris avec une valeur maximale de  $1V/m$ . (a) Calcul pour la phase  $\phi = \phi_{min} = 0^\circ$  correspond à un champ électrique dirigé vers le haut avec pour norme sa valeur maximale. (b) Calcul pour la phase  $\phi = \phi_{min} + 62^\circ$  correspond au maximum d'amplification du champ au bout de la pointe.

#### 3.1.4.1 Polarisation parallèle à l'axe de la pointe

Le calcul de la norme du champ électrique optique à l'apex d'une nanopointe de tungstène illuminé par un laser a été effectué pour une polarisation du faisceau laser parallèle à l'axe de la pointe. A chaque itération, il est possible de changer la phase  $\phi$  du faisceau laser qui correspond à faire varier la position du cycle optique dans l'espace. La Figure 3.5a présente le résultat du calcul numérique dans le cas  $\phi = 0^\circ$ . Dans cette figure, le faisceau laser est dirigé de la gauche vers la droite, selon la direction de  $\vec{k}$ . Nous rappelons que le champ laser est pris avec une valeur maximale  $E_{max} = 1V/m$ . En décalant la phase  $\phi$ , il est possible de trouver le cas pour lequel l'amplification du champ au bout de la pointe est maximale au cours du cycle optique, Figure 3.5b. On remarque que le champ électrique calculé maximal est obtenu pour une phase  $\phi = 62^\circ$  avec un facteur d'amplification  $\xi \sim 3$  (donc  $\sim 9$  en intensité).

Pour la suite des calculs, la surface de la pointe est représentée afin de faciliter la vision du champ à son apex. La Figure 3.6 représente les résultats du calcul numérique pour différentes valeurs de la phase  $\phi$ . Ces figures nous permettent de comprendre l'évolution du facteur d'amplification au cours du cycle optique. Comme vu sur la



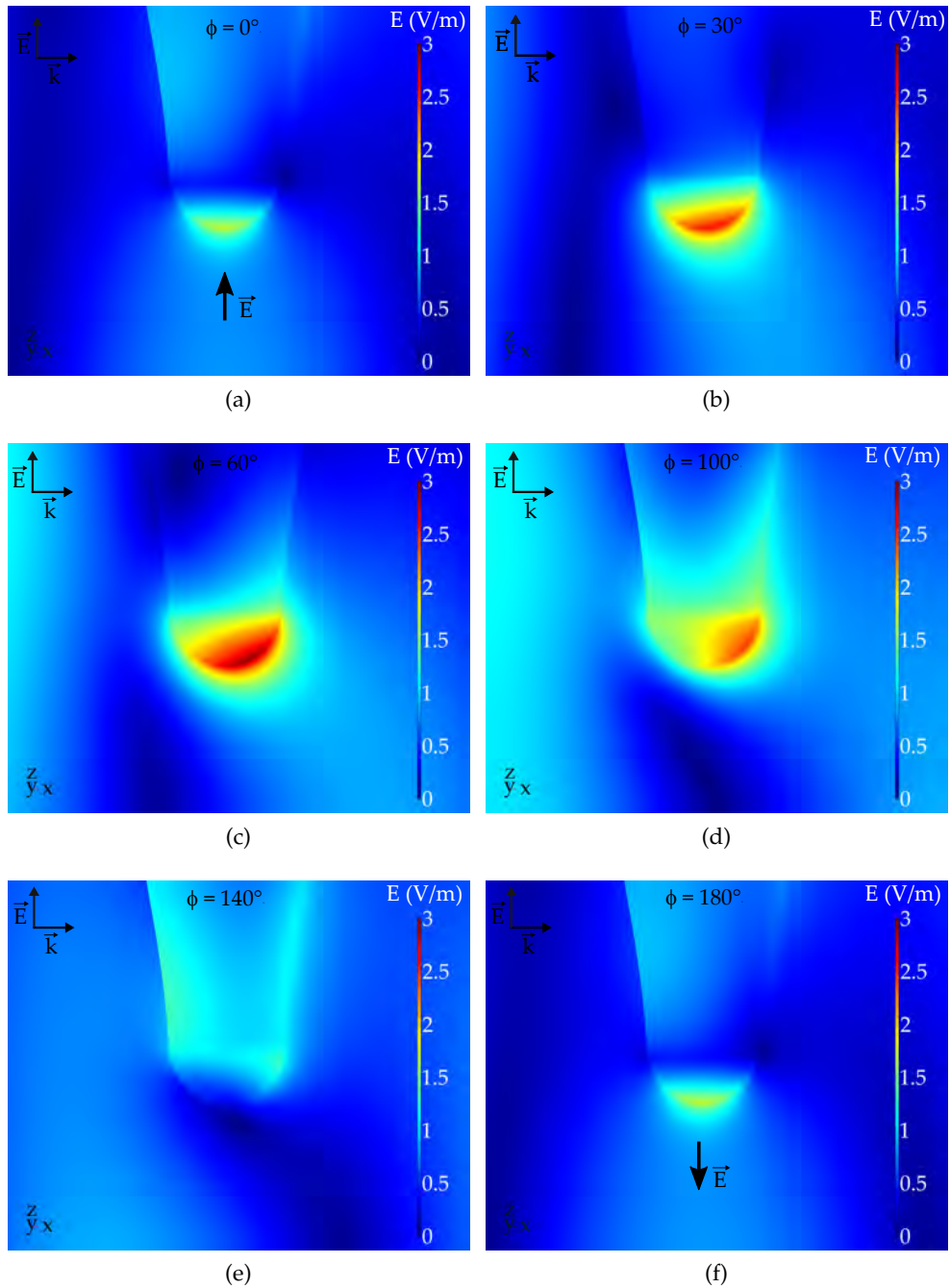


FIGURE 3.6 – Calcul numérique de la norme du champ électrique optique à l’apex d’une nanopointe de tungstène illuminée par un laser polarisé parallèlement à l’axe optique. Le champ électrique correspondant au faisceau laser possède une valeur maximale de  $1V/m$ . La phase correspondant à une disposition spatiale du cycle optique est prise telle que  $\phi = 0^\circ$  (a),  $\phi = 30^\circ$  (b),  $\phi = 60^\circ$  (c),  $\phi = 100^\circ$  (d),  $\phi = 140^\circ$  (e) et  $\phi = 180^\circ$  (f). Les cas (a) et (f) montrent des coefficients d’amplification égaux mais représentent des cas où la polarisation du champ est inversée. C’est le sens de cette polarisation qui va, dans un cas, permettre l’émission d’électrons (a) ou l’en empêcher dans l’autre (f).

Figure 3.5b, le maximum d'amplification a lieu pour une phase  $\phi \sim 60^\circ$ . On remarque aussi que l'amplification du champ optique est la même pour deux phases séparées de  $180^\circ$ . La différence vient du sens de la polarisation du champ qui dans un cas (champ orienté vers l'intérieur de la pointe, Figure 3.6a) va permettre l'émission des électrons et dans l'autre cas (champ orienté vers l'extérieur de la pointe, Figure 3.6f) l'en empêcher.

En plus de la valeur du coefficient d'amplification du champ, ces simulations nous permettent d'évaluer la forme de l'amplification à l'apex de la pointe. Dans le cas d'une polarisation verticale du champ, la zone d'amplification se caractérise par un lobe non-symétrique par rapport à l'axe de la pointe. Ce lobe se situe du côté opposé à l'arrivée du faisceau laser. Ce résultat sera confirmé par des mesures de cartographies expérimentales de l'émission des électrons.

#### 3.1.4.2 Polarisation perpendiculaire à l'axe de la pointe

Dans cette partie, nous reproduisons l'étude faite pour la polarisation parallèle à l'axe de la pointe pour une polarisation perpendiculaire à l'axe de la pointe. Pour la suite, nous parlerons de polarisation respectivement verticale et horizontale. La Figure 3.7a présente le résultat de l'étude en gardant le même point de vue que pour l'étude en polarisation verticale. Sur cette image, on remarque qu'il est difficile d'apercevoir l'amplification du champ pour une polarisation horizontale. En changeant notre axe de vue pour se mettre dans l'axe de propagation du laser, on parvient à apercevoir cette amplification plus aisément (Figure 3.7b).

L'amplification du champ dans le cas d'une polarisation du faisceau laser horizontale se caractérise par deux lobes d'amplification sur les côtés de la pointe par rapport à l'arrivée du laser. Ces deux lobes ne sont cependant pas identiques. En effet, ces simulations numériques ne montrent que la norme du champ électrique et laissent de côté volontairement la direction de celui-ci. Sur la polarisation horizontale, les deux lobes de l'amplification sont en fait opposés pour n'importe quel temps  $t$ . En fonction du moment durant le cycle optique, la direction du champ va s'inverser pour chacun des deux lobes.

Pour la suite des calculs, la pointe est modélisée en surface afin de faciliter la vision du champ à son apex. La Figure 3.8 présente les résultats du calcul numérique pour différentes phases du cycle optique ( $\xi = 3$  dans le cas maximal). De la même façon que pour la polarisation verticale, la valeur maximale de la norme est la même pour deux phases du cycle opposées (i.e. séparées de  $180^\circ$ ). Comme expliqué ci-dessus, la direction du champ est opposé pour les deux lobes de l'amplification. Nous avons schématisé cet effet sur la Figure 3.8a et la Figure 3.8f.

Sur les calculs de champ optique à l'apex de la pointe pour la polarisation verticale, nous avons remarqué que le lobe d'amplification du champ ne se plaçait pas directement en-dessous de l'apex mais légèrement à l'arrière de celui-ci par rapport à l'arrivée du laser (Figure 3.6c). Nous avons voulu voir si ce phénomène était identique pour une polarisation horizontale. Pour cela, nous avons repris des images du calcul numérique en se plaçant perpendiculaire au faisceau laser (même point de vue que

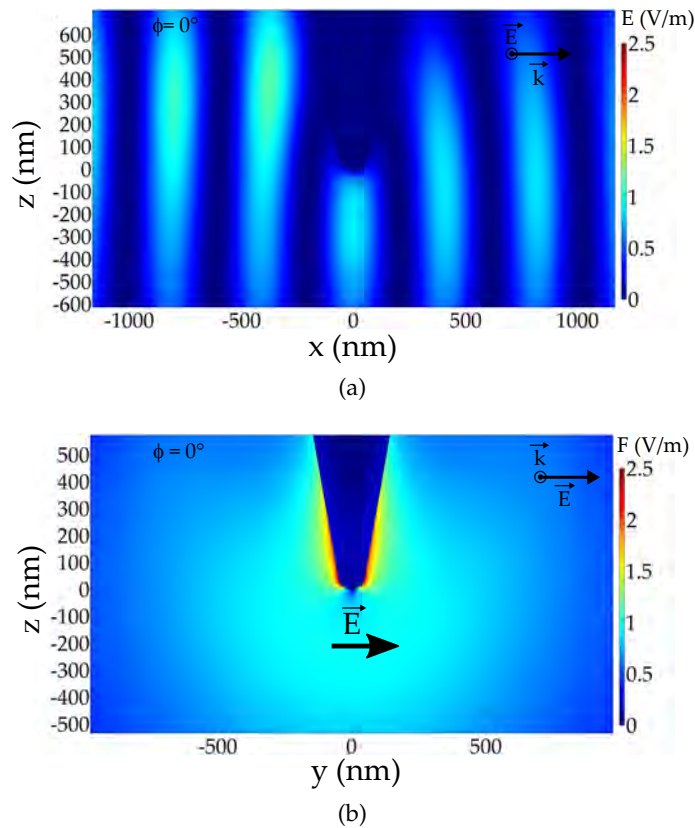


FIGURE 3.7 – Calcul numérique de la norme du champ électrique optique à l'apex d'une nanopointe de tungstène illuminée par un laser. La polarisation du faisceau laser est prise perpendiculaire à l'axe de la pointe. Le champ électrique correspondant au faisceau laser possède une valeur maximale de  $1\text{ V/m}$ . (a) Image prise dans le plan de propagation du faisceau laser. Le laser va de la gauche vers la droite. Sur ce plan là, l'amplification du champ laser sur l'apex de la pointe n'est pas visible. (b) Image prise dans le plan perpendiculaire au plan de propagation du faisceau laser. Le laser va de l'avant vers l'arrière. On remarque une amplification du champ laser à l'apex caractérisée par 2 lobes d'amplification sur les côtés de la pointe.

pour le cas de la polarisation verticale). Les Figures 3.9a et 3.9b présentent les résultats pour deux cas du cycle optique. La Figure 3.9a montre le cas où la phase  $\phi = 10^\circ$  ce qui correspond à l'amplification maximale du champ électrique. La Figure 3.9b montre le cas où la phase est  $\phi = 40^\circ$  ce qui correspond à une amplification plus faible du champ à l'apex. Sur les deux images, le laser se propage selon la direction  $k$ . On remarque que le lobe d'amplification dans les deux cas se situe sensiblement vers l'arrière de la pointe par rapport à l'arrivée du laser.

Comme pour le cas de la polarisation verticale, l'amplification du champ laser à l'apex de la pointe se situe à l'arrière de la pointe par rapport à l'arrivée du laser. Pour la suite, ces calculs numériques vont être comparés à des résultats expérimentaux de cartographies de l'émission des électrons. Nous verrons que la zone d'amplification du champ à l'apex de ce type de nanopointe peut être directement reliée à la zone d'arrivée des électrons sur le détecteur.

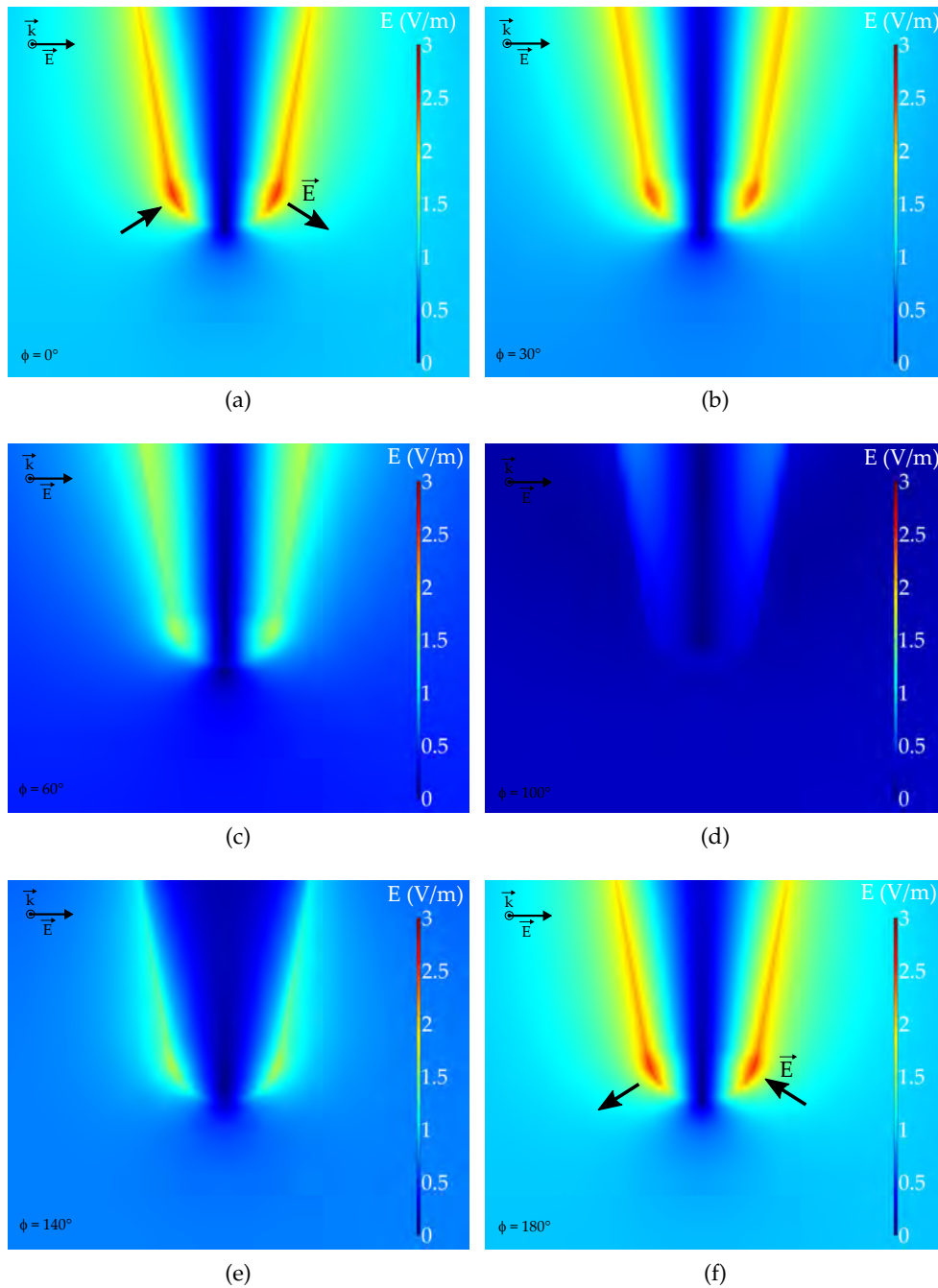


FIGURE 3.8 – Calcul numérique de la norme du champ électrique optique à l'apex d'une nanopointe de tungstène illuminée par un laser polarisé perpendiculairement à l'axe optique. Le champ électrique correspondant au faisceau laser possède une valeur maximale de  $1V/m$ . La polarisation est prise perpendiculaire à l'axe de la pointe. La phase correspondant à une disposition spatiale du cycle optique est prise telle que  $\phi = 0^\circ$  (a),  $\phi = 30^\circ$  (b),  $\phi = 60^\circ$  (c),  $\phi = 100^\circ$  (d),  $\phi = 140^\circ$  (e) et  $\phi = 180^\circ$  (f). Les cas (a) et (f) montrent des coefficients d'amplification égaux mais représentent des cas où la polarisation du champ est inversée. C'est le sens de cette polarisation qui va, dans un cas, permettre l'émission d'électrons par le lobe de gauche (a) ou dans l'autre cas par le lobe de droite (f).

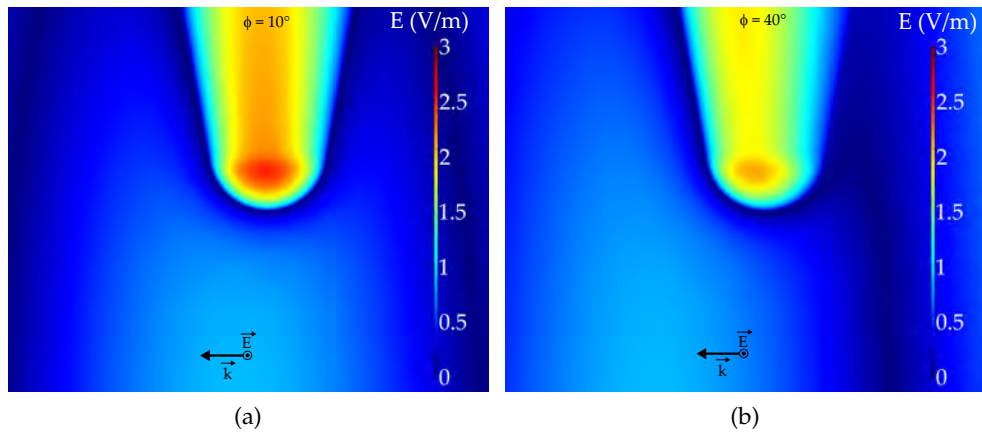


FIGURE 3.9 – Calcul numérique de la norme du champ électrique optique à l’apex d’une nanopointe de tungstène illuminée par un laser. La polarisation du faisceau laser est prise perpendiculaire à l’axe de la pointe. Les images sont coupées selon le plan de propagation du faisceau laser. Ces deux images montrent que les lobes d’amplification du champ électrique pour une polarisation horizontale sont à l’arrière de la pointe par rapport à l’arrivée du laser comme dans le cas de la polarisation verticale.

### 3.1.4.3 Lien avec les mécanismes d’émission dans le cas d’un laser femtoseconde

En appliquant un champ électrique laser femtoseconde à l’apex d’une nanopointe, il est possible d’émettre des électrons d’au moins deux manières différentes. Ces mécanismes, décrits dans la partie 1.1.4, sont l’émission multiphotonique et l’émission de champ optique. La distinction entre les deux se fait en fonction de la puissance du laser, l’émission de champ optique ayant lieu pour des puissances laser plus importantes. Il est important de rappeler que l’émission multiphotonique est un effet dépendant de l’intensité lumineuse contrairement à l’émission de champ optique qui est un effet du champ électrique (et dépend donc de sa phase).

Dans le cas de la polarisation verticale, nous avons montré que le champ était fortement amplifié à l’arrière de la pointe par rapport à l’arrivée du laser. Au cours du cycle optique, la direction du champ alternait entre dirigée vers la pointe ou vers l’extérieur. Dans le cas de l’émission multiphotonique, la direction du champ n’a aucune influence étant donné qu’elle ne dépend que de l’intensité lumineuse. Celle-ci sera donc présente durant toute la durée de l’impulsion. La direction du champ durant l’impulsion aura par contre une influence sur l’émission de champ optique. Celle-ci sera maximale quand le champ est dirigé vers la pointe et nulle quand le champ est dirigé vers l’extérieur de la pointe.

Dans le cas de la polarisation horizontale, nous avons montré que les deux lobes d’amplification du champ possédaient des directions du champ opposées à tout moment. L’émission, dans le cas de l’émission de champ optique, se fera donc par un côté puis par l’autre et ainsi de suite. Cet aspect ne pourra pas être vu sur les cartes d’émission car notre système de détection n’est pas résolu à l’échelle de la période optique. Les cartes d’émission de la partie suivante sont des moyennes du courant

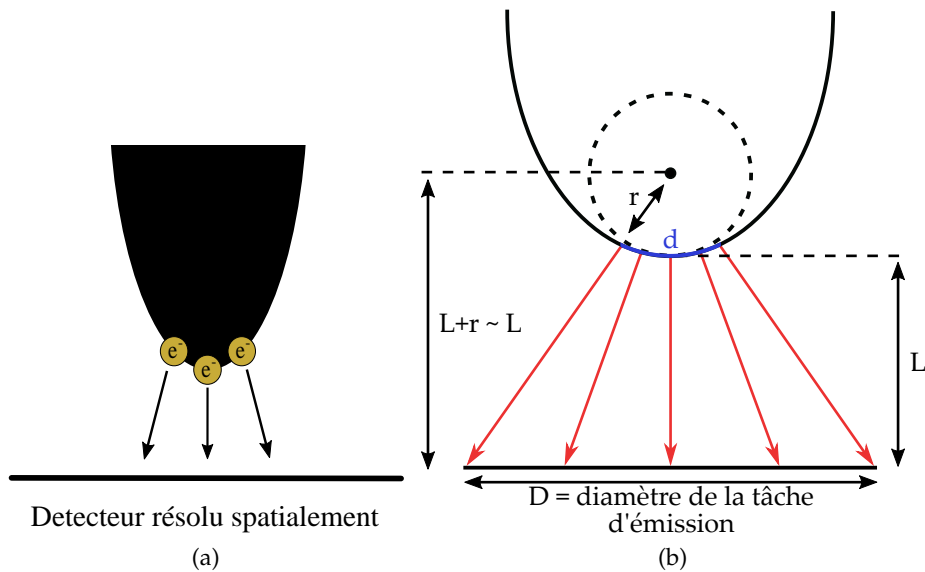


FIGURE 3.10 – (a) Schéma de la direction d'émission des électrons. (b) Schéma de la méthode de mesure de la zone d'émission des électrons  $d$  à l'apex de la pointe.

d'émission sur plusieurs millisecondes (bien au-delà de la période optique au sein d'une impulsion).

Un moyen d'observer les effets temporels au sein d'une impulsion de l'émission de champ optique pourrait être d'utiliser une impulsion très courtes ( $< 5$  fs). Ces impulsions ont la particularité d'avoir un très faible nombre de périodes optiques. En utilisant un contrôle sur la phase du champ dans l'enveloppe (CEP), il serait possible d'avoir une série d'impulsions identiques qui permettraient par exemple de ne faire émettre qu'un seul des deux lobes dans le cas de la polarisation perpendiculaire à l'axe de la pointe. Cet aspect de l'amplification du champ optique à l'apex d'une nanopointe pourrait permettre d'avoir une source d'électrons contrôlée spatialement par un effet optique.

## 3.2 CARTOGRAPHIES DE L'ÉMISSION DES ÉLECTRONS

### 3.2.1 Cartographie sous émission statique

Des translations motorisées placées sous le détecteur de notre dispositif expérimental permettent d'effectuer des cartographies de l'émission des électrons émis sur une surface de  $\sim 20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ . Le détecteur est déplacé en spirale et un trou de taille variable (0.2 mm, 0.7 mm ou 3 mm) permet de sélectionner une partie des électrons émis. Ce dispositif reprend le même principe utilisé en FEM (Field Electron Microscopy). La mesure de ces cartes permet d'effectuer un lien direct entre la zone d'émission des électrons et la zone d'amplification du champ local (Figure 3.10a).

La Figure 3.11 présente une cartographie de l'émission des électrons d'une nanopointe de tungstène sous une tension statique appliquée de 550 V. La tâche d'émission

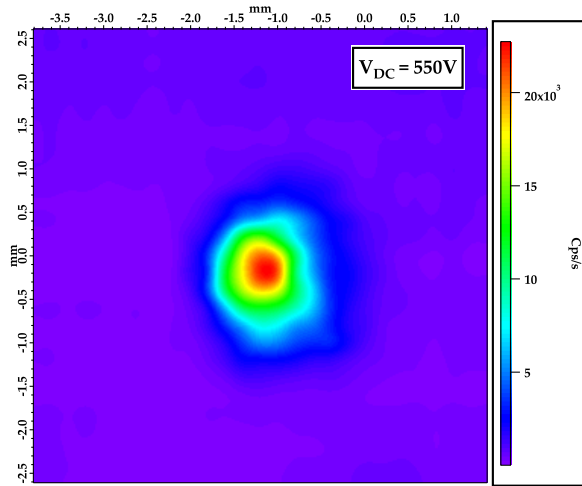


FIGURE 3.11 – Cartographie de l'émission des électrons d'une pointe de tungstène sous une tension statique appliquée de 550 V. Le profil spatial de cette émission est directement relié au calcul numérique de l'amplification du champ électrique statique au bout de la pointe.

présente un profil spatial circulaire avec un diamètre  $D \sim 1.3$  mm. Ce diamètre est variable en fonction des pointes (état de surface, rayon à l'apex...). Il est possible de relier directement la tâche d'émission des électrons sur la cartographie à la zone d'amplification du champ à l'apex calculée numériquement (Figure 3.10b). Pour ce calcul, on considère la zone d'amplification du champ à l'apex  $d$  comme une droite. En prenant le rayon de la pointe  $r = 50$  nm et la distance pointe/détecteur  $L = 5$  mm, on peut poser :

$$d = \frac{r \times D}{L} \sim 19 \text{ nm} \quad (3.2)$$

Ce calcul est valable car le champ électrique est très fort à l'apex de la pointe et décroît très rapidement en s'éloignant. On considère alors que les électrons suivent une trajectoire rectiligne en sortant de la pointe. Il sera possible de comparer ce résultat à celui pour une nanopointe de diamant.

Cette partie nous permet de valider l'hypothèse selon laquelle le profil spatial de l'émission est directement relié au profil du champ local électrique calculé numériquement dans la partie précédente (Figure 3.3). Ces résultats seront confirmés dans la suite avec les mesures sur l'émission laser.

### 3.2.2 Cartographie sous émission laser

Les mesures de cartographies des électrons émis par une nanopointe de tungstène sous champ laser vont nous permettre de valider les calculs théoriques de norme du champ électrique à l'apex. Des mesures de cartographies ont été faites pour différentes pointes de tungstène en utilisant deux lasers différents. Le premier est un oscillateur laser femtoseconde 800 nm (20 fs) avec un taux de répétition de 62 MHz. Le deuxième est un laser Tangerine femtoseconde 1030 nm (300 fs) avec un taux de répétition va-

riable jusqu'à 2 MHz. Ces mesures ont été faites pour différentes valeurs de taux de répétition ainsi que de puissance. Ces changements ont montré à chaque itération les mêmes résultats. Il est important de préciser que même sous champ optique laser, une tension statique reste appliquée sur la pointe afin de faciliter le déplacement des électrons jusqu'au détecteur en leur fournissant une légère énergie cinétique. Cette tension, de l'ordre de 50 V, est prise très en dessous du seuil statique de la pointe pour ne pas rajouter une émission de champ à froid entre chaque pulse. Les résultats ne dépendent ni du laser utilisé ni de la puissance moyenne, nous ne présentons les résultats que pour un seul cas (puissance, longueur d'onde et durée temporelle de l'impulsion fixées).

La [Figure 3.12a](#) et la [Figure 3.12c](#) présentent des cartographies de l'émission des électrons de deux lasers différents dans le cas où la polarisation est parallèle à l'axe de la pointe. On note la présence d'une tâche d'émission uniforme et circulaire. Cette tâche confirme le calcul numérique de la norme du champ optique à l'apex de la pointe qui représentait un lobe de la même forme. On remarque aussi que la tâche d'émission laser ( $\sim 5$  mm de diamètre) est plus grande que celle en statique ( $\sim 1$  mm de diamètre). Cet effet, qui a été vu sur plusieurs pointes, s'explique par le fait que la zone d'émission pour la photoémission est plus importante. L'effet multiphotonique est en effet un effet beaucoup moins non-linéaire que FN.

La [Figure 3.12b](#) et la [Figure 3.12d](#) présentent les mêmes mesures dans le cas d'une polarisation perpendiculaire à l'axe de la pointe. Dans ce cas, on note la présence de deux tâches d'émission sur le détecteur. En reprenant les calculs de la norme du champ optique à l'apex de la pointe, on remarque que ces deux tâches correspondent aux deux lobes du champ présent dans le calcul.

Ces deux cartographies associées aux calculs de la norme du champ optique confirment le fait que la zone d'arrivée des électrons sur le détecteur (5 mm en dessous de la pointe) correspond à la zone d'amplification du champ à l'apex de la pointe. À l'aide des électrons émis, on peut donc directement remonter à leur zone d'émission.

### 3.3 TRACÉ DE FOWLER-NORDHEIM

Quand une nanopointe de tungstène est placée à l'intérieur du dispositif expérimental, il est possible de caractériser l'évolution de son rayon à l'apex sans la sortir du dispositif expérimental. Cette caractérisation, utilisant l'équation de Fowler-Nordheim (FN) nous permet de suivre les dégâts que peuvent engendrer un courant d'émission trop puissant ou une illumination laser trop importante sur le bout de la pointe.

L'étude de l'émission de champ à froid de la pointe permet de connaître l'évolution du rayon à l'apex entre différentes mesures. En mesurant le courant d'émission pour différentes valeurs de tension appliquée, on peut remonter à la valeur du rayon en utilisant l'équation de FN. Cette équation décrit le courant d'un échantillon en fonction du champ local  $F$  appliqué dessus. En utilisant le facteur d'amplification du champ



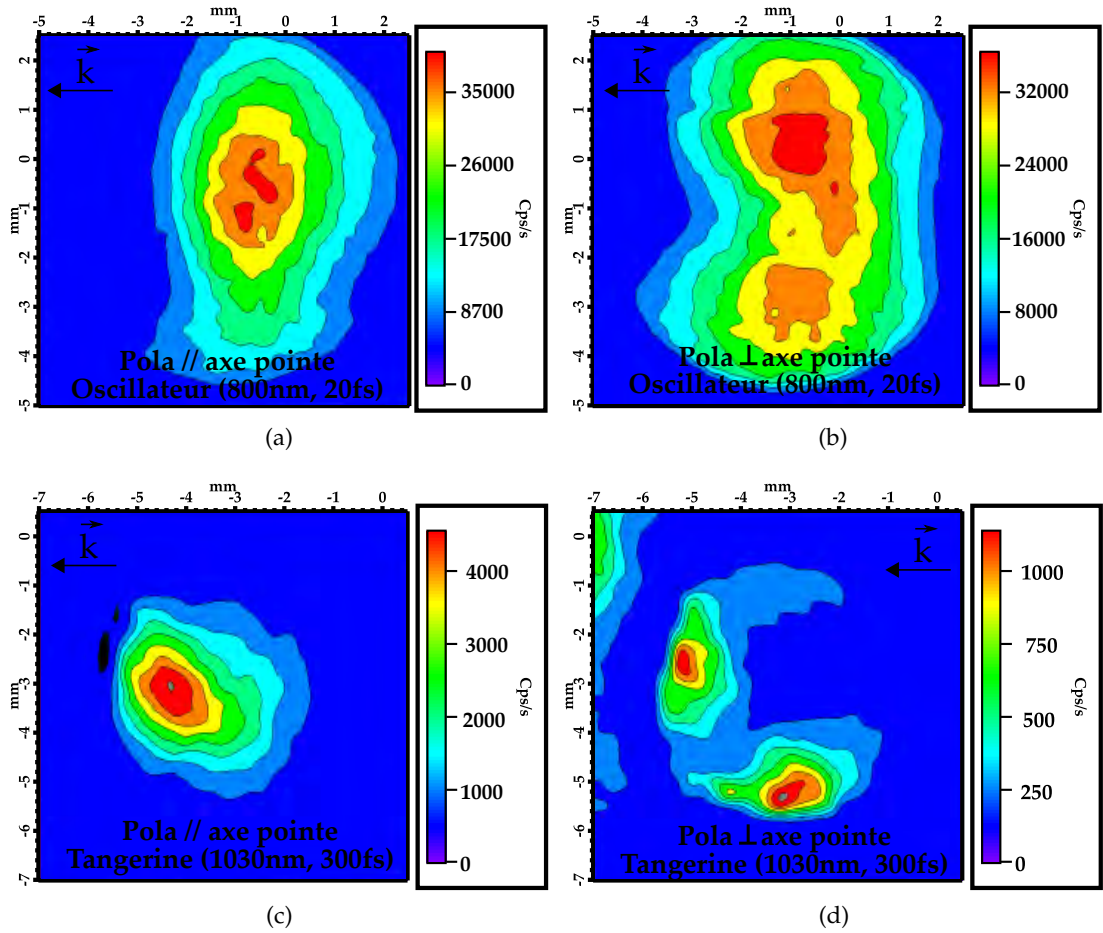


FIGURE 3.12 – Cartographies de la photoémission d’une nanopointe de tungstène pour deux lasers et deux polarisations différentes. On remarque, que pour les deux lasers, la zone de détection est un lobe unique en polarisation parallèle à l’axe de la pointe ((a) et (c)). En polarisation perpendiculaire à l’axe de la pointe ((b) et (d)), on observe la présence de deux lobes de détection. Ces résultats expérimentaux sont en accord avec les calculs numériques de l’amplification du champ optique dans le cas des deux polarisations.

local  $\beta$  tel que  $F = \beta V_{DC}$  avec  $V_{DC}$  la tension statique appliquée sur la pointe, on peut réécrire l’équation de FN, [Équation 1.6](#) :

$$J(V) \propto \beta^2 V_{DC}^2 \cdot \exp\left(\frac{\alpha}{\beta V_{DC}}\right) \quad (3.3)$$

avec  $\alpha$  une pseudo constante prenant en compte l’effet de la charge miroir et dépendant du travail de sortie du tungstène (310) et du rayon de la pointe à l’apex. En prenant le logarithme népérien des deux côtés de l’équation, on peut écrire :

$$\ln\left(\frac{J}{V_{DC}^2}\right) = \frac{\alpha}{\beta} \cdot \frac{1}{V_{DC}} + \text{constante} \quad (3.4)$$

La connaissance du ratio  $\alpha/\beta$  nous permet de remonter au rayon de la pointe à l'apex  $r$  en remplaçant  $\beta$  par  $1/kr$  avec  $k$  le facteur géométrique. Le coefficient  $\alpha$  peut être calculé en utilisant les caractéristiques de la pointe tel que :

$$\alpha = \frac{4\sqrt{2m_e}}{3\hbar e} \cdot \phi^{3/2} \cdot \nu(w) = \frac{12053}{kr} = 3.91 \times 10^{10} \text{ V/m} \quad (3.5)$$

avec  $\phi \sim 4.35 \text{ eV}$  le travail de sortie du tungstène (310) et  $\nu(w) = 0.6$  [HOMMELHOFF et al. (2006); FORBES (2008)] une fonction prenant en compte l'effet d'image miroir et discuté dans la partie 1.1.3.1. Le calcul est effectué ici pour une pointe de tungstène particulière mais les résultats sont similaires pour toutes les pointes.

La Figure 3.13 présente les données de courant d'émission mesurées au MCPs en fonction de la tension appliquée sur la pointe en coordonnées FN. Le ratio  $\alpha/\beta$  représente la pente de la droite modélisée à partir des données. Sa valeur est inscrite directement sur le graphe. La connaissance de ce ratio nous permet donc de remonter au rayon de la pointe  $r$  à l'apex avec  $k \sim 5$  et :

$$r = \frac{\alpha}{\beta} \cdot \frac{1}{\alpha k} = 61 \text{ nm} \quad (3.6)$$

On peut comparer ce rayon calculé avec les images MEB de notre pointe (Figure 3.1). On remarque une différence entre cette valeur de rayon calculé et la valeur du rayon mesuré sur l'image. Plusieurs raisons pourraient expliquer cette différence. La première étant que la pointe a sans doute été arrondie par les premières émissions de courant avant la prise de mesure du FN. D'autres explications viennent des approximations faites durant le calcul notamment sur la valeur de  $k$ . Nous avons vu dans les parties précédentes que cette valeur variait en fonction de la géométrie de la pointe. Enfin, la dernière raison possible vient du manque de précision des images MEB qui pourrait laisser croire à un rayon plus grand qu'il ne l'est vraiment. Cependant, dans toute cette démarche, il est important de noter que nous nous intéressons surtout à la différence relative de cette valeur entre plusieurs série de mesures différentes. C'est cet écart relatif qui nous permet de détecter des dégâts engendrés sur l'échantillon. Ces dégâts pourraient avoir lieu en cas de trop fort courant d'émission ou d'une puissance laser focalisée sur l'apex trop importante. Une tracé FN est donc effectué régulièrement entre les séries de mesures.

### 3.4 ÉMISSION MULTIPHOTONIQUE AU-DESSUS DU SEUIL

Dans cette partie, nous étudions l'émission de nanopointes de tungstène soumise à un champ électrique laser à leur apex. Dans notre cas, nous montrerons à partir des spectres des électrons émis que le type d'émission des électrons est multiphotonique. Nous avons vu dans la partie 1.1.4.3 que ce type d'émission possédait une forte dépendance en fonction de la puissance du laser. Nous verrons aussi qu'il est possible de caractériser cette émission par sa dépendance en polarisation.

Il est important de signaler que pour toutes ces expériences, une tension statique  $V_{DC} < 100V$  reste appliquée sur la pointe afin de faciliter l'arrivée des électrons au

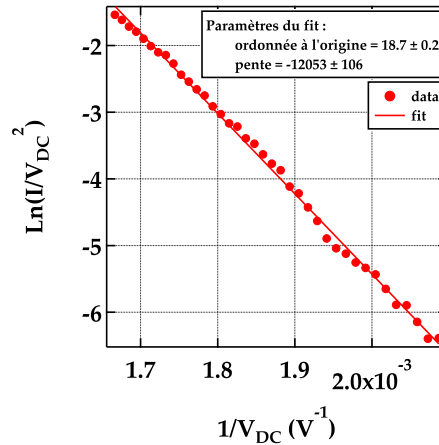


FIGURE 3.13 – Caractéristique I-V tracée en coordonnées Fowler-Nordheim. Les points et la droite représentent respectivement les données expérimentales et la régression linéaire modélisée. La valeur de la pente de cette droite est indiquée sur le graphe. Elle est utile pour avoir une idée du rayon de la pointe à son apex en temps réel.

niveau du détecteur. Cette tension est prise bien plus faible que la tension de seuil statique pour l'émission de champ à froid afin d'être sûr de n'avoir aucune émission entre deux impulsions.

#### 3.4.1 Dépendance en énergie des impulsions du laser

Dans la partie 1.1.4.3, nous avons montré que le courant d'émission multiphotonique dépendait de l'intensité lumineuse à la puissance  $n$ . Le coefficient  $n$  correspondait à l'ordre d'émission multiphotonique, i.e. le nombre minimal de photons que le système doit absorber pour permettre à un électron de dépasser le travail de sortie. Dans le cas d'une émission où le système absorbe plus que le nombre minimal de photons, le coefficient  $n$  devient la moyenne pondérée de tous les ordres multiphotoniques.

La Figure 3.14a présente la mesure du courant d'émission  $I$  en fonction de l'énergie des impulsions du laser  $E$ . Le laser utilisé est le laser Tangerine (1030 nm, 300 fs). Pour déterminer l'ordre multiphotonique  $n$ , on trace cette courbe en coordonnées logarithmiques (Figure 3.14b) tel que :

$$\ln(I) = n \times \ln(E) + \text{constante} \quad (3.7)$$

La pente de la droite obtenue nous renseigne alors sur l'ordre multiphotonique moyenné. On trouve  $n = 4.37$ . A la longueur d'onde du Tangerine, l'énergie d'un photon est  $E = 1.2 \text{ eV}$ . Pour dépasser le travail de sortie du tungstène sur sa facette de direction (310),  $\phi \sim 4.35 \text{ eV}$ , le système doit absorber au minimum 4 photons. Le résultat obtenu est donc en accord avec la prédiction théorique.

Cette partie nous permet de conclure sur la présence d'un mécanisme d'émission multiphotonique sur les nanopointes de tungstène illuminées par un laser femtose-

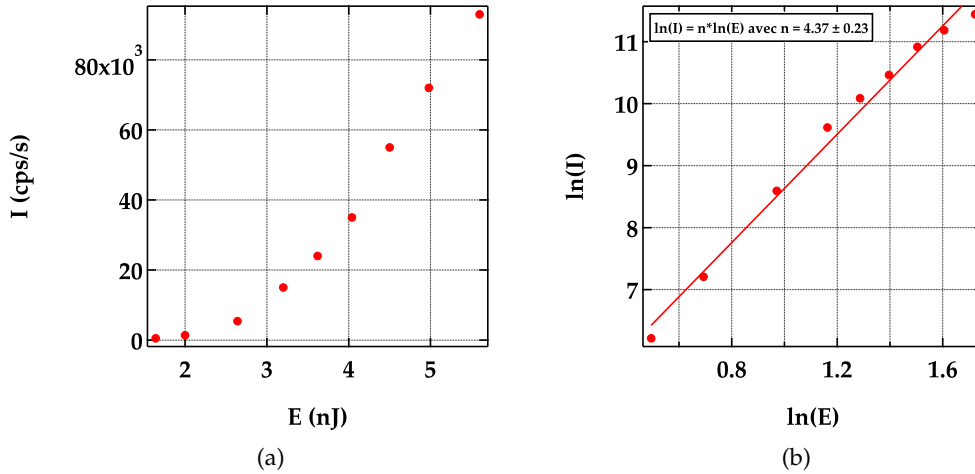


FIGURE 3.14 – (a) Tracé du courant de photoémission en fonction de l'énergie du laser (en coordonnées logarithmiques (b)). Ce dernier tracé permet d'établir un ordre multiphotonique  $n = 4.37$ .

conde. Le tracé de la courbe du courant de photoémission en fonction de l'énergie des impulsions nous a permis d'établir un ordre multiphotonique proche de 4.

### 3.4.2 Dépendance en polarisation du laser

De la même façon que pour l'énergie des impulsions du laser, on peut montrer que le courant de photoémission est fortement dépendant de la polarisation du laser. Cela vient du fait que la photoémission est dépendante de la composante du champ perpendiculaire à la surface [VENUS et al. (1983)]. A l'apex, cela correspond à une polarisation parallèle à l'axe de la pointe. Lorsque la pointe est très bien alignée sur le faisceau laser, l'émission est maximale pour la polarisation parallèle à l'axe de la pointe et nulle pour la polarisation perpendiculaire. Cet aspect de l'émission est un des critères nous permettant de valider l'alignement de la pointe sur le faisceau ou non.

La mesure du courant d'émission en fonction de l'angle  $\theta$  entre l'axe de la pointe et la polarisation du faisceau laser est présentée sur la Figure 3.15. Pour faire cette courbe, nous plaçons le spectromètre à une position où le courant en polarisation horizontale est nul. Cette courbe est tirée de la thèse de Mina BIONTA. La pointe est illuminée par des impulsions de 2.4 nJ (800 nm) à un taux de répétition de 62 MHz. On applique une tension statique  $V_{DC} = 50$  V sur la pointe afin d'accélérer les électrons émis. La polarisation  $\theta = 0^\circ$  correspond à la polarisation parallèle à l'axe optique et donc au cas où le courant d'émission est maximal. Dans cette configuration, le courant d'émission  $I$  est :

$$I \propto \cos^{2n}(\theta) \quad (3.8)$$

avec  $n$  le coefficient d'ordre multiphotonique. Cette formule vient directement de la loi de Malus pour laquelle on intègre la composante non-linéaire de l'émission multiphotonique. En modélisant les données expérimentales par cette équation, on trouve

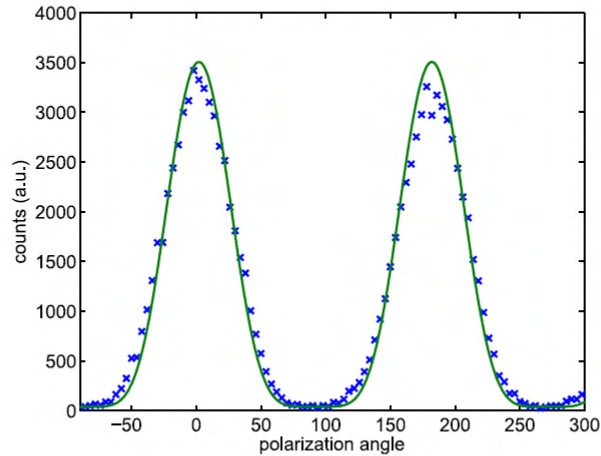


FIGURE 3.15 – Courbe du courant de photoémission en fonction de l’angle  $\theta$  entre l’axe de la pointe et la polarisation du faisceau laser. L’angle  $\theta = 0$  correspond au cas où la polarisation est parallèle à l’axe de la pointe. Les croix bleues représentent les points expérimentaux et la ligne verte est la courbe modélisée par l’équation :  $\cos^{2n}(\theta)$  avec  $n$  l’ordre multiphotonique.

$n = 2.8$ . A 800 nm, l’énergie des photons est  $E = 1.55$  eV. Pour dépasser le travail de sortie du tungstène ( $\phi \sim 4.35$  eV), le système doit absorber au minimum trois photons. Le décalage entre cette valeur et l’ordre multiphotonique que nous avons trouvé peut venir d’une pointe mal nettoyée qui aurait tendance à diminuer le travail de sortie.

Ces deux parties nous ont permis de montrer la présence d’une émission multiphotonique dont l’ordre non-linéaire était en accord avec la longueur d’onde du faisceau laser utilisé. Dans la suite, nous présentons les mesures de spectre d’émission qui permettront de voir la présence des ordres multiphotoniques supérieurs.

### 3.4.3 Spectre de photoémission

La Figure ?? présente la mesure du spectre d’émission des électrons pour une nanopointe illuminée à l’apex par un laser femtoseconde. Lors de cette mesure, une tension statique  $V_{DC} = 50$  V a été appliquée sur la pointe afin d’accélérer les électrons émis. Les impulsions laser ont été prises avec une énergie de 10 nJ (1030 nm) pour un taux de répétition de 1 MHz. L’énergie des impulsions a été choisie afin de garantir l’émission de moins d’un électron par impulsion, ceci dans le but d’empêcher toute interaction coulombienne entre les électrons. Le spectre a été effectué en faisant varier la tension de retard autour de  $V_{DC}$  et en mesurant le courant d’émission pour chaque pas. La résolution des pas est de 0.05 eV avec un temps de mesure de 500 ms. Cette mesure nous permet d’acquérir un spectre intégré de l’émission. Le spectre de photoémission s’obtient en dérivant le spectre intégré. Nous appliquons aussi un lissage Savitsky-Golay afin d’apercevoir plus aisément les pics multiphotoniques.

Le spectre de photoémission montre clairement la présence de pics signature d’une émission multiphotonique. Comme observé par KRÜGER et al., ces pics (*ATP peaks*)

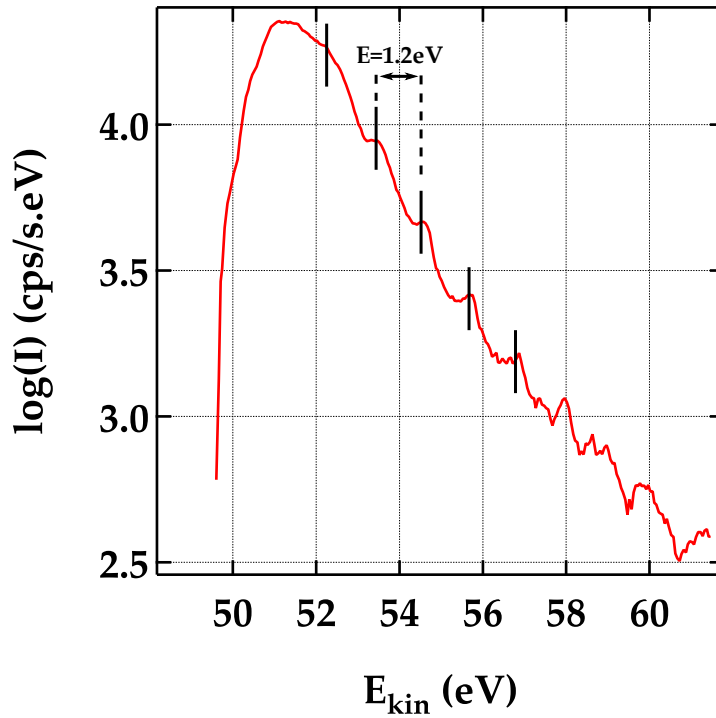


FIGURE 3.16 – Spectre de photoémission des électrons émis par un faisceau laser à 1030 nm. On remarque la présence de pics multiphotoniques séparés de l'énergie d'un photon  $E = 1.2\text{ eV}$ .

sont séparés de l'énergie d'un photon de notre laser ( $E = 1.2\text{ eV}$  à 1030 nm). A cette longueur d'onde, le système requiert au minimum quatre photons afin de permettre à un électron de dépasser le travail de sortie. Le premier pic correspond donc à un ordre photonique  $n = 4$ . Sur le spectre, il est possible de remonter à l'ordre 9.

#### 3.4.4 Émission entre les impulsions

Nous proposons dans cette partie d'étudier l'émission d'électrons d'une nanopointe de tungstène entre deux impulsions lasers lorsqu'une tension statique supérieure à son seuil d'émission est appliquée sur elle. Cette étude permettra dans la suite du manuscrit de la comparer au cas similaire pour les nanopointes de diamant. Une porte de détection a été utilisée afin de permettre à notre détecteur de mesurer le courant d'émission soit pendant l'arrivée de l'impulsion laser (Gate 1) soit entre deux impulsions consécutives (Gate 2). La durée de la porte de détection est prise égale à 230 ns afin d'y inclure les rebonds du signal électrique en sortie des MCP. La durée de la porte 2 dépend du taux de répétition du laser. Ici nous prenons le taux de répétition égal à 50 kHz correspondant à un temps entre impulsions de 20  $\mu\text{s}$ . La [Figure 3.17a](#) présente un schéma récapitulatif de la méthode de mesure.

La [Figure 3.18a](#) et la [Figure 3.18b](#) présentent respectivement les cartographie de l'émission des électrons pour G1 et G2 avec une tension statique  $V_{DC} = 400\text{ V}$  et une énergie par impulsion  $E = 4\text{ nJ}$ . La tension est choisie inférieure au seuil d'émission

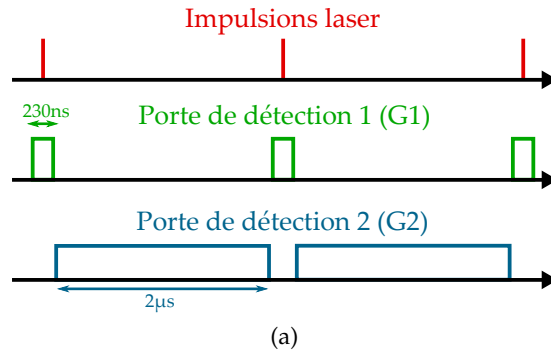


FIGURE 3.17 – Schéma de la méthode de mesure du courant au niveau de l'impulsion laser et entre les impulsions lasers. Une porte de détection de 230 ns est placée sur le discriminateur de notre système de détection au niveau de l'arrivée de l'impulsion laser afin de ne mesurer que les électrons de la photoémission lors de l'impulsion. Une deuxième porte placée entre les impulsions permet de ne mesurer que l'émission statique entre les impulsions.

de champ à froid pour cette pointe. L'émission est donc complètement éteinte entre deux impulsions, comme on peut s'y attendre. La [Figure 3.18c](#) et à la [Figure 3.18d](#) correspondent respectivement aux mêmes cartographies que les précédentes mais pour une tension prise au-dessus du seuil  $V_{DC} = 600V$ . L'émission pendant l'impulsion laser (G1) présente le même profil spatial (courant plus important dû à la tension). Entre les impulsions, on remarque un courant statique présent à cause de la tension appliquée sur la pointe. Si l'on reproduit la même mesure sans illuminer l'apex de la pointe ([Figure 3.18e](#) et [Figure 3.18f](#)), on remarque cette fois que l'émission statique prend place pour n'importe quelle porte. L'émission statique entre les impulsions avec et sans le laser allumé présente le même profil spatial. Le niveau de courant maximal est différent mais en intégrant les cartes, on remarque que le courant d'émission total est sensiblement le même. L'émission laser n'a donc pas d'effet sur l'émission statique entre les impulsions. Nous verrons dans la suite du manuscrit que ce résultat n'est pas le même pour les pointes de diamant.

### 3.5 CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons présenté les calculs numériques de champ électrique à l'apex de nanopointes de tungstène ainsi que les données expérimentales de l'émission statique et laser de ces nanopointes.

Nous avons calculé numériquement, à partir d'une simulation de notre dispositif expérimental, les coefficients d'amplification statique et optique du champ électrique à l'apex d'une nanopointe de tungstène. Pour les cas avec illumination laser, nous avons montré la forte dépendance du coefficient d'amplification avec la polarisation du faisceau laser. Dans le cas où la polarisation est parallèle à l'axe de la pointe, le coefficient d'amplification se caractérise par un lobe unique d'amplification à l'arrière de la pointe par rapport à l'arrivée du faisceau laser. Dans le cas d'une polarisation perpendiculaire à l'axe de la pointe, il se caractérise par la présence de deux lobes d'amplification de part et d'autre de l'apex pour lesquels la direction du champ est

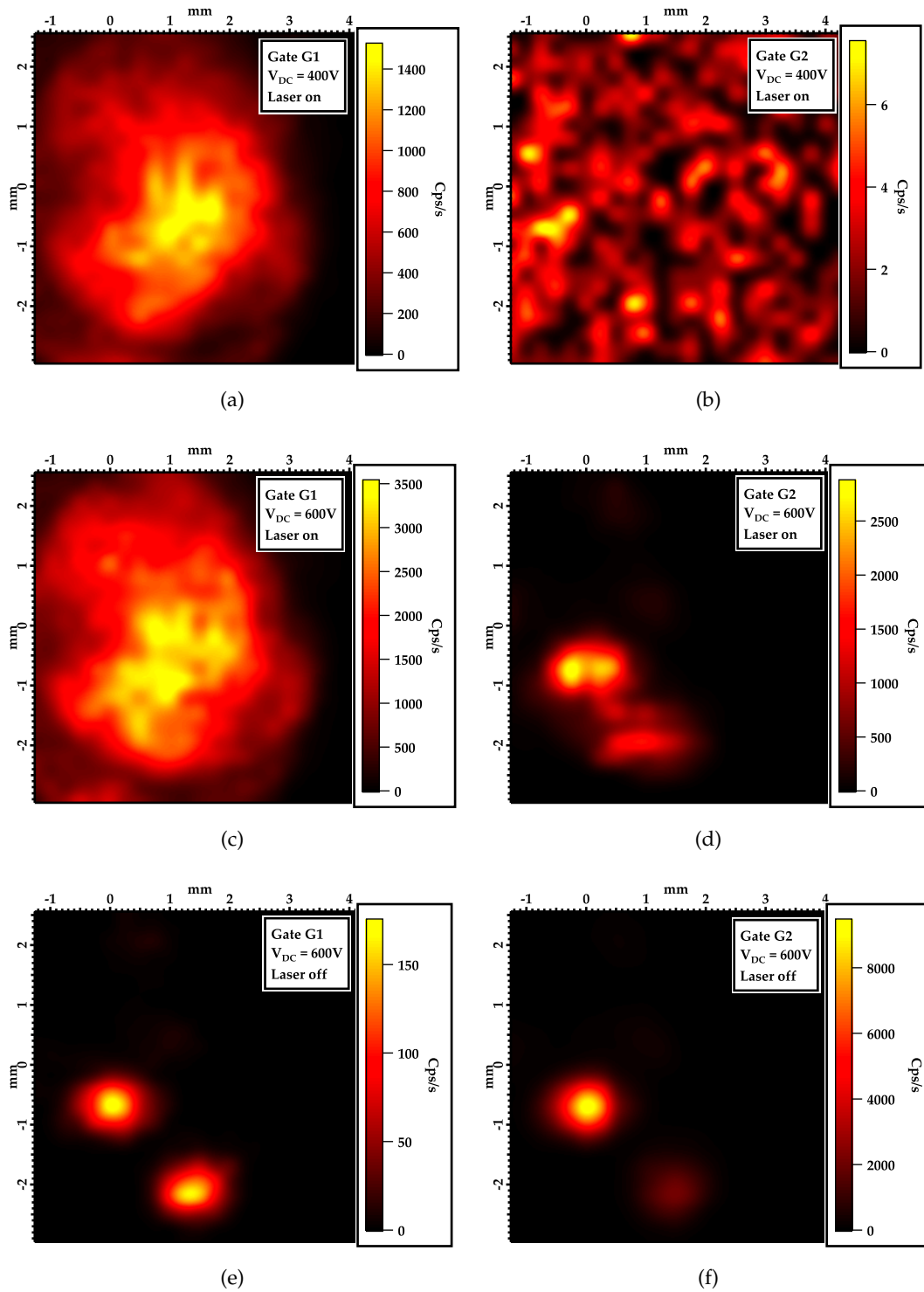


FIGURE 3.18 – Mesure du courant d’émission de champ à froid pendant l’impulsion (G1) ou entre deux impulsions lasers (G2) pour différentes tensions statiques (en-dessous et au-dessus du seuil d’émission statique) avec et sans laser allumé. Pour les figures (a) et (b), la tension statique est prise inférieure à la tension de seuil. On remarque qu’aucune émission statique n’est présente entre les impulsions (G2). Cette même mesure refaite pour une tension supérieure à la tension de seuil, (c) et (d), permet de montrer une émission statique entre les impulsions. On reproduit la même mesure sans aucun laser focalisé sur la pointe, (e) et (f), et l’on remarque que l’émission entre les impulsions avec et sans laser est la même. On conclut donc sur le fait que l’émission entre les impulsions n’est pas affectée par l’émission laser prenant place pendant les impulsions.



opposé.

Les résultats précédents ont été comparés à des cartographies de l'émission des électrons. Nous avons montré que les calculs numériques étaient en accord avec les données expérimentales sur l'émission.

Dans la dernière partie, nous avons présenté les données expérimentales sur l'émission laser de nanopointes de tungstène. Nous avons montré, de trois manières différentes que l'émission était de type multiphotonique avec un ordre de photoémission dépendant de la longueur d'onde du faisceau laser.

Les résultats obtenus sur ces nanopointes de tungstène vont nous servir d'étalon afin de les comparer, dans la suite, aux résultats sur l'émission d'électrons à partir de nanopointes de diamant.

## ÉMISSION DE CHAMP À FROID SUR DES NANOPONTES DE DIAMANT

---

### Sommaire

---

4.1	Précédentes expériences sur ce type de nanopointe de diamant	75
4.2	Résultats de l'émission de champ à froid	76
4.2.1	Émission au bout de la pointe	77
4.2.1.1	Mesure du courant d'émission	77
4.2.1.2	Cartographies d'émission des électrons	78
4.2.2	Courant de conduction le long de la pointe	79
4.2.2.1	Mesure de la chute de tension	79
4.2.2.2	Processus de conduction	80
4.2.3	Cas particulier : pointe sans chute de tension	81
4.3	Modèle électrique simple de l'émission d'électrons des pointes de diamant	82
4.3.1	Modélisation indépendante des mécanismes FN et PF et calcul de $\Delta V$ théorique	84
4.3.2	Modélisation double	85
4.3.3	Résistances associées à chaque mécanisme	86
4.4	Discussion sur les coefficients A,B,C,D	88
4.4.1	Influence de la température sur le modèle	90
4.4.1.1	Influence de la température sur les paramètres A et B	90
4.4.1.2	Influence de la température sur la chute de tension $\Delta V$	91
4.4.1.3	Influence de la température sur le courant d'émission	91
4.4.1.4	Influence de la température sur les résistances relatives FN et PF	91
4.5	Conclusion	93

---

Au cours des trois dernières décennies, le diamant (C, nombre atomique 12) a connu un intérêt croissant comme possible alternative aux métaux pour l'émission de champ à froid [WANG et al. (1991); BANDIS et al. (1996); GEIS et al. (1996); GLESENER et al. (1996); OKANO et al. (1996); ZHU et al. (1998); GÖHL et al. (2000)]. Bien que la tentative de remplacement des cathodes métalliques par des cathodes de diamant ou du même type n'ait pas encore connu de réel succès commercial, l'intérêt scientifique pour ces méthodes d'émission utilisant des processus différents de ceux des métaux reste néanmoins intéressant. La haute résistance mécanique du diamant, couplée à sa bonne conductivité thermique ( $\lambda_{dia} \sim 2000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  : presque 10 fois supérieure à celle du tungstène) et à son inertie chimique pourraient en faire un bon candidat pour une émission d'électrons stable.

Un matériau à électro-affinité négative est en général un semi-conducteur dont le travail de sortie est tel que le niveau d'énergie du vide est plus bas que le niveau d'énergie de la bande de conduction. Les électrons présents dans la bande de conduction peuvent alors être émis facilement hors du matériau. Des études [HIMPSEL et al. (1979); WEIDE et al. (1994)] ont montré que le diamant était un matériau électro-négatif. Ceci permet de réduire le travail de sortie nécessaire aux électrons afin d'être émis et facilite donc le régime d'émission.

Différentes études d'émission de champ sur des semi-conducteurs [BASKIN et al. (1971); SCHRODER et al. (1974)] de type-p comme le germanium [ARTHUR (1965)] ou le silicium [FURSEY et al. (1969)] ont montré que le courant d'émission pour de tels matériaux diffère du courant d'émission des métaux. Dans les semi-conducteurs étudiés, le courant présente une saturation par rapport à la loi Fowler-Nordheim régissant le courant dans les métaux. Prédite par BASKIN [BASKIN et al. (1971)], cette saturation du courant provient d'une zone de déplétion se formant à l'apex de la pointe due à la pénétration du champ électrique. Le processus d'émission doit donc être retravaillé en intégrant de nouveaux mécanismes d'émission présents dans des parties non-conductrices de nos échantillons.

Dans ce chapitre, nous discuterons de l'émission de champ à froid d'une nanopointe de diamant. Dans la première partie, nous détaillerons les résultats obtenus par d'autres équipes sur ce même type de pointe. Puis, nous présenterons les résultats expérimentaux obtenus sur nos pointes dans le cadre d'une émission de champ à froid. Nous verrons que le processus d'émission des électrons au bout de la pointe ne suit pas une loi Fowler-Nordheim classique comme dans le cas d'une pointe métallique. De plus, les électrons émis sont accélérés dans le vide par une tension plus faible que la tension appliquée sur la pointe. Nous montrerons qu'ils perdent cette énergie durant leur transport le long de la pointe. Cette chute de tension sera écrite  $\Delta V$  dans la suite du chapitre. Dans la troisième partie, nous établirons un modèle simple de l'émission présente pour nos échantillons. Ce modèle utilisera un montage électrique composé de deux résistances différentielles représentant chacune un type d'émission. Une fois ce modèle établi et ajusté aux courbes expérimentales, nous discuterons dans la quatrième et dernière partie du sens physique des paramètres d'ajustement et de leur influence sur le modèle. Les résultats de ce chapitre sont publiés dans [TORRESIN et al. (2019)].

Pour toutes ces études, les nanopointes de diamant, décrites dans la partie 2.1.2, ont été fabriquées par nos collaborateurs du département de physique de l'université de Moscou en Russie. Le montage des nanopointes de diamant sur les pointes de tungstène a été fait avec un faisceau ionique focalisé (FIB) par nos collaborateurs du groupe de physique des matériaux à l'université de Rouen en France. Enfin, la grande majorité des résultats expérimentaux proviennent d'études réalisées au LCAR à Toulouse.

#### 4.1 PRÉCÉDENTES EXPÉRIENCES SUR CE TYPE DE NANOPOINTE DE DIAMANT

Depuis les années 90, de nombreuses équipes ont étudié l'utilisation de cathodes de diamant pour l'émission de champ à froid. L'objectif était d'utiliser l'électro-affinité négative de ce matériau (NEA) afin de permettre une émission pour des champs électriques plus faibles que pour des métaux. L'inconvénient de ce matériau vient de sa faible conductivité ne prenant place qu'au sein de ses défauts. Il fut alors tenté d'ajouter une grande quantité de défauts afin de permettre une conduction plus efficace, ceci au dépend des caractéristiques excellentes du diamant en terme de conductivité thermique, d'inertie chimique et de stabilité mécanique.

Les premières études ont été faites pour des films de diamant (1 – 2 mm d'épaisseur) faits par CVD (*Chemical Vapor Deposition*). Une partie se consacrait à des films dopés à l'azote (dopé-N). La fabrication de ces échantillons est décrite par OKANO et al. [OKANO et al. (1996)]. Les résultats, [GEIS et al. (1996)], montrent une émission de champ à froid contrôlée et reproductible pour des champs appliqués entre 0 et 1 MV/m. Cette émission s'accompagne d'une différence de potentiel s'établissant au sein du diamant de l'ordre du kV. La deuxième partie des études s'intéressait à des films de diamant non-dopé et donc rempli de défauts [WANG et al. (1991), ZHU et al. (1998)]. Il a été montré, en traçant le courant en fonction de la tension appliquée sur l'échantillon  $V_{DC}$ , que l'émission de champ à froid ne suivait pas une loi Fowler-Nordheim. L'hypothèse principale est que l'émission est saturée à cause de la faible conduction du diamant. Dans un article de 2000, GÖHL et al. [GÖHL et al., 2000] définissait d'ailleurs le courant de conduction au sein du diamant comme un régime de Poole-Frenkel. Ce régime de conduction utilise des électrons piégés dans des potentiels coulombiens qui sautent sur la bande de conduction par effet thermique.

L'hypothèse sur la conduction de Poole-Frenkel au sein du diamant a été reprise en 2016 par KLESHCH et al. pour le cas de nanopointes de diamant monocristalline [KLESHCH et al. (2016)]. Dans cette étude, les auteurs montrent que le courant de conduction tracé en fonction de la chute de tension le long de la pointe suit bien une loi PF. Ils montrent aussi la dépendance de cette loi en fonction de la température. Ces nanopointes, dont la fabrication est décrite dans cet article [OBRAZTSOV et al. (2010)], voir partie 2.1.2, sont celles utilisées dans notre étude. L'étude a montré la présence d'impuretés d'azote et de silicium notamment à l'apex. Les centres NV (Nitrogen-Vacancy) du diamant sont d'ailleurs intéressants pour leur possible implémentation dans la fabrication des ordinateurs quantiques et plus particulièrement du qubit [STONEHAM et al. (2009)]. Les mêmes résultats ont été obtenus l'année suivante [MALYKHIN et al. (2018)].

Très récemment, une équipe d'HOMMELHOFF a présenté ses résultats sur l'étude de l'émission d'une nanopointe de tungstène recouverte d'un film de diamant ( $\sim 120$  nm à l'apex). Le processus de fabrication des pointes est décrit ici [TAFEL et al. (2019a)]. Dans une autre étude [TAFEL et al. (2019b)], les auteurs montrent la présence d'une émission d'électrons sous illumination laser de l'apex de la pointe. Ils utilisent un laser femtoseconde avec une durée d'impulsion de 80 fs. Les mesures, faites pour différentes longueurs d'onde du laser, montrent un type d'émission multiphotonique,

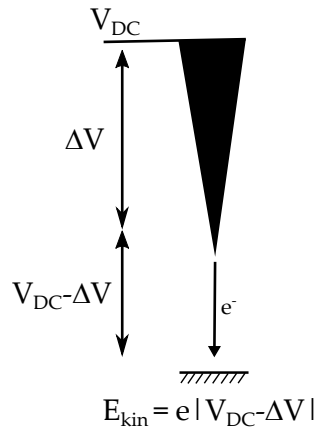


FIGURE 4.1 – Schéma du potentiel des électrons dans le dispositif expérimental. La mesure de l'énergie cinétique au-niveau du détecteur permet de remonter à la chute de tension  $\Delta V$  en connaissant la tension  $V_{DC}$  appliquée sur la pointe.

i.e. l'absorption de plusieurs photons pour libérer un électron au-dessus du travail de sortie. Ce travail de sortie est d'ailleurs établi à 4.7 eV en schématisant la barrière de potentiel et l'électro-affinité négative du diamant.

Dans la suite du manuscrit, nous établissons un modèle simple pour expliquer les émissions statique et laser de nanopointes de diamant. En reprenant les résultats déjà connus et en leur associant nos propres mesures, nous sommes capables de modéliser la plupart des données mesurées au cours de ma thèse.

#### 4.2 RÉSULTATS DE L'ÉMISSION DE CHAMP À FROID

En appliquant une tension statique  $V_{DC}$  négative sur notre échantillon, il est possible d'émettre des électrons par effet de champ à froid. Pour une pointe métallique classique, les électrons sont émis par effet tunnel avec une énergie cinétique proportionnelle à la tension appliquée sur l'échantillon  $e|V_{DC}|$  avec  $e$  la charge élémentaire positive. Pour une pointe de diamant, l'énergie cinétique des électrons est inférieure à  $e|V_{DC}|$  car une chute de tension le long de la pointe apparaît, due à la faible conductivité de ce matériau. On pose alors  $\Delta V$  tel que :  $E_{cin} = e|V_{DC} - \Delta V|$ . L'étude de cette chute de tension  $\Delta V$  ainsi que du courant électrique permet alors de comprendre les différents mécanismes de transport et d'émission ayant lieu dans ces échantillons (Figure 4.1).

Dans cette partie, nous présenterons les résultats des mesures de courant et de chute de tension le long de la pointe en fonction de la tension statique appliquée pour deux pointes F16 et F17 qui ont un comportement identique et reproductible (Figure 4.2). Cette étude nous permettra de créer un modèle simple pour décrire les mécanismes mis en jeu dans l'émission des électrons. Au cours de nos mesures, nous avons remarqué que certaines pointes ne présentaient pas de  $\Delta V$ , sans doute à cause de la présence d'une couche de graphite à leur surface. Une partie sera réservée à l'étude de ces pointes particulières. Pour toutes les autres parties, les pointes présentent un  $\Delta V$  le long du diamant et peuvent donc être considérées comme en partie non-métallique.

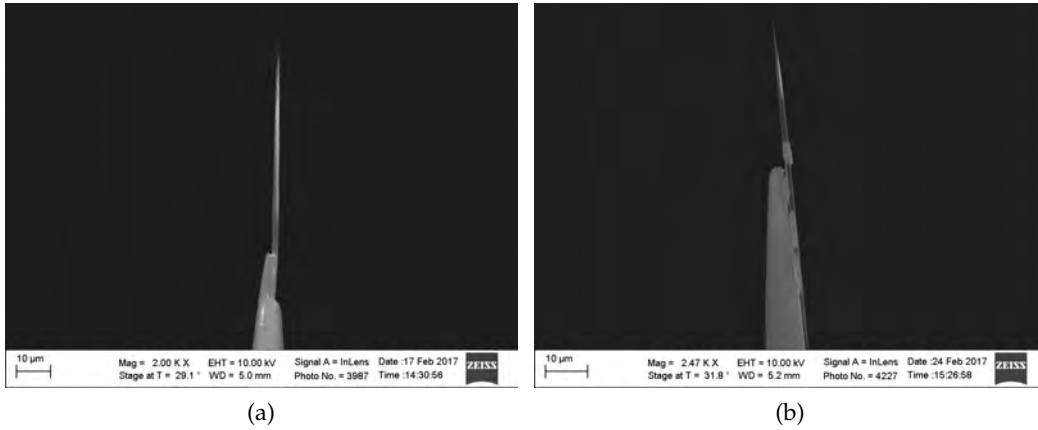


FIGURE 4.2 – Photos prises au MEB des nanopointes de diamant F16 (a) et F17 (b).

#### 4.2.1 Émission au bout de la pointe

##### 4.2.1.1 Mesure du courant d'émission

Nous avons mesuré le courant d'émission de champ à froid pour deux nanopointes de diamant en fonction de la tension appliquée sur la pointe. Les résultats sont présentés sur la [Figure 4.3a](#). Ces mesures ont été faites au picoampèremètre pour des tensions allant de 400 V à 1500 V. On rappelle l'expression du mécanisme Fowler-Nordheim qui régit ce type d'émission pour des nanopointes métalliques vue dans la partie [1.1.3.1](#) :

$$I \propto \frac{e^3 F^2}{4\pi h \phi} \cdot \exp\left(-\frac{4\sqrt{2m_e}\phi^{3/2}}{3e\hbar F} v(y)\right) \quad (4.1)$$

Les courants mesurés possèdent un comportement exponentiel pour des valeurs de 50 pA, qui est la limite basse de mesure de notre appareil, à quelques nA. En retraçant ces courbes en utilisant les coordonnées de Fowler-Nordheim habituelles ( $\ln\left(\frac{I}{V_{DC}^2}\right) \propto \frac{1}{V_{DC}}$ ), on observe un comportement non-linéaire pour des tensions entre 400 V et 1500 V ([Figure 4.3b](#)). L'allure de ces courbes peut être comparée aux résultats obtenus pour d'autres semiconducteurs vus dans la partie [1.2.2](#). Les courbes pour d'autres semiconducteurs se divisent en trois parties au fur et à mesure que l'on augmente la tension appliquée sur le matériau : une région de courant linéaire pour les basses tensions, une région de saturation pour des tensions intermédiaires et une région d'ionisation à haute tension. La [Figure 4.3b](#) montre dans le cadre en insert la courbe en coordonnées FN du germanium dopé-p en comparaison de nos résultats. Les courbes en coordonnées FN obtenues pour nos nanopointes de diamant pourraient alors représenter les parties II et III des courbes d'autres semiconducteurs. La limite basse de mesure de notre picoampèremètre à 50 pA nous empêche d'effectuer des mesures à plus faibles tensions pour tenter d'apercevoir le régime I.

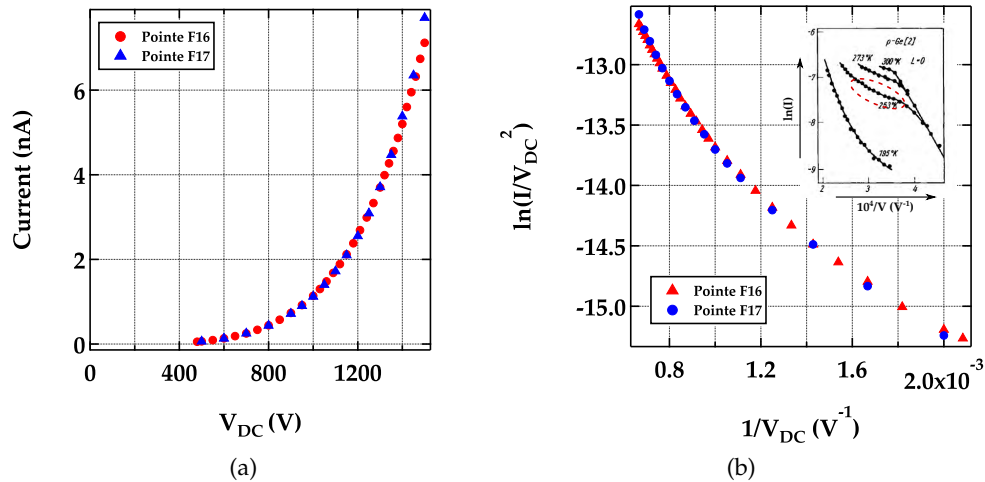


FIGURE 4.3 – Courbes du courant d'émission mesuré au picoampèremètre en fonction de la tension statique appliquée sur la pointe pour deux nanopointes de diamant différentes tracées en coordonnées classiques (a) et en coordonnées Fowler-Nordheim (FN) (b). Le courant ne peut être modélisé par une droite sur l'image (b) signifiant la présence d'un autre mécanisme à celui de FN. Dans le cadre : caractéristique courant-tension du germanium dopé p pour différentes températures (voir partie 1.2.2 [FURSEY (2007)]). La courbe pour le diamant pourrait correspondre à la partie de la courbe entourée de rouge du germanium. Ceci expliquerait pourquoi les trois parties caractéristiques de l'émission pour un diélectrique ne sont pas visibles.

#### 4.2.1.2 Cartographies d'émission des électrons

En plus des mesures de courant, il nous est possible de mesurer des cartographies de l'émission des électrons grâce à des translations motorisées placées sous notre détecteur. La partie 3.2 nous a permis de montrer que ces cartes de l'emplacement physique de l'émission des électrons au niveau de la pointe étaient directement relié à la zone d'amplification du champ local au bout de la pointe. Des cartographies de l'émission ont été mesurées pour les deux nanopointes de diamant F16 et F17 pour des tensions allant de 360 V à 1500 V. Pour illustrer ces résultats, la Figure 4.4 montre des exemples de cartes FEM à différentes tensions, 360 V, 900 V et 1500 V, pour la pointe F16. On remarque que la tâche d'émission dans chaque cas se déplace mais reste de la même taille, diamètre de l'ordre de 0.8 mm correspondant à une zone d'émission de  $\sim 5$  nm à l'apex. Le déplacement de la tâche d'émission pourrait être expliqué par un effet thermique de l'émission sur la pointe qui dilaterait l'échantillon. Une autre explication serait la présence d'un potentiel parasite lié au différents éléments présents dans le dispositif expérimental (porte-miroir et porte-pointe par exemple).

Étant donné que la taille des tâches d'émission ne dépend ni du courant électrique ni de la tension appliquée sur les pointes entre 360 V et 1500 V, on peut affirmer que l'émission de champ à froid de nos nanopointes pour ces tensions ne subit pas d'effet de charge d'espace dans cette gamme de courant. Les cartes présentent des tâches d'émission avec un profil circulaire comme pour les pointes métalliques (partie 3.2).

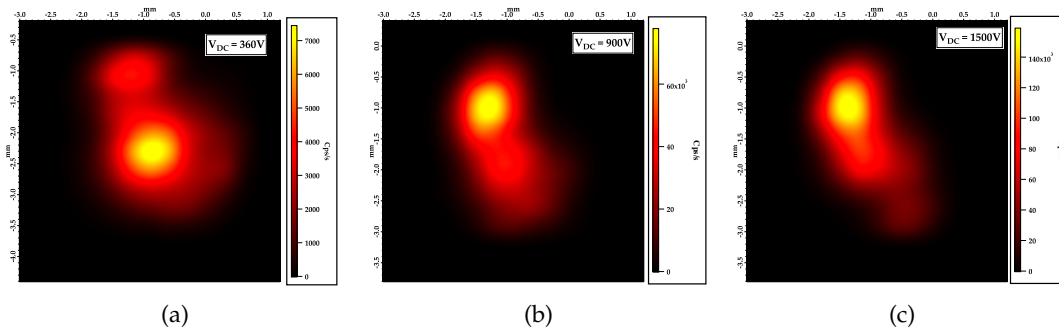


FIGURE 4.4 – Cartographies de l'émission des électrons d'une nanopointe de diamant pour différentes tension statiques appliquées. La tâche d'émission se déplace mais reste de la même taille. Le phénomène de charge d'espace n'a donc pas lieu pour des tension entre 360 V et 1500 V.

On peut donc conclure que la zone d'amplification du champ électrique au bout de la pointe prend la même forme que sur les pointes métalliques (voir partie 3.1.3).

#### 4.2.2 Courant de conduction le long de la pointe

##### 4.2.2.1 Mesure de la chute de tension

Les mesures des spectres en énergie des électrons émis par la pointe ont mis en lumière la présence d'une chute de tension le long de la pointe de diamant. Ce résultat, déjà connu pour ce type de pointe [KLESHCH et al. (2016)], provient de la faible conductivité du diamant en surface. Des mesures de cette chute de tension le long des nanopointes de diamant pour différentes valeurs de tension appliquées ont été effectuées. Cette mesure donne le même résultat pour des spectres pris au centre de la tâche d'émission ou sur les bords à 1 V près, ce qui est comparable à la résolution de notre spectromètre dans cette gamme d'énergie. Cette différence vient du fait que l'énergie des électrons est mesurée dans la direction verticale (parallèle à l'axe de la pointe). Des électrons ayant une direction oblique ont donc une composante horizontale à leur vitesse qui n'est pas prise en compte. Cette différence de 1 V sur la mesure de  $\Delta V$  n'étant pas fondamentale, toutes nos mesures seront faites pour des électrons arrivant au centre de la tâche d'émission. Les spectres mesurés nous permettent de connaître l'énergie maximale des électrons en sortie de pointe et donc de remonter à la chute de tension le long de la pointe. L'énergie des électrons émis peut donc s'écrire :  $E_{kin} = e|V_{DC} - \Delta V|$ . La Figure 4.5a montre le tracé d'un spectre à 450 V. Dans le cadre, on montre la dérivée de ce spectre. Cette dérivée présente un pic d'énergie des électrons à 345 V. On peut donc déduire la valeur  $\Delta V = 105 \pm 5$  V pour une tension appliquée sur la pointe de 450 V.

La Figure 4.5b présente les courbes de cette chute de tension en fonction de la tension appliquée pour deux nanopointes de diamant différentes. La chute de tension se comporte de façon linéaire en fonction de la tension de pointe appliquée pour des tensions allant de 500 V à 1500 V. En modélisant ces deux courbes par une fonction



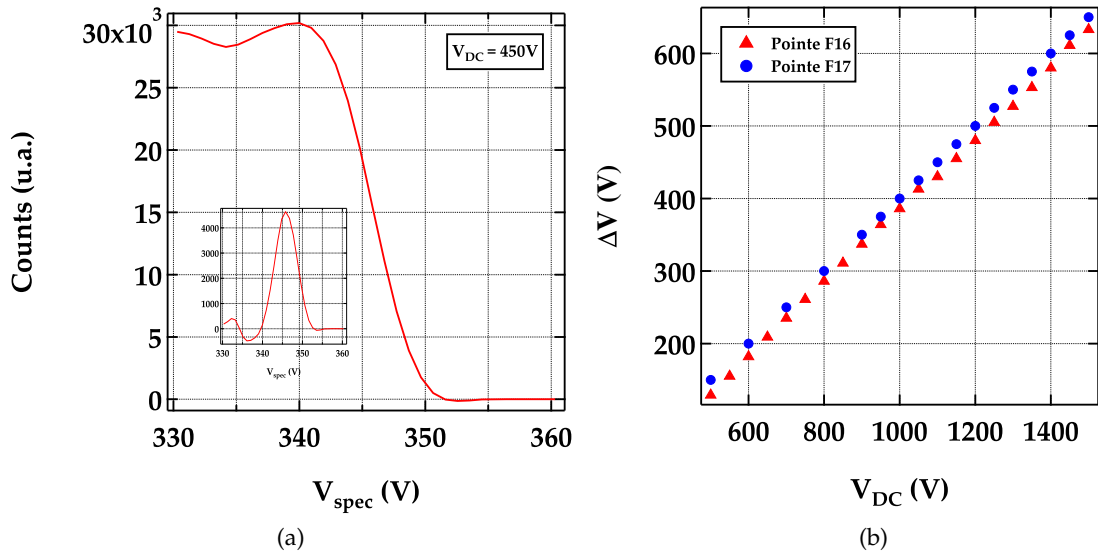


FIGURE 4.5 – (a) Exemple d’un spectre enregistré pour une tension appliquée sur la pointe de 450 V. Dans le cadre, on trace la dérivée du spectre pour remonter à la valeur de la chute de tension  $\Delta V$ . (b) Tracé de la chute de tension  $\Delta V$  en fonction de la tension appliquée sur la pointe pour deux nanopointes de diamant différentes. Ces courbes peuvent être modélisées par une fonction affine.

affine, on obtient une pente commune de  $0.500 \pm 0.003$  et une ordonnée à l’origine pour F16 et F17 de respectivement  $-114 \pm 2.7$  V et  $-100 \pm 1.1$  V.

#### 4.2.2.2 Processus de conduction

Afin de comprendre le mécanisme mis en jeu dans la conduction des électrons le long de la pointe de diamant, nous avons repris des études précédentes faites sur des nanotubes de carbone [CHOUEIB et al. (2011)] et sur le même type de pointe que les nôtres [KLESHCH et al. (2016)]. Dans ces études, les auteurs tentent d’expliquer le transport des électrons ainsi que l’émission en regardant le courant d’émission en fonction de la tension appliquée sur la pointe. De notre côté, nous avons décidé de séparer complètement les mécanismes de conduction et d’émission. Ici, nous nous intéressons seulement à l’effet de conduction et non à l’effet d’émission au bout de la pointe. Nous éliminons donc l’effet de barrière Schottky qui est un mécanisme d’interface. De plus, nous associons le phénomène de conduction à la tension le long de la pointe  $\Delta V$  et non à la tension totale  $V_{DC}$ .

Pour expliquer le transport des électrons le long de la pointe, trois différents mécanismes sont possibles : conduction Poole-Frenkel (PF :  $I \propto AV \cdot \exp(B\sqrt{V})$ ), conduction par saut à distance variable (Variable Range Hopping :  $I \propto G \cdot \sinh(HV)$ ) et conduction limitée par charge d’espace (Space Charge Limited :  $I \propto KV^{L+1}$ ) avec  $A$ ,  $B$ ,  $G$ ,  $H$ ,  $K$  et  $L$  des constantes dépendant des conditions environnementales et des propriétés du matériau, et  $V$  la tension sur le matériau ( $V = \Delta V$  pour nos échantillons). Les conductions PF et VRH mettent en jeu des porteurs piégés dans des puits de potentiel ( $\sim 0.1$  eV) [KLESHCH et al. (2016)] dû à des défauts dans le matériau. Dans

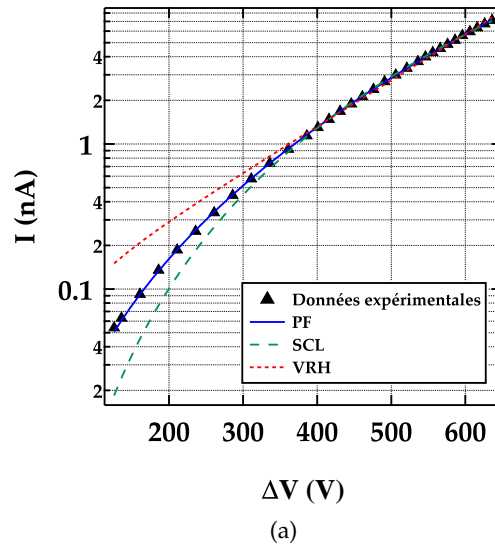


FIGURE 4.6 – Tracé du courant d'émission mesuré au picoampèremètre en fonction de la chute de tension  $\Delta V$  (triangles). On modélise les données expérimentales par un mécanisme de conduction le long de la pointe. Le trait continu, les tirets longs et les tirets courts sont respectivement les courbes ajustées des mécanismes de Poole-Frenkel (PF), limité par charge d'espace (SCL) et variable range hopping (VRH). Le mécanisme PF (trait continu) donne le meilleur résultat des trois.

le mécanisme PF, ces porteurs peuvent sauter sur la bande de conduction par effet thermique. Dans le mécanisme VRH, ils transitent par effet tunnel d'un site à un autre. La conduction SCL prend place quand la quantité de porteurs injectés dans le matériau est trop importante et limite donc le courant. Ces trois mécanismes sont détaillés plus précisément dans la partie 1.2.1.

Chacun de ces trois mécanismes a été évalué en comparant les données expérimentales avec les courbes modélisées de chaque modèle avec le meilleur ajustement (Figure 4.6a). Les triangles représentent les données expérimentales. Le trait continu, les tirets courts et les tirets longs représentent respectivement les courbes modélisées PF, VRH et SCL en ajustant au mieux leurs constantes. Il apparaît clairement sur la courbe que le modèle PF donne la meilleure modélisation des trois.

Cette partie nous permet donc de conclure sur le mécanisme de conduction le plus adapté au déplacement des porteurs au sein des nanopointes de diamant. Ce mécanisme PF sera utilisé dans notre modèle électrique dans les parties suivantes.

#### 4.2.3 Cas particulier : pointe sans chute de tension

Dans le cadre de nos expériences, nous avons remarqué que certaines pointes de diamant ne possédaient pas de chute de tension  $\Delta V$ . L'explication pourrait venir d'une contamination graphitique en surface jouant le rôle d'un conducteur parfait. Sur les images SEM prises avant les mesures, aucune différence n'a été remarquée entre ces pointes là et les pointes possédant un  $\Delta V$ . La découverte de la présence ou non du

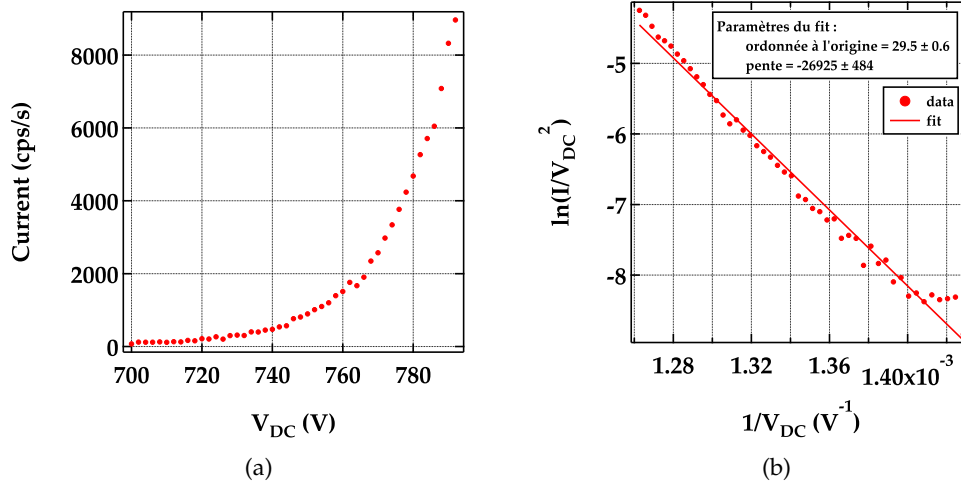


FIGURE 4.7 – Tracé du courant d'émission mesuré sur un écran de phosphore en fonction de la tension statique appliquée sur la pointe en coordonnées classiques (a) et en coordonnées FN (b). Les données expérimentales en coordonnées FN peuvent être modélisées par une droite dont les paramètres sont inscrits sur la figure.

$\Delta V$  se faisait donc une fois la pointe à l'intérieur du dispositif expérimental. Afin de mieux comprendre la différence entre ces pointes et les autres, nous avons étudié le comportement de leur émission d'électrons.

Nous avons étudié le comportement de l'émission d'électrons de ces nanopointes pour le comparer aux autres pointes de diamant ainsi qu'aux pointes métalliques. Des mesures de courant pour différentes tensions de pointes ont été faites. La Figure 4.7a présente ces mesures. Elles ont été prises par nos collaborateurs à Rouen. Le nombre d'électrons a été mesuré sur un écran phosphore pour des tensions entre 700 V et 800 V. En retraçant ces données avec les coordonnées FN, Figure 4.7b, on remarque un comportement linéaire comme pour les pointes métalliques.

#### 4.3 MODÈLE ÉLECTRIQUE SIMPLE DE L'ÉMISSION D'ÉLECTRONS DES POINTES DE DIAMANT

Afin d'expliquer l'évolution du courant, et de la chute de tension, en fonction de la tension appliquée sur la pointe, nous avons imaginé un modèle macroscopique simple. Ce modèle part du postulat que le courant de conduction des électrons le long de la pointe de diamant est égal au courant d'émission des électrons au bout de la pointe durant le régime permanent. Pour la suite, nous nommerons ce courant  $I$ . Les deux mécanismes d'émission sont alors modélisés par des résistances différentielles en série traversées par le courant  $I$  (Figure 4.8a).

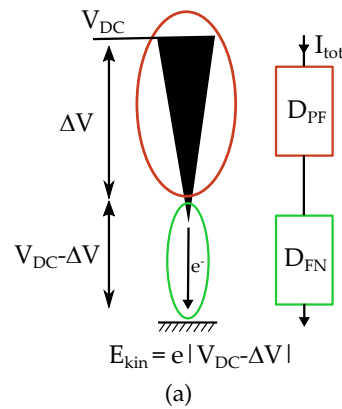


FIGURE 4.8 – Schéma du modèle de conduction des électrons pour le courant d'émission. Les mécanismes de Poole-Frenkel et de Fowler-Nordheim sont représentés par des résistances variables traversées par le même courant.

Comme vu dans la partie précédente, le processus qui décrit le mieux la conduction des électrons le long de la pointe est le mécanisme de Poole-Frenkel. Le courant de conduction des électrons le long de la pointe  $I_{cond}$  peut alors s'écrire :

$$I_{cond} = A\Delta V \cdot \exp\left(B\sqrt{\Delta V}\right) \quad (4.2)$$

avec  $\Delta V$  la chute de tension le long de la pointe et  $A$  et  $B$  des constantes dépendant de la température et des caractéristiques de la pointe.

Le courant d'émission des électrons au bout de la pointe est quant à lui le mieux décrit par le mécanisme de Fowler-Nordheim associé à un champ électrique local  $F$ . Comme c'est le cas pour l'émission de champ à froid des pointes métalliques, il est possible de réécrire ce champ comme le produit du facteur d'amplification du champ local  $\beta$  avec le potentiel électrique présent au bout de la pointe. Néanmoins, contrairement aux pointes métalliques, le potentiel électrique au bout de la pointe dans le cas de pointes de diamant diffère de la tension appliquée  $V_{DC}$  à cause de la chute de tension le long de la pointe. Le champ local au bout de la pointe devient alors :  $F = \beta(V_{DC} - \Delta V)$ . Pour la suite de cette partie, le paramètre  $\beta$  sera considéré comme constant en fonction du courant d'émission  $I$ . Ceci est une approximation car le champ électrique pénètre au bout de la pointe. Le courant de Fowler-Nordheim  $I_{emi}$  peut alors être réécrit :

$$I_{emi} = C(V_{DC} - \Delta V)^2 \cdot \exp\left(-\frac{D}{V_{DC} - \Delta V}\right) \quad (4.3)$$

avec  $C$  et  $D$  des pseudo-constantes dépendant du travail de sortie et du paramètre d'amplification  $\beta$ .

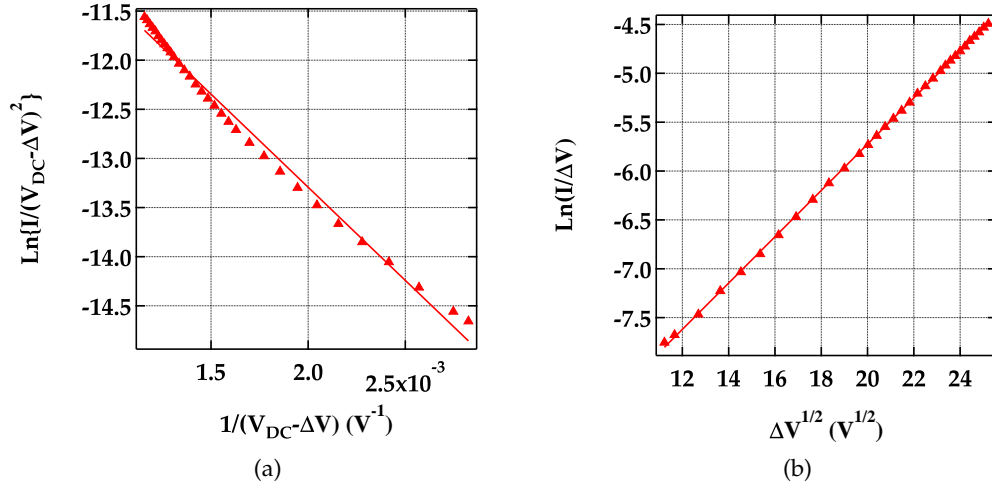


FIGURE 4.9 – Tracé du courant d'émission mesuré au picoampèremètre en fonction de la tension au bout de la pointe ( $V_{DC} - \Delta V$ ) (a) ou en fonction de la chute de tension  $\Delta V$  (b). Ces courbes sont tracées en coordonnées FN (a) et PF (b). Les triangles représentent les points expérimentaux et le trait continu la modélisation de ces données par une droite.

En reprenant le postulat de départ de notre modèle, i.e. le courant d'émission des électrons au bout de la pointe est égal au courant de conduction des électrons le long de la pointe, on peut écrire  $I_{cond} = I_{emi} = I$ . De façon plus générale :

$$I = A\Delta V \cdot \exp\left(B\sqrt{\Delta V}\right) = C(V_{DC} - \Delta V)^2 \cdot \exp\left(-\frac{D}{V_{DC} - \Delta V}\right) \quad (4.4)$$

#### 4.3.1 Modélisation indépendante des mécanismes FN et PF et calcul de $\Delta V$ théorique

En utilisant les équations 4.2 et 4.3, il est possible de modéliser les données expérimentales du courant mesuré en fonction de la chute de tension le long de la pointe ( $\Delta V$ ) et de la tension au bout de la pointe ( $V_{DC} - \Delta V$ ). Pour une meilleure lisibilité, nous avons tracé ces courbes de modélisation en coordonnées FN ( $\ln\frac{I}{(V_{DC}-\Delta V)^2}$  vs  $\frac{1}{(V_{DC}-\Delta V)}$ ) (Figure 4.9a) et PF ( $\ln\frac{I}{\Delta V}$  vs  $\sqrt{\Delta V}$ ) (Figure 4.9b). On remarque un léger décalage entre le modèle et les données expérimentales. Ce décalage pourrait être dû à la variation du facteur  $\beta$  en fonction du courant. Dans notre cas et pour la suite, nous ne tiendrons pas compte de cet aspect là étant donné son faible impact sur la valeur des coefficients d'ajustement pour les tensions qui nous intéressent. Nous verrons dans le chapitre 6 comment le modèle pourrait être amélioré pour obtenir un meilleur ajustement. Les valeurs des paramètres pour les deux pointes sont données dans le Tableau 4.1. Les valeurs de ces paramètres seront discutées dans la partie 4.4.

Pour tester la résilience de notre modèle, on résout numériquement l'équation 4.4 afin de calculer la valeur attendue de  $\Delta V$  en fonction de  $V_{DC}$ . En appliquant ces paramètres à l'une des deux formules 4.2 ou 4.3, on peut aussi remonter à la valeur du courant  $I$  attendu en fonction de  $V_{DC}$ . Ces courbes calculées numériquement sont

Pointes	$A$ (nA/V)	$B$ ( $V^{-1/2}$ )	$C$ (nA/V <sup>2</sup> )	$D$ (V)
F16	$(3.07 \pm 0.03) \times 10^{-5}$	$0.238 \pm 0.001$	$(8.28 \pm 0.09) \times 10^{-5}$	$1967 \pm 12$
F17	$(1.50 \pm 0.02) \times 10^{-5}$	$0.261 \pm 0.005$	$(1.59 \pm 0.03) \times 10^{-4}$	$2447 \pm 14$

TABLE 4.1 – Tableau récapitulatif des paramètres d'ajustement des régimes FN et PF pour des modélisations prises séparément.

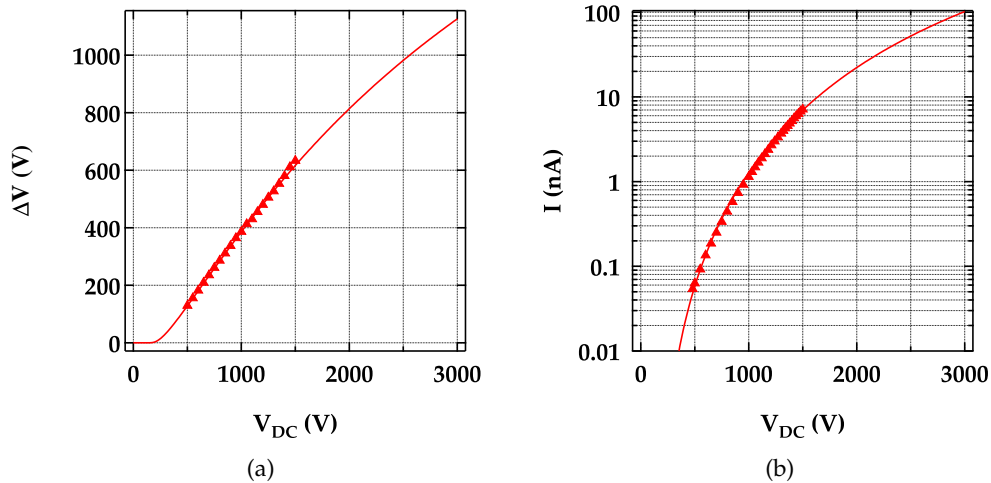


FIGURE 4.10 – Tracé de la chute de tension (a) et du courant d'émission (b) en fonction de la tension appliquée sur la pointe. Les triangles représentent les points expérimentaux et le trait continu représente le tracé de ces variables en utilisant les paramètres  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et  $D$  calculés précédemment.

présentées avec les points expérimentaux sur la [Figure 4.10a](#) et la [Figure 4.10b](#) sans aucun ajustement supplémentaire. On constate que le modèle s'accorde très bien avec les résultats expérimentaux. Pour la suite, ce modèle nous permettra de prédire les comportements de  $I$  et de  $\Delta V$  si on modifie les paramètres  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et  $D$ .

#### 4.3.2 Modélisation double

La modélisation effectuée dans la partie précédente ne prenait pas en compte l'égalité entre les courants de conduction et d'émission. L'ajustement se faisait sur les courants FN et PF séparément. Nous proposons ici une deuxième méthode d'ajustement prenant en compte l'hypothèse principale sur les courants. Pour cela, nous avons créé un modèle d'ajustement double comprenant les quatre paramètres  $A, B, C$  et  $D$ .

Pour des paramètres  $V_{DC}, A, B, C$  et  $D$  donnés, le modèle calcule une valeur de  $\Delta V$  et de  $I$  en utilisant les équations 4.4 et 4.3. Il est à noter que pour le calcul du courant, il est aussi possible d'utiliser la formule 4.2. Pour chacune des valeurs calculées, on

Pointes	$A$ (nA/V)	$B$ ( $V^{-1/2}$ )	$C$ (nA/V <sup>2</sup> )	$D$ (V)
F16	$(3.22 \pm 1.13) \times 10^{-5}$	$0.23 \pm 0.016$	$(8.21 \pm 1.77) \times 10^{-5}$	$1962 \pm 150$
F17	$(1.97 \pm 0.7) \times 10^{-5}$	$0.244 \pm 0.02$	$(7.9 \pm 2.24) \times 10^{-5}$	$1840 \pm 137$

TABLE 4.2 – Tableau récapitulatif des paramètres d’ajustement des régimes FN et PF pour un modèle d’ajustement double.

calcule un résidu correspondant à l’erreur relative entre la valeur numérique et la valeur expérimentale égal à :

$$X_{res} = \frac{(X_{num} - X_{exp})^2}{X_{exp}^2} \quad (4.5)$$

où  $X$  prend successivement les valeurs de  $I$  et de  $\Delta V$ , comme ce serait le cas pour un ajustement simple.

Une fois les résidus de courant et de chute de tension calculés, ils sont sommés pour créer un résidu total du modèle pour les paramètres donnés. Le but de notre programme est donc de minimiser ce résidu total à partir de l’ajustement des paramètres  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et  $D$ . La valeur des paramètres est donné dans le [Tableau 4.2](#). On remarque que les paramètres ont sensiblement la même valeur que dans la modélisation des phénomènes séparément. Le changement se situe au niveau des incertitudes sur l’ajustement qui sont plus importantes dans ce cas là.

Un fois les paramètres ajustés, nous retraçons les mêmes courbes que précédemment. On remarque une meilleure précision sur la mesure du  $\Delta V$  pour les hautes tension qu’avec la première méthode de résolution numérique. Au contraire, la précision sur le calcul du courant est moins bonne pour les hautes tensions. Cependant, cette méthode a l’avantage de garantir  $I_{PF} = I_{FN}$  contrairement à la méthode utilisant des ajustements simples de chacun de phénomènes séparément.

#### 4.3.3 Résistances associées à chaque mécanisme

Dans le modèle présenté dans la partie précédente, les mécanismes de conduction le long de la pointe et d’émission au bout de la point sont modélisés par deux résistances différentielles dépendant de la tension appliquée sur la pointe. Ces deux résistances sont traversées par le même courant. Il est possible de comparer l’importance de chaque mécanisme pour différentes tensions de pointes appliquées. On peut définir ces deux résistances à partir de la loi d’Ohm :

$$R_{PF} = \frac{\Delta V}{I} = \frac{1}{A \cdot \exp(B\sqrt{\Delta V})} \quad (4.6)$$

et

$$R_{FN} = \frac{V_{DC} - \Delta V}{I} = \frac{1}{C(V_{DC} - \Delta V) \cdot \exp\left(-\frac{D}{V_{DC} - \Delta V}\right)} \quad (4.7)$$

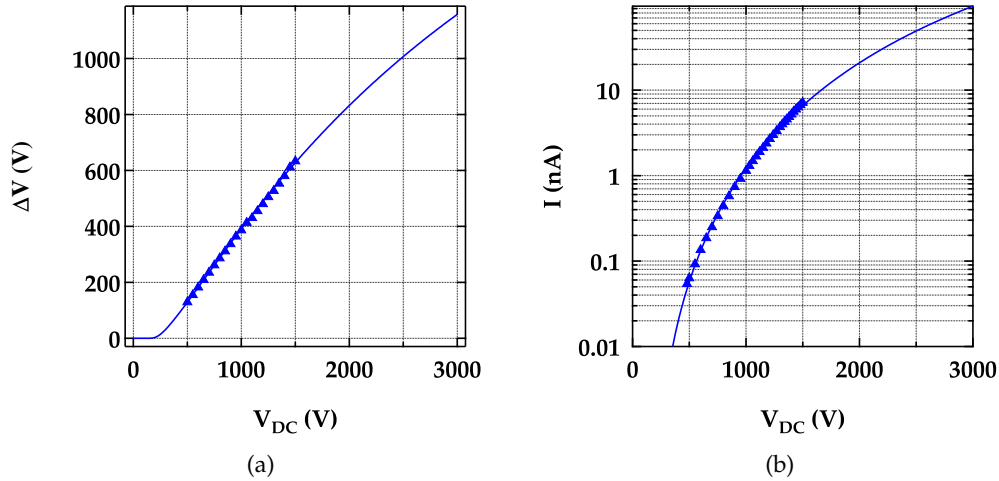


FIGURE 4.11 – Courbes reprenant les mêmes tracés que la Figure 4.10 avec les paramètres  $A$ ,  $B$ ,  $C$ , et  $D$  de la modélisation double.

La figure Figure 4.12a montre le tracé des résistances FN et PF en fonction de la tension statique appliquée sur la pointe. Les cercles et les triangles représentent respectivement les données expérimentales des résistances FN et PF. Les traits continus et discontinus représentent les valeurs des résistances calculés à l'aide des paramètres d'ajustement  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et  $D$  cités précédemment (Tableau 4.1). Les données ont été prises pour des valeurs de tensions de pointe entre 500 V et 2000 V. Ces résultats étaient attendus puisqu'ils confirment les résultats précédents de notre modèle. Entre ces tensions, les deux résistances ont des valeurs du même ordre de grandeur ( $T\Omega$ ).

Il est possible de comparer cette résistance à celle qu'aurait une pointe métallique (tungstène) de même géométrie. En faisant l'approximation que la pointe est un cône coupé à la base, on note son angle  $\alpha = 5^\circ$  et son rayon à l'origine  $r_0 = 30$  nm. On rappelle la formule de la résistance  $R = \rho \frac{L}{S}$  avec  $\rho$  la résistivité du matériau,  $L$  sa longueur et  $S$  sa section. Pour le tungstène,  $\rho = 5.44 \times 10^{-8} \Omega \cdot \text{m}$ . En calculant la résistance le long d'un cône, on trouve :

$$R = \frac{\rho}{\pi \alpha r_0} = 0.12 \Omega \quad (4.8)$$

Une pointe de tungstène avec la même géométrie aurait donc une résistance  $10^{13}$  fois plus faible qu'une pointe de diamant. Cependant, la résistance très grande de PF ne modifie que légèrement le courant d'émission par rapport au cas métallique car elle est du même ordre de grandeur que la résistance FN.

Pour comprendre la place qu'occupe chacun des mécanismes dans l'émission en fonction de la tension statique appliquée, il peut être intéressant de comparer les résistances relatives de chacun des phénomènes. La figure Figure 4.12b montre les résistances relatives FN ( $\frac{R_{FN}}{R_{FN}+R_{PF}}$ ) et PF ( $\frac{R_{PF}}{R_{FN}+R_{PF}}$ ) en fonction de la tension appliquée pour des tensions allant jusqu'à 2000 V. Les cercles et les triangles représentent respectivement les données expérimentales des résistances relatives FN et PF. Les traits



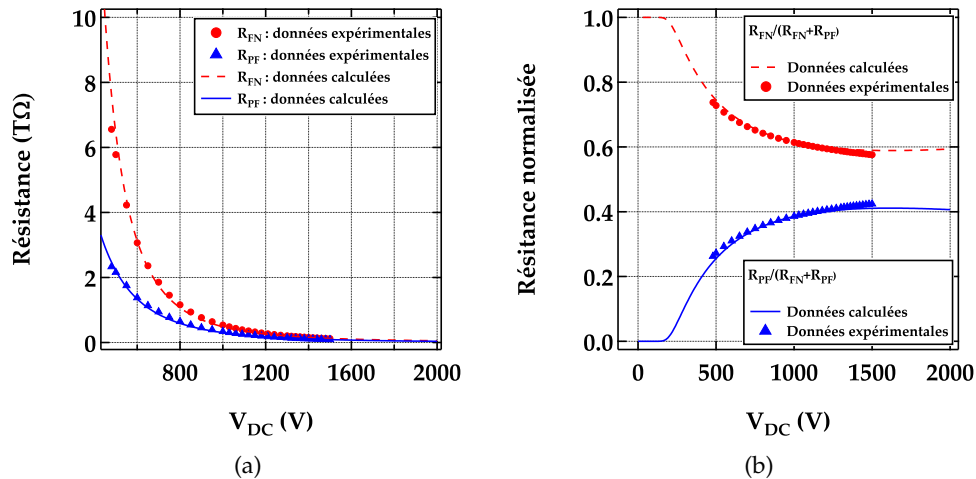


FIGURE 4.12 – (a) Courbe des résistances Fowler-Nordheim et Poole-Frenkel mesurées expérimentalement (cercle et triangle) et calculées numériquement (trait continu et trait discontinu) en fonction de la tension appliquée sur la pointe. On constate un bon accord entre les mesures expérimentales et les données calculées à partir des paramètres  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et  $D$  calculés précédemment (voir tableau ...). (b) Courbe des résistances relatives  $\frac{R_{FN}}{R_{FN}+R_{PF}}$  et  $\frac{R_{PF}}{R_{FN}+R_{PF}}$  légendée de la même façon que sur la courbe du (a) en fonction de la tension appliquée sur la pointe. La résistance  $R_{FN}$  reste toujours supérieure à la résistance  $R_{PF}$ , ce qui fait du mécanisme FN le mécanisme limitant l'émission d'électrons pour toutes les tensions entre 0 V et 2000 V.

continus et discontinus représentent les valeurs des résistances relatives calculées à l'aide des paramètres d'ajustement  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et  $D$  cités précédemment (voir tableau). Pour les faibles tensions, la résistance FN est beaucoup plus élevée que celle de PF. Ceci pourrait s'expliquer par le fait qu'à faible tension, et donc à faible courant, la chute de tension le long de la pointe est proche de zéro, entraînant un effet très faible du phénomène PF sur l'émission. En augmentant la tension statique, on augmente la chute de tension le long de la pointe et on constate que la différence entre les deux résistances s'affaiblit. Le phénomène PF prend donc plus d'importance dans le phénomène d'émission. Cependant, pour toutes ces tensions, la résistance FN reste toujours supérieure à la résistance PF. Le mécanisme FN est donc celui qui limite le courant d'émission pour ces paramètres  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et  $D$ .

Dans la prochaine partie, nous verrons qu'une augmentation de la température entraîne un changement sur les paramètres  $A$  et  $B$  qui régissent le mécanisme Poole-Frenkel. Cette augmentation de la température pourra, pour certaines tensions, inverser le rapport entre les deux résistances de notre modèle, faisant du mécanisme PF le mécanisme limitant.

#### 4.4 DISCUSSION SUR LES COEFFICIENT $A, B, C, D$

En reprenant les définitions des mécanismes Fowler-Nordheim (FN) et Poole-Frenkel (PF), on constate qu'un changement sur les caractéristiques de la pointe de diamant

entraînera une modification des paramètres  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et  $D$  de notre modèle. On rappelle la définition de chacun des paramètres :

$$A = \frac{e\mu N_C}{d} \cdot \exp\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right) \quad (4.9)$$

$$B = \frac{\sqrt{e^3/\pi\epsilon_0\epsilon_i d}}{k_B T} \quad (4.10)$$

$$C = \frac{e^3}{4\pi h \phi (kr)^2} \quad (4.11)$$

$$D = \frac{4\sqrt{2m_e}}{3\hbar e} \cdot \phi^{3/2} \cdot \nu(y)kr \quad (4.12)$$

Pour nos échantillons, il est difficile de connaître les valeurs de mobilité et de densité d'états des porteurs à cause de nombreux défauts présents au sein du diamant. La valeur du paramètre  $A$  est donc difficilement exploitable puisqu'il contient quatre inconnues. Une possibilité pour remonter aux valeurs de mobilité et de densité d'états des porteurs pourrait être d'étudier les effets de Hall et de Shubnikov-de Haas. Ces effets permettent, pour certains types d'échantillons, de remonter à la mobilité et à la densité d'états des porteurs en mesurant les résistances longitudinales et transversales du matériau sous un champ magnétique intense.

Le paramètre  $B$  met en jeu la constante diélectrique du matériau  $\epsilon_i$  et la longueur de la pointe sur laquelle le champ pénètre  $d$ . Ce paramètre  $d$  provient du changement de variable que nous effectuons pour remplacer le champ électrique  $E$  dans la pointe par le potentiel  $\Delta V$  le long de celle-ci tel que  $E = \Delta V/d$ . A partir des valeurs de  $B$  calculés dans notre modèle pour les pointes F16 et F17, il est possible de définir les valeurs du produit  $\epsilon_i d$  pour chacune des pointes en prenant la température  $T = 293 \text{ K}$  :  $\epsilon_i d(16) = 1.60 \times 10^{-4} \text{ m}$  et  $\epsilon_i d(17) = 1.33 \times 10^{-4} \text{ m}$ . Ces deux variables sont néanmoins difficilement séparables. En effet, nous connaissons la valeur de la constante diélectrique du diamant pur ( $\epsilon_r = 5.7$ ) mais celle-ci pourrait varier pour nos échantillons étant donnée la présence de défauts à l'intérieur. Il est aussi difficile de connaître avec précision la longueur de la pointe sur laquelle le champ pénètre.

Les paramètres  $C$  et  $D$  mettent en jeu le travail de sortie de la nanopointe  $\phi$ , le facteur d'amplification du champ local au bout de la pointe  $\beta$  et le rayon de la pointe  $r$ . On retrouve également le paramètre  $\nu(y)$  dans  $D$ . De la même façon que pour les autres paramètres, la méconnaissance de la valeur des variables physiques du modèle nous empêche de pouvoir conclure sur des données quantitatives. Notre modèle se veut donc purement macroscopique et qualitatif.

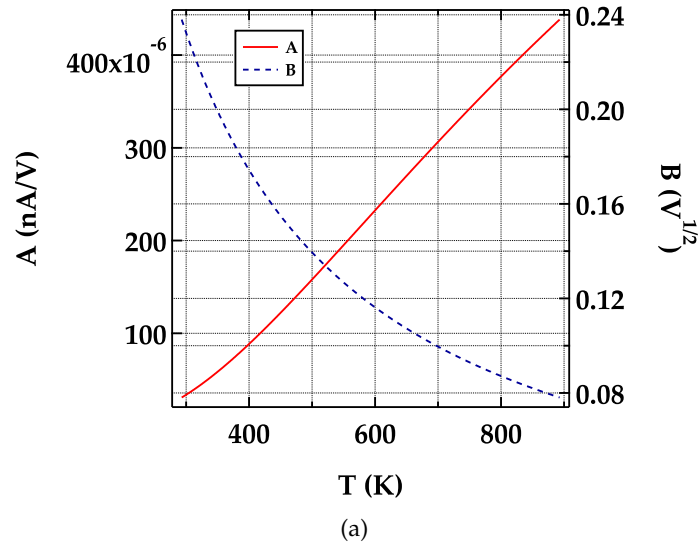


FIGURE 4.13 – Courbes calculées de l'évolution des paramètres  $A$  (courbe pleine) et  $B$  (courbe pointillée) en fonction de la température.

#### 4.4.1 Influence de la température sur le modèle

En reprenant les définitions des mécanismes FN et PF, on remarque qu'un changement de la température dans notre dispositif expérimental entraînera un changement sur les paramètres  $A$  et  $B$ . Ces paramètres régissent le mécanisme PF et permettent donc de changer l'importance relative de ce mécanisme par rapport à celui de Poole-Frenkel.

##### 4.4.1.1 Influence de la température sur les paramètres $A$ et $B$

Les équations 4.9 et 4.10 nous donnent les définitions des paramètres  $A$  et  $B$ . En les reprenant, il est possible d'étudier l'influence d'une variation de la température sur ces deux paramètres. Pour chacun des paramètres, il est possible de calculer une partie constante  $A_0$  et  $B_0$  ne dépendant pas de la température. Ces parties sont calculées à partir des valeurs de  $A$  et  $B$  calculées dans notre modèle et de la température  $T = 293K$  à laquelle ont eu lieu nos mesures :  $B_0 = BT = 70 K \cdot V^{-1/2}$  et  $A_0 = A \cdot \exp\left(\frac{E_a}{kT}\right) = 1.61 \times 10^{-3} nA/V$  en prenant  $E_a = 0.1 eV$ . A partir de ces valeurs constantes, on peut donc calculer les valeurs de  $A$  et  $B$  pour des températures différentes. La Figure 4.13a montre l'évolution des paramètres  $A$  et  $B$  en fonction de la température prise entre 293K et 893K. La courbe en trait continu présente l'évolution du paramètre  $A$ . Celui-ci croît de façon quasi-linéaire pour des températures entre 293K et 893K. Le trait discontinu présente l'évolution du paramètre  $B$  qui évolue en  $1/T$ .

Ces deux courbes vont nous permettre d'évaluer le changement de température dans notre modèle notamment son action sur le tracé de la chute de tension  $\Delta V$ , sur le courant  $I$  et sur les résistances relatives de chacun des mécanismes.

#### 4.4.1.2 Influence de la température sur la chute de tension $\Delta V$

L'Équation 4.4 montre qu'un changement de température dans le dispositif expérimental (et donc un changement de valeur pour  $A$  et  $B$ ) entraîne une modification de la chute de tension  $\Delta V$ . La Figure 4.14a montre l'évolution de  $\Delta V$  en fonction de la tension appliquée pour quatre températures différentes. Le trait continu, les tirets courts, medium et longs représentent respectivement les températures 293K, 493K, 693K et 893K. Nous avons vu dans la partie précédente (conduction dans la pointe de diamant) que l'évolution de  $\Delta V$  en fonction de la tension appliquée sur la pointe présentait trois comportements distincts. A basse tension, le courant est nul donc la chute de tension aussi. Pour des tensions intermédiaires,  $\Delta V$  devient linéaire par rapport à la tension de pointe. Puis, en augmentant la tension de pointe, une saturation apparaît.

Cette courbe montre deux points importants sur l'évolution de la chute de tension en fonction de la température. Le premier point est le changement de la pente de la partie linéaire. On remarque qu'en augmentant la température, la pente augmente elle aussi. Le deuxième point est l'apparition plus ou moins tôt de la zone de saturation. On remarque qu'en augmentant la température, la zone de saturation a lieu pour des tensions de pointe plus élevée. Ces deux points sont en accord avec le fait qu'une augmentation de la température amplifie le mécanisme Poole-Frenkel. Ce mécanisme permet à la chute de tension d'avoir des valeurs plus élevées (augmentation de la pente) et d'apparaître sur le modèle pour des plus hautes tensions de pointe (zone de saturation à plus hautes tensions de pointe).

#### 4.4.1.3 Influence de la température sur le courant d'émission

Pour mesurer l'influence de la température sur le courant d'émission, on peut utiliser une des équations 4.2 ou 4.3. Dans le cas de l'équation FN, les paramètres  $A$  et  $B$  n'apparaissent pas directement dans la formule mais sont présents dans le calcul théorique de la chute de tension  $\Delta V$ . Notre modèle étant entièrement construit sur le fait que les deux courants des équations sont égaux, le calcul en prenant l'une ou l'autre des formules donnera le même résultat.

La Figure 4.14b montre l'évolution du courant d'émission calculé avec l'équation FN en fonction de la tension appliquée sur la pointe pour quatre différentes températures. Sur cette courbe, on remarque qu'une augmentation de la température entraîne une chute du courant d'émission pour une même tension. Ce résultat est lui aussi en accord avec le fait qu'une augmentation de la température permet une augmentation de l'effet du mécanisme PF sur le modèle.

#### 4.4.1.4 Influence de la température sur les résistances relatives FN et PF

Les parties précédentes ont permis de montrer l'influence de la température sur les paramètres  $A$  et  $B$  et donc sur le courant d'émission et sur la chute de tension. Nous avons montré que ces changements tendaient vers une amplification du mécanisme PF quand la température augmentait. Pour tenter de quantifier les proportions de chacun des mécanismes, PF et FN, durant l'émission des électrons, nous retraçons les

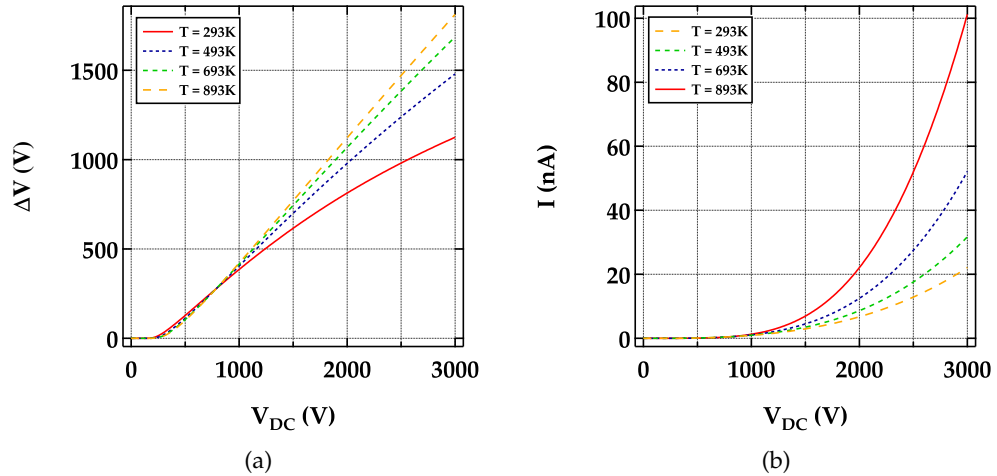


FIGURE 4.14 – Calcul numérique de la chute de tension  $\Delta V$  (a) et du courant d'émission  $I$  (b) en fonction de la tension appliquée sur la pointe pour différentes températures. Ces deux figures permettent de mettre en évidence l'effet de la température sur le mécanisme de Poole-Frenkel dans notre modèle.

résistances relatives en fonction de la tension de pointe appliquée pour différentes températures. La Figure 4.15 montre les résistances relatives normalisées des mécanismes PF et FN pour trois températures différentes. Pour les trois figures, le mécanisme FN est toujours largement dominant à basse tension étant donné le faible courant d'émission. En augmentant la température, on remarque qu'aux hautes tensions, le mécanisme PF devient dominant. La tension correspondant au point d'inversion du mécanisme dominant diminue en augmentant la température.

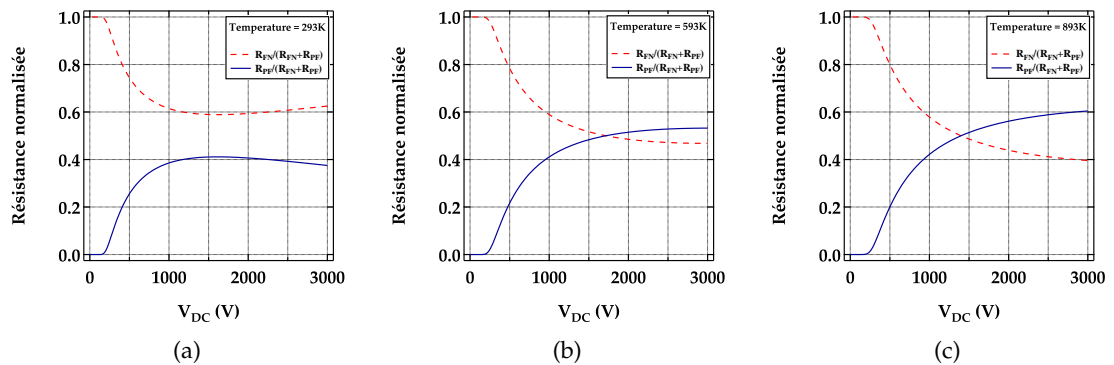


FIGURE 4.15 – Calcul des résistances relatives PF (trait continu) et FN (trait pointillé) pour trois différentes températures. En augmentant la température, le mécanisme PF devient dominant pour de plus faibles tensions de pointe appliquées.

## 4.5 CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats obtenus pour l'émission de champ de nanopointes de diamant. L'intérêt pour le diamant vient de son électro-affinité négative ainsi que de ces excellentes propriétés physiques (inertie, bonne conductivité thermique).

Dans la première partie, nous avons montré que le courant d'émission présentait une saturation par rapport à l'équation de Fowler-Hordheim, régissant l'émission de champ à froid de pointes métalliques. En mesurant l'énergie cinétique des électrons émis, nous avons remarqué la présence d'une chute de tension  $\Delta V$  le long de la pointe tel que :  $\Delta V = V_{DC} - V_a$ , où  $V_a$  est le potentiel à l'apex, mesuré grâce à l'énergie cinétique des électrons. Cette chute de tension doit sa présence à la faible conductivité du diamant. Nous avons alors montré que le régime de conduction des électrons dans la pointe est un régime de Poole-Frenkel dépendant de  $\Delta V$ .

Dans la deuxième partie du chapitre, nous avons présenté un modèle électrique simple afin de modéliser les courbes de courant d'émission et de chute de tension en fonction de  $V_{DC}$ . L'hypothèse principale du modèle est qu'à tout moment lors de l'émission statique, le courant de conduction à l'intérieur de la pointe est le même que le courant d'émission à l'apex. Cette égalité sur les courants nous permet de remonter aux paramètres  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et  $D$ , constantes dépendants entres autres du travail de sortie et de la constante diélectrique du matériau.

Dans la dernière partie, nous avons prédit le comportement du courant d'émission, ainsi que de la chute de tension en fonction de la température en utilisant les résultats du modèle. Les courbes calculées n'ont malheureusement pas pu être testées expérimentalement puisque nous n'avons pas les technologies pour refroidir ou chauffer la pointe.



## ÉMISSION D'ÉLECTRONS DE NANOPONTES DE DIAMANT SOUS ILLUMINATION LASER

---

### Sommaire

---

5.1	Rappels sur la photoémission à partir de nanopointes métalliques	96
5.2	Cartographies d'émission des électrons	96
5.3	Dynamique temporelle de l'émission	98
5.4	Étude du courant d'émission en fonction de l'énergie des impulsions du laser	101
5.4.1	Émission multiphotonique	103
5.4.2	Mesure de la chute de tension le long de la pointe lors de l'émission optique	104
5.4.3	Courant d'émission optique en fonction de la tension appliquée sur la pointe	105
5.5	Effet de seuil dans la transition entre les deux régimes	107
5.6	Effet du taux de répétition	107
5.7	Conclusion sur le modèle qualitatif	109
5.8	Modélisation du courant de remontée	110
5.9	Conclusion	112

---

Dans le chapitre précédent, nous avons étudié le mécanisme d'émission de nanopointes de diamant soumises à une tension statique  $V_{DC}$ . Nous avons vu que cette émission différait de celle de nanopointes métalliques notamment à cause de la présence d'une chute de tension  $\Delta V$  le long de la pointe. Ces deux pointes ont pu être réutilisées afin d'étudier leur émission sous illumination laser. Des séries de mesures faites en fonction de l'énergie par impulsion et du taux de répétition du laser ainsi que pour différentes tensions statiques appliquées sur la pointe nous ont permis de définir deux régimes d'émission différents en fonction des paramètres.

Dans ce chapitre, nous décrivons l'ensemble des résultats obtenus pour la photoémission de nanopointes de diamant. Le laser utilisé est un laser fibré Tangerine (300 fs de durée, 1030 nm de longueur d'onde focalisé sur l'apex avec un rayon de quelques micromètres). Toutes nos mesures seront faites pour une tension statique appliquée sur la pointe supérieure à la tension seuil d'émission car nos systèmes de détection ne permettaient pas de voir de l'émission en-dessous. Dans la première partie, nous rappelons rapidement les caractéristiques de l'émission multiphotonique d'une pointe métallique afin de les comparer dans la suite à l'émission caractéristique des nanopointes de diamant. Dans les parties suivantes, nous présentons les différentes observations faites sur l'émission optique des nanopointes de diamant. L'ordre dans lequel nous les présentons n'est pas l'ordre chronologique dans lequel nous les avons observées. Nous choisissons un ordre que nous pensons plus adéquat pour la compréhension du phénomène. Les observations décrites nous permettront d'établir



un modèle qui reprendra le circuit électrique simple utilisé dans le cas de l'émission purement statique (partie 4.3) mais réajusté afin de prendre en compte l'émission due à l'illumination laser. Dans la dernière partie, nous utilisons le modèle établi afin de retrouver quantitativement les données expérimentales mesurées.

### 5.1 RAPPELS SUR LA PHOTOÉMISSION À PARTIR DE NANOPOINTES MÉTALLIQUES

Dans la partie 3.4, nous avons étudié la photoémission de nanopointes de tungstène. Nous avons vu, que sous l'effet d'un laser femtoseconde illuminant leur apex, le courant d'émission  $I$  de ces pointes de tungstène est proportionnel à la norme du champ électrique  $E$  à la puissance  $2n$  avec  $n$  un exposant proche du nombre de photons minimum nécessaire à un électron pour dépasser le travail de sortie ( $J \propto E^{2n}$ ).

Dans notre étude sur les nanopointes de tungstène, tous les résultats de la partie 3.4 dans le cas d'une émission sous illumination laser ont été obtenus pour une tension statique  $V_{DC}$  appliquée sur la pointe inférieure au seuil de détection. Entre deux impulsions laser, aucune émission statique ne prenait donc place. Les résultats de la partie 3.4.4 montrent qu'entre deux impulsions laser, l'émission statique revient quasiment instantanément, avec un temps de remontée inférieur à notre capacité à le mesurer ( $< 50$  ns). Cette caractéristique, intuitive pour un matériau métallique, sera comparée dans la suite au cas de nanopointes de diamant.

Dans la suite de cette partie, nous discuterons des différentes observations faites sur l'émission sous illumination laser de nanopointes de diamant. Ces résultats, très différents de ceux obtenus pour les nanopointes métalliques, nous permettront d'établir un modèle réajusté par rapport à celui établi pour le cas de l'émission statique (partie 4.3).

### 5.2 CARTOGRAPHIES D'ÉMISSION DES ÉLECTRONS

Dans cette partie, nous décrivons les mesures de cartographies de l'émission des électrons pour une nanopointe de diamant illuminée à son apex par un laser femtoseconde. La Figure 5.1 présente les résultats pour différentes énergies du laser jusqu'à 180 nJ/impulsion. On rappelle qu'une tension est toujours appliquée sur la pointe,  $V_{DC} = 500$  V, supérieure au seuil statique de l'émission de champ à froid.

Sur les cartographies, la tâche d'émission pour les basses énergies jusqu'à 30 nJ/impulsion (Figure 5.1b) est la même que celle en émission purement statique (Figure 5.1a). Ce résultat peut s'expliquer par un effet de seuil de détection dû à une trop faible probabilité pour le système d'absorber des photons. On retrouve cet effet pour des nanopointes métalliques lors d'une émission multiphotonique par exemple. A hautes énergies, au-delà de 100 nJ/impulsion, la tâche d'émission se transforme en un anneau non-symétrique dont le rayon diminue avec l'énergie par impulsion du laser. Entre ces deux régimes, pour des énergies entre 30 nJ/impulsion et 100 nJ/impulsion, nous ne détectons aucun électron sur notre détecteur. Des mesures de courant faites au picoampèremètre nous permettent de nous assurer que des électrons sont bien émis

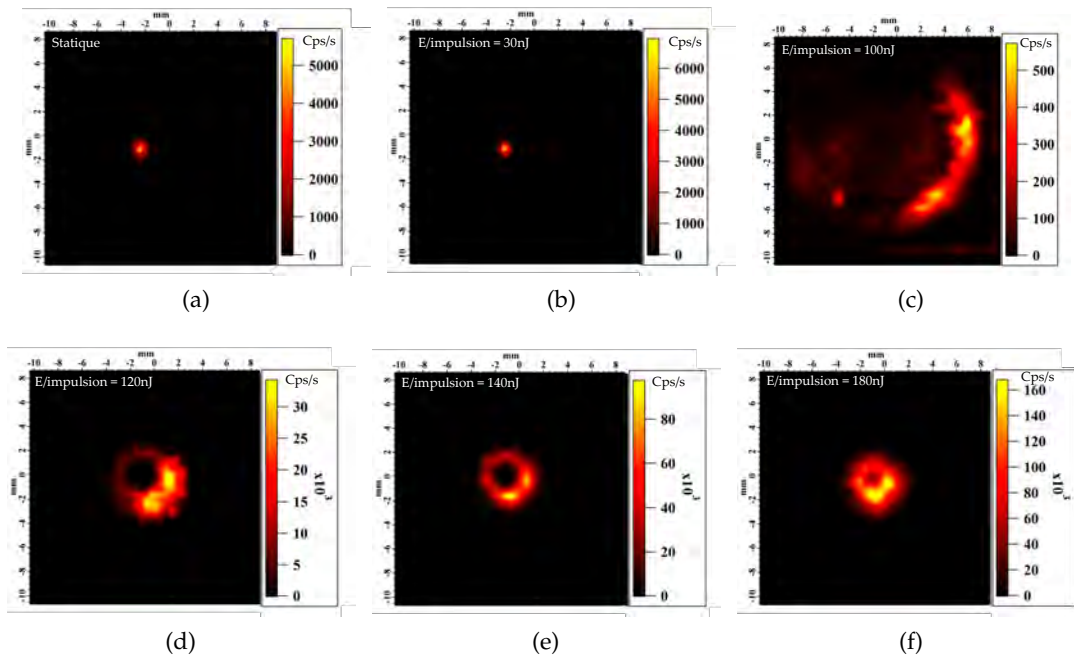


FIGURE 5.1 – Image des cartographies de l'émission d'électrons pour différentes énergies du laser à 500 V. (a) Cas statique sans aucune illumination laser. Les cartographies montrent une tâche d'émission identique à celle en statique pour des basses énergies du laser. En augmentant l'énergie, on voit l'apparition d'un anneau d'émission dont le rayon diminue avec la puissance du laser. Pour des énergies intermédiaires entre 30 nJ/impulsion et 100 nJ/impulsion, aucun électron n'est détecté sur le détecteur.

pour ces énergies du laser malgré leur absence sur le détecteur. L'hypothèse la plus probable est que l'anneau de la tâche d'émission détecté à hautes énergies soit déjà présent pour ces énergies intermédiaires mais son rayon est trop grand par rapport aux dimensions spatiales de notre détecteur, ce qui ne nous permet pas de détecter les électrons émis.

Nous avons mesuré l'énergie cinétique des électrons aux quatre coins de l'anneau. Leur énergie ne varie que de  $\sim 6\%$  ( $\sim 10$  eV pour  $V_{DC} = 300$  V). Cette différence vient probablement du fait que le spectromètre mesure l'énergie cinétique des électrons selon la direction verticale. En décalant le détecteur, on sélectionne des électrons dont la composante horizontale du vecteur vitesse est beaucoup plus importante. Cette composante horizontale n'étant pas mesurée, elle induit un décalage de valeur sur l'énergie mesurée des électrons. Cette différence étant relativement faible, la valeur de l'énergie cinétique des électrons en un point de l'anneau sera considérée pour la suite comme la valeur de l'énergie cinétique de l'ensemble des électrons émis.

Ces résultats, complètement différents de ceux obtenus lors de l'émission multiphotonique d'une nanopointe métallique, mettent en lumière la présence d'un phénomène d'émission exotique pour ce type de nanopointes. Dans la suite, nous présentons les résultats des mesures de courant au moment de l'impulsion laser ainsi qu'entre deux impulsions consécutives.

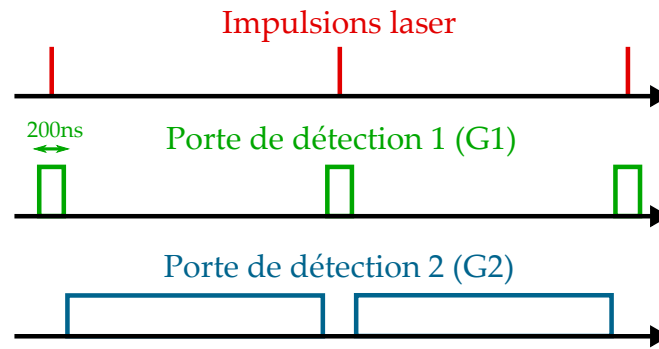


FIGURE 5.2 – Schéma de la méthode de mesure de courant au niveau de l'impulsion laser et entre les impulsions laser. Une porte de détection de 200 ns est placée sur le discriminateur de notre système de détection au niveau de l'arrivée de l'impulsion laser afin de ne mesurer que l'émission laser. Une deuxième porte placée entre les impulsions permet de ne mesurer que l'émission statique entre les impulsions.

### 5.3 DYNAMIQUE TEMPORELLE DE L'ÉMISSION

Dans cette partie, nous étudions l'émission entre les impulsions laser d'une nanopointe de diamant illuminée par un laser femtoseconde lorsqu'elle est soumise à une tension statique  $V_{DC}$  supérieure au seuil de détection de son émission de champ à froid. Pour cela, on applique une tension statique  $V_{DC} = 500$  V sur la pointe puis on l'illumine avec un laser femtoseconde à une énergie par impulsion  $E = 200$  nJ/impulsion. Une porte de détection a été utilisée afin de permettre à notre détecteur de mesurer l'émission soit pendant l'arrivée de l'impulsion laser (Gate 1) soit entre deux impulsions laser consécutives (Gate 2). La durée de la porte de détection (G1) est prise égale à 200 ns, bien supérieure à la durée d'une impulsion laser (300 fs) et suffisamment grande pour inclure les rebonds du signal électrique en sortie des MCP. La durée de la porte de détection (G2) dépend du taux de répétition du laser et donc de la durée entre deux impulsions consécutives. La Figure 5.2 présente un schéma récapitulatif de notre méthode de mesure. Une porte de détection permet de mesurer le courant électrique au moment de l'arrivée de l'impulsion (G1) tandis que la deuxième permet de mesurer le courant électrique entre deux impulsions consécutives (G2).

Les mesures décrites précédemment sont présentées sur la Figure 5.3 pour deux taux de répétition du laser différents. Le courant d'émission est mesuré à partir de cartographies d'émission des électrons car il ne nous est pas possible de placer la porte de détection sur le picoampèremètre (résolution temporelle insuffisante). Celle-ci est donc placée directement sur le discriminateur placé à la suite des MCP. La Figure 5.3a présente une cartographie de l'émission des électrons à un taux de répétition du laser de 10 kHz pour une porte de détection placée au niveau de l'impulsion laser (G1). Sur cette cartographie, on remarque une tâche d'émission caractéristique de l'émission laser de nos nanopointes de diamant. Le rayon de celle-ci est beaucoup plus important que celui pour le cas de l'émission statique. Ce résultat est en accord avec les résultats sur des nanopointes de tungstène. La Figure 5.3b présente la même mesure dans le cas d'une porte de détection prise entre deux impulsions consécutives (G2). Ici, contrairement au cas des pointes de tungstène, on observe un courant statique nul malgré une tension  $V_{DC}$  appliquée sur la pointe supérieure au seuil d'émission de

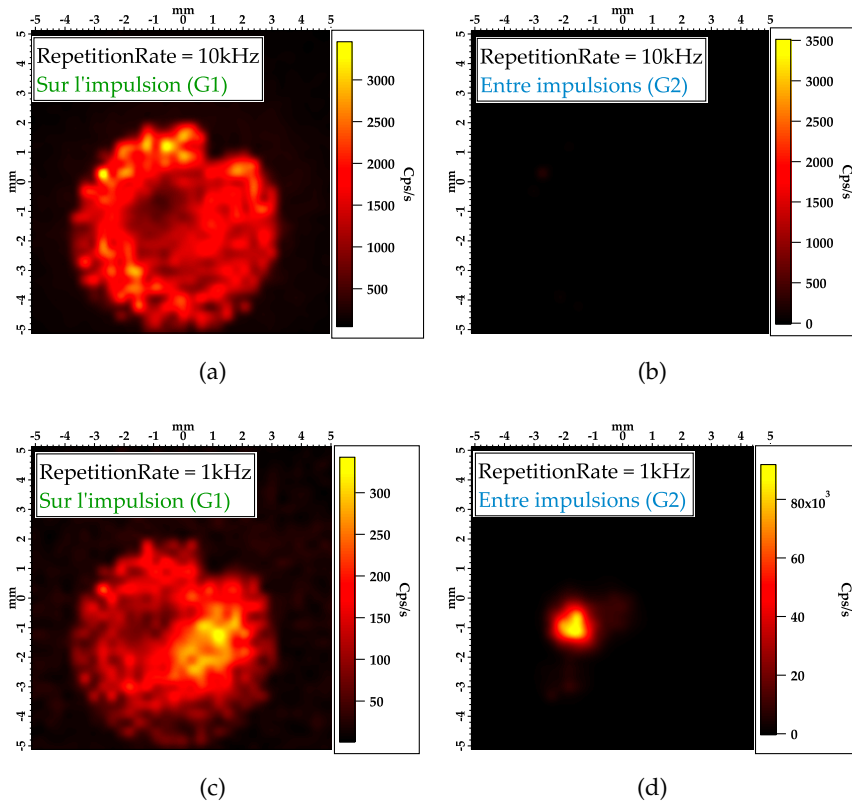


FIGURE 5.3 – Cartographies d’émission des électrons pour une nanopointe de diamant illuminée par un laser femtoseconde à 200 nJ/impulsion. (a) et (b) Mesure du courant au niveau des impulsions (a) et entre les impulsions (b) pour un taux de répétition de 10 kHz. Aucune émission statique n’apparaît entre les impulsions malgré une tension statique suffisante pour de l’émission de champ à froid,  $V_{DC} = 500$  V. En reprenant la même mesure à 1 kHz de taux de répétition, (c) et (d), on remarque une émission statique entre les impulsions. L’émission laser semble annuler l’émission statique présente entre les impulsions.

champ à froid. Il semble donc, à la lumière de ces résultats, que l’émission due à l’illumination laser annule l’émission statique entre deux impulsions. Ces résultats ont pu être reproduits à l’identique pour des taux de répétition supérieurs à 10 kHz jusqu’à 2 MHz.

Les mesures précédentes ont été reproduites pour des taux de répétition inférieurs à 10 kHz. La Figure 5.3c présente les résultats obtenus pour un taux de répétition de 1 kHz et une porte de détection placée au niveau de l’impulsion (G1). Dans ce cas, on observe une tâche d’émission identique à celle à 10 kHz avec un facteur 10 sur le courant entre les deux. Ce facteur provient directement du rapport entre les deux taux de répétition. Si l’on reproduit la mesure en plaçant la porte de détection entre les impulsions (G2) (Figure 5.3d), on remarque cette fois la présence d’une tâche d’émission caractéristique de l’émission statique. La tâche d’émission statique est plus intense, 80000 cps/s au maximum, et plus réduite dans l’espace. Si l’on compare cette tâche d’émission avec celle obtenue dans un cas purement statique à la même tension

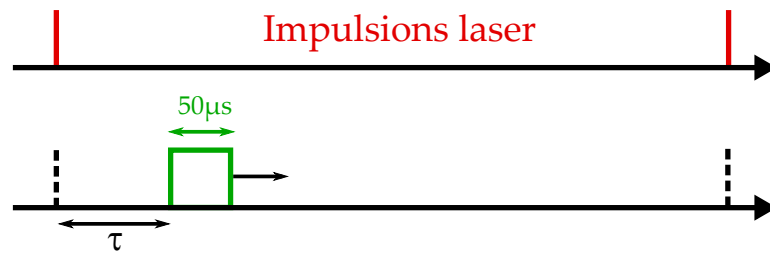


FIGURE 5.4 – Schéma de la mesure du temps de remontée du courant statique entre deux impulsions laser.

appliquée sur la pointe, (Figure 5.1a), on observe qu'elles sont identiques.

Ces mesures ont été refaites pour des taux de répétition entre 1 kHz et 10 kHz. Dans chaque cas, la tâche d'émission statique réapparaissait entre deux impulsions mais le rapport entre la valeur du courant dans ce cas et la valeur du courant en émission purement statique augmentait avec le taux de répétition du laser. En d'autres termes, plus le temps séparant deux impulsions consécutives était grand, plus le courant d'émission statique entre les impulsions était proche du courant purement statique, jusqu'à atteindre sa valeur pour des taux de répétition faibles. Il apparaît donc qu'à l'arrivée d'une impulsion laser, des électrons soient émis quasi instantanément et qu'à la suite de ça le courant statique ait besoin d'un certain temps pour pouvoir revenir à son niveau maximal.

Il est possible de mesurer le temps nécessaire au courant statique pour réapparaître entre deux impulsions. Pour cela, nous utilisons une porte de détection de 50  $\mu\text{s}$  que nous déplaçons entre deux impulsions à 1 kHz de taux de répétition (Figure 5.4). Le placement de la première porte a été fait au plus près à la suite de l'impulsion (1  $\mu\text{s}$ ) en évitant tout de même tout électron provenant de l'émission optique. On déplace ainsi la porte de détection jusqu'à l'impulsion suivante. La Figure 5.5 présente la mesure du courant d'émission au cours d'une porte de détection en fonction de la durée entre l'impulsion et la porte de détection déplacée pour plusieurs tensions  $V_{DC}$  appliquées sur la pointe. Pour chacun des cas, on remarque un phénomène de « remplissage » ressemblant aux mécanismes de premier ordre de type charge d'un condensateur dans un circuit RC, avec un temps caractéristique de l'ordre de la centaine de  $\mu\text{s}$ .

Ce résultat pourrait s'expliquer par la présence d'un condensateur accumulant les charges au bout de la pointe. Ici, il agit en ralentissant la remontée du courant statique entre deux impulsions consécutives du laser. De même, on observe un temps caractéristique de la remontée du courant qui change en fonction de la tension statique appliquée sur la pointe. Ce résultat peut s'expliquer par le fait qu'un changement sur la tension appliquée induit directement une variation de la résistance le long de la pointe de diamant et donc un changement sur le temps caractéristique de remontée du courant.

Les mesures nous ont permis de montrer que l'émission due à une illumination laser sur nos échantillons engendrait un phénomène de charge le long de la pointe de diamant entre les impulsions. Dans la suite, on s'intéresse à l'émission optique en

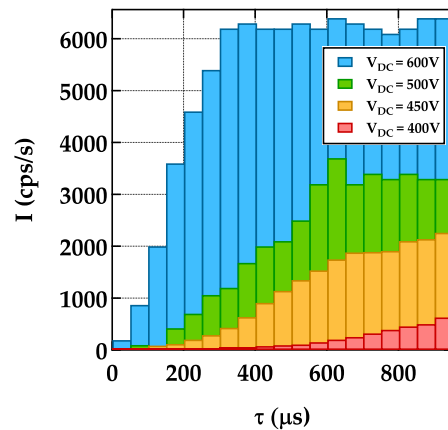


FIGURE 5.5 – Mesure du courant d'émission mesuré sur une porte de détection de 50  $\mu\text{s}$  en fonction du temps entre l'impulsion et la porte de détection pour différentes tensions de pointe. Le taux de répétition du laser est pris égal à 1 kHz. Les courants mesurés prennent l'aspect de la charge d'un système du premier ordre type RC. On remarque que le temps caractéristique de la charge dépend de la tension appliquée sur la pointe.

elle-même notamment en la comparant à l'émission multiphotonique bien connue pour des échantillons métalliques.

#### 5.4 ÉTUDE DU COURANT D'ÉMISSION EN FONCTION DE L'ÉNERGIE DES IMPULSIONS DU LASER

Dans la partie précédente, nous avons décrit les phénomènes purement statique se déroulant entre deux impulsions lasers. Ici, nous nous focalisons sur l'émission due à l'illumination du laser à l'apex de la nanopointe de diamant. En utilisant les mesures de courant d'émission en fonction de l'énergie par impulsion du laser, il est possible de déterminer deux régimes d'émission différents dépendant entre autres de l'énergie du laser. Ces deux régimes vont être étudiés dans les parties suivantes et nous permettrons de réajuster le modèle électrique statique fait dans la partie 4.3 en y appliquant un mécanisme d'émission optique.

Nous avons étudié le courant d'émission de nanopointes de diamant illuminées par un laser femtoseconde en fonction de l'énergie par impulsion de celui-ci pour une tension appliquée sur la pointe  $V_{DC} = 500 \text{ V}$ . La Figure 5.6a présente les résultats de ces mesures pour un taux de répétition de 500 kHz. Les ronds bleus représentent les points expérimentaux du courant d'émission mesuré au picoampèremètre. On remarque qu'à faible énergie du laser ( $< 50 \text{ nJ/impulsion}$ ), le courant d'émission est le même que le courant d'émission statique à la même tension de pointe sans laser ( $\sim 50 \text{ pA}$ ). Ce résultat rejoint les mesures de cartographies faites dans la partie 5.2 qui montraient que les tâches d'émission en statique et celles à faibles énergies du laser étaient identiques. Pour ces faibles énergies, la probabilité d'absorption de photons est trop faible pour permettre une émission optique, ce qui permet une émission statique sans discontinuité. En augmentant l'énergie des impulsions, on observe une

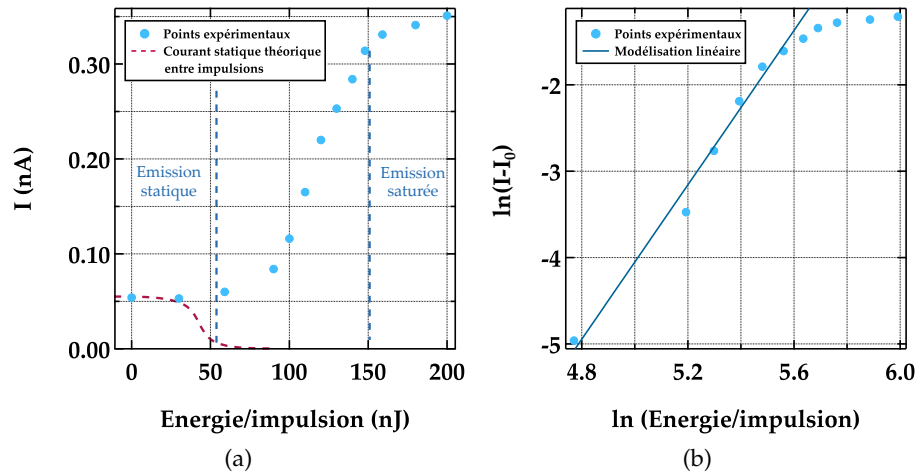


FIGURE 5.6 – (a) Courbe du courant d'émission en fonction de l'énergie par impulsion du laser. Le taux de répétition du laser est pris égal à 500 kHz ce qui assure de n'avoir aucune émission statique entre les impulsions laser à partir du moment où l'émission laser a commencé. Les cercles bleus représentent les points expérimentaux. On remarque un régime d'émission statique à faibles énergies des impulsions et un régime de saturation du courant pour les hautes énergies. Entre les deux, le courant semble suivre une loi multiphotonique. Les tirets violets représentent le courant statique théorique chutant lors de l'arrivée de l'émission laser. (b) Courbe de (a) tracée en coordonnées logarithmiques sur laquelle le courant statique  $I_0$  a été soustrait. La première partie de la courbe peut être modélisée par une droite de pente  $\sim 4.22$  ce qui implique la présence d'une émission multiphotonique où au moins 4 photons ont été absorbés par le système pour permettre l'émission au-dessus de la barrière de potentiel d'un électron.

augmentation du courant d'émission de façon non-linéaire suivie par un régime de saturation. A saturation, le courant mesuré est de 0.35 nA, ce qui correspond à environ 4400 électrons par impulsion laser. Dans la partie précédente, nous avons vu qu'à 500 kHz de taux de répétition, aucune émission statique n'avait le temps de prendre place entre les impulsions pour les énergies où la photoémission était possible. Le courant mesuré à partir de  $\sim 50$  nJ/impulsion n'est donc composé que d'électrons de photoémission. En-dessous de ces énergies, le courant mesuré est purement statique. La courbe pointillée présente une estimation du courant statique entre les impulsions. Notre hypothèse est que ce courant diminue jusqu'à atteindre une valeur nulle lorsque la photoémission pompe un courant égal au courant statique. Malheureusement, aucune mesure réelle sur ce courant en fonction de l'énergie du laser n'a pu être effectuée.

En observant la courbe du courant d'émission en fonction de l'énergie du laser, on remarque trois régimes d'émission différents (émission statique, photoémission saturée et une zone intermédiaire correspondant elle aussi à de la photoémission). Dans la suite de cette partie, les deux régimes de photoémission vont être étudiés à part. Nous verrons que le régime à basse énergie du laser peut être modélisé par un mécanisme d'émission multiphotonique.

### 5.4.1 Émission multiphotonique

La courbe du courant d'émission d'une nanopointe de diamant en fonction de l'énergie du laser illuminant son apex a permis de mettre en lumière la présence de deux régimes de photoémission. A basse énergie, le courant augmente de manière non-linéaire après avoir dépassé un « seuil » en énergie du laser. Ce comportement rappelle le mécanisme d'émission multiphotonique qui régit l'émission des nanopointes métalliques illuminées par un laser.

Afin de vérifier l'hypothèse d'une émission multiphotonique pour nos nanopointes de diamant, on reprend la mesure du courant d'émission en fonction de l'énergie du laser (Figure 5.6a). Le courant d'émission multiphotonique  $I$  évoluant comme :  $I = E^n$  avec  $E$  l'énergie des impulsions du laser, on s'attend à obtenir une droite pour la première moitié de la courbe (émission non saturée), si elle est retracée en coordonnées logarithmiques. Avant cela, on soustrait au courant d'émission la valeur du courant statique aux faibles énergies ( $\sim 0.5$  nA). Comme il nous est difficile de connaître avec précision pour quelles énergies le courant d'émission statique disparaît complètement, nous avons fait le choix de le soustraire pour toute la courbe. La Figure 5.6b présente la courbe qui nous intéresse ( $\ln(I - I_0)$  en fonction de  $\ln(E)$ , avec  $I_0$  le courant statique sans laser). Les ronds bleus représentent les points expérimentaux. On remarque qu'il est possible de modéliser la première partie de la courbe par une droite. La pente de la droite de modélisation nous donne alors l'exposant  $n$  qui correspond à une valeur proche du nombre d'électrons minimum que le système doit absorber pour émettre un électron au-dessus du travail de sortie. Dans notre cas, la valeur de  $n$  sera sous-évaluée à cause du choix de soustraire le courant statique à  $E = 0$  pour toute la courbe. On prend donc cette valeur comme une valeur minimale de  $n$ . Sur la Figure 5.6b, la droite représente la modélisation linéaire des premiers points expérimentaux. On trouve une pente de  $4.22 \pm 0.13$  qui correspondrait alors à l'absorption de 4 photons par le système pour permettre l'émission d'un électron au-dessus de la barrière de potentiel. La hauteur de cette barrière peut être évaluée à partir de l'énergie d'un photon à 1030 nm ( $h\nu = 1.2$  eV) :  $\phi \sim 5$  eV correspond au travail de sortie. Dans la suite, nous comparons cette valeur avec d'autres résultats obtenus sur des nanopointes de diamant.

Très récemment, nos collaborateurs à Rouen ont obtenu des résultats similaires pour des nanopointes de diamant sans  $\Delta V$  [BORZ et al. (2019)]. Ils ont mesuré le courant d'émission pour une pointe illuminée par un laser femtoseconde à 1040 nm et sont remontés à un ordre multiphotonique  $n \sim 4$ . De même, une équipe d'HOMMELHOFF a effectué le même type de mesure pour des pointes de tungstène recouvertes d'une couche de diamant [TAFEL et al. (2019a)]. Leurs mesures ont été faites pour différentes longueurs d'onde de faisceau laser. Pour chaque cas, ils ont retrouvé une valeur de hauteur de barrière proche de 5 eV [TAFEL et al. (2019b)].

Les observations obtenues jusqu'à ce point du manuscrit nous permettent de reprendre l'hypothèse principale du modèle de l'émission sous illumination laser, qui fait état d'un mécanisme d'émission optique annulant pendant un certain temps l'émission statique entre les impulsions. L'émission purement optique se comporte



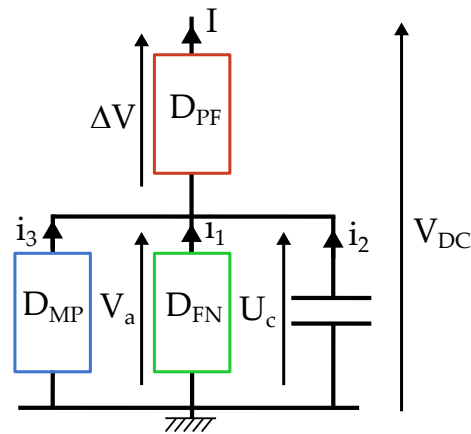


FIGURE 5.7 – Schéma électrique de l'émission d'électrons d'une nanopointe de diamant sous illumination laser. On reprend le schéma de la partie statique dans lequel on ajoute une résistance  $D_{MP}$  (MultiPhotonique) afin de modéliser l'émission multiphotonique et un condensateur qui modélise l'accumulation des charges à l'apex. Un tel schéma implique donc que l'émission laser soit gouvernée par la loi de Poole-Frenkel, conduction des électrons le long de la pointe de diamant.

alors comme si elle vidait un réservoir de charges à l'apex de la pointe. En reprenant le modèle électrique utilisé dans la partie 4.3, on remarque qu'il est facile de le réutiliser en intégrant le cas de l'émission optique. La Figure 5.7 présente un schéma du modèle électrique réajusté. Dans ce circuit électrique simple, la résistance MP (MultiPhotonique) se substitue à celle de Fowler-Nordheim lors de l'émission laser. L'ajout du condensateur permet de décrire le mécanisme de charge de la pointe entre deux impulsions. En reprenant ce circuit, on remarque qu'en régime de photoémission, le courant de photoémission devrait suivre une loi Poole-Frenkel une fois dans le régime permanent. La partie suivante se concentrera sur la partie du courant qui sature à haute énergie du laser. Nous verrons que ce courant d'émission dans le régime saturé suit en fait la loi de conduction des électrons le long de la pointe (voir partie 4.2.2).

#### 5.4.2 Mesure de la chute de tension le long de la pointe lors de l'émission optique

La Figure 5.6a a mis en lumière la présence d'une saturation du courant d'émission optique pour les hautes énergies laser. En reprenant le modèle électrique de la partie 4.3, nous avons rajouté une résistance modélisant l'émission multiphotonique. Ce modèle électrique nous impose cependant que l'émission optique soit gouvernée par la loi de conduction des électrons le long de la pointe de diamant, i.e. la loi Poole-Frenkel (PF). Dans cette partie, nous démontrons que le courant de photoémission pour les hautes énergies suit bien une loi de Poole-Frenkel ( $J \propto A\Delta V \cdot \exp(B\sqrt{\Delta V})$ ).

Pour la suite, on fait l'hypothèse que les paramètres régissant la loi de Poole-Frenkel ( $A$  et  $B$ ) ne change pas lors de l'illumination laser. Cette hypothèse est possible puisque le laser n'éclaire que l'apex de la pointe sur  $3 \mu\text{m}$  et non sur toute sa longueur ( $\sim 35 \mu\text{m}$ ). Le mécanisme de conduction le long de la pointe n'est donc a priori pas modifié par l'illumination laser. A partir de cette hypothèse, il est possible de déduire

que le changement sur le courant d'émission entre l'émission statique et l'émission laser ne peut alors venir que d'un changement sur la chute de tension  $\Delta V$  le long de la pointe de diamant. De plus, en reprenant la mesure du courant d'émission en fonction de l'énergie du laser (Figure 5.6a), on remarque que le courant, une fois à saturation n'évolue que très peu. La loi de Poole-Frenkel étant non-linéaire, un changement aussi fin sur la valeur du courant se traduira par une variation peu perceptible sur la valeur de  $\Delta V$ . En reprenant la Figure 5.6a ainsi que les hypothèses énoncées ci-dessus, on s'attend à ce que la chute de tension  $\Delta V$  soit différente pour les électrons émis durant l'émission laser par rapport à ceux émis durant l'émission statique. On s'attend aussi à ce que  $\Delta V$  ne change quasiment pas en fonction de l'énergie du laser.

Nous présentons ici les résultats de la mesure de la chute de tension  $\Delta V$  le long de la pointe de diamant en fonction de la tension statique appliquée sur la pointe à différentes énergies par impulsion. Dans notre dispositif expérimental, la mesure de  $\Delta V$  se fait à partir du spectromètre pour les électrons détectés par le détecteur. Dans la Figure 5.1, nous avons vu que pour certaines énergies du laser, aucun électrons n'arrivaient sur notre détecteur à cause de la présence d'une tâche d'émission en forme d'anneau trop grande pour la résolution spatiale de notre détecteur. Par conséquent, la mesure de  $\Delta V$  pour ces énergies là est impossible. Les mesures seront donc faites pour les énergies basses du laser, correspondant au cas de l'émission purement statique, et pour les hautes énergies, correspondant au cas de l'émission optique saturée.

La Figure 5.8 présente les résultats de la mesure de  $\Delta V$  en fonction de la tension appliquée sur la pointe  $V_{DC}$  pour différentes énergies du laser. On remarque la présence de deux régimes différents. Dans le premier, pour les basses énergies du laser,  $\Delta V$  a la même valeur que dans le cas statique (voir partie 4.2.2.1). Ce résultat rejoint les précédentes observations faites à des énergies du laser aussi basses. L'illumination laser de l'apex de la pointe n'influe en rien l'émission purement statique. En regardant aux hautes énergies, on remarque que  $\Delta V$  est différent par rapport au cas statique mais ne varie que très peu en fonction de l'énergie du laser. Il est possible de modéliser la chute de tension lors de la photoémission  $\Delta V_{laser}$  en fonction de la tension  $V_{DC}$  par une droite de pente 0.511. Cette valeur est comparable à la valeur de la pente de la droite obtenue dans le cas statique (partie 4.2.2), mais cette fois sans ordonnée à l'origine.

Dans la partie suivante, nous utiliserons les données mesurées de  $\Delta V$  en émission laser afin de montrer que l'émission d'électrons sous illumination laser est toujours compatible avec le mécanisme Poole-Frenkel (les électrons qui sortent à l'apex transitent le long de la pointe par PF). Pour cela, nous verrons que les courbes du courant d'émission en fonction de la tension appliquée sur la pointe peuvent être tracées en coordonnées PF afin de confirmer l'hypothèse de notre modèle électrique.

#### 5.4.3 Courant d'émission optique en fonction de la tension appliquée sur la pointe

En mesurant la valeur du courant d'émission optique en fonction de la tension statique appliquée sur la pointe, il est possible de voir si celui-ci peut être modélisé par la loi de Poole-Frenkel en utilisant la valeur de la chute de tension  $\Delta V$  mesuré

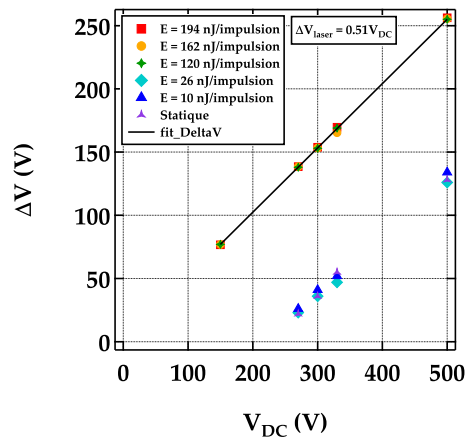


FIGURE 5.8 – Mesure de la chute de tension  $\Delta V$  la long de la pointe en fonction de la tension appliquée sur celle-ci pour différentes énergies par impulsion du laser. On note que le  $\Delta V$  ne diffère pas du statique pour les faibles énergies du laser. A hautes énergies, le  $\Delta V$  est différent de celui obtenu en statique mais il ne varie pas en fonction de l'énergie du laser.

dans la Figure 5.8. Avant ça, on rappelle au regard de la Figure 5.6a, que l'émission optique de la pointe apparaît à partir d'une certaine énergie du laser. Nous verrons dans la suite que cette énergie dépend de la tension statique appliquée sur la pointe. De la même façon, pour une énergie du laser fixe, il existe une tension  $V_{DC}$  seuil à partir de laquelle l'émission statique reprend le dessus sur le courant laser. Pour le tracé du courant d'émission en fonction de la tension appliquée sur la pointe, nous présentons les résultats pour deux énergies différentes des impulsions. Une pour laquelle le courant d'émission est toujours égal au courant statique pour les tensions utilisées et une deuxième pour laquelle le seuil de retour en émission statique se trouve à haute tension.

La Figure 5.9a présente les résultats des mesures faites pour deux énergies par impulsion différentes (400 nJ/impulsion en rouge et 100 nJ/impulsion en bleu). Nous avons rajouté sur la courbe la mesure du courant statique sans aucune illumination laser (tirets violet). On remarque que la courbe bleue possède un courant d'émission purement statique. Cela vient du fait qu'à cette énergie des impulsions, les tensions statiques appliquées étaient bien trop importantes pour permettre une émission optique. Dans le cas de la courbe pour des impulsions laser de hautes énergies (rouge), on remarque que celle-ci possède une émission optique à basse tension mais rejoint la courbe statique pour des tensions autour de 1000 V. La partie qui nous intéresse ici est celle pour les basses tensions où l'émission est purement optique. Le laser est pris à un taux de répétition de 500 kHz afin de n'avoir aucune émission statique entre les impulsions.

Le modèle électrique établi dans la partie 4.3 obligeait le courant d'émission Fowler-Nordheim à dépendre exclusivement du courant de charge de la pointe, i.e. du courant de conduction des électrons le long de la pointe. Dans la partie purement statique de notre étude sur ces échantillons, nous avons établi que cette conduction était régit

par la loi de Poole-Frenkel dépendant de la tension de long de la pointe  $\Delta V$ . Cette tension a été mesurée dans le cas d'une émission purement optique. Nous utilisons cette tension mesurée afin de modéliser la courbe à haute énergie de la [Figure 5.9a](#) en coordonnées PF ( $\ln(I/\Delta V) \propto \sqrt{\Delta V}$ ). La [Figure 5.9b](#) présente le résultat de cette modélisation. On remarque que la partie qui nous intéresse, correspondant à une émission purement optique, peut être modélisée par une droite. On peut alors comparer les paramètres  $A$  et  $B$  de cette droite avec les paramètres  $A_0$  et  $B_0$  trouvés pour une émission purement statique ([Tableau 4.1](#)). Dans le cas optique, on trouve  $A = 7.34 \times 10^{-5} \text{ nA/V}$  et  $B = 0.218 \text{ V}^{-1/2}$  contre  $A_0 = 3.07 \times 10^{-5} \text{ nA/V}$  et  $B_0 = 0.238 \text{ V}^{-1/2}$  dans le cas statique. On montre ici que dans les deux cas, les paramètres  $A$  et  $B$  reste du même ordre de grandeur. En traçant la même courbe mais pour le cas où l'on prend le  $\Delta V$  statique, on voit que la courbe du courant de photoémission est une droite pour les hautes tensions et qu'elle rejoint le courbe d'émission purement statique ([Figure 5.9c](#)).

Ce résultat valide donc notre hypothèse selon laquelle l'émission optique agit peu sur les paramètres de la conduction de Poole-Frenkel le long de la pointe de diamant et que seule la variation du  $\Delta V$  est responsable du changement sur la valeur du courant d'émission. Cela valide d'autant plus notre modèle électrique qui implique que le courant d'émission optique est entièrement gouverné par la conduction des électrons le long de la pointe. D'un point de vue qualitatif, on a montré tout au long de ces observations qu'une impulsion laser retirait un certain nombre d'électrons ( $\sim 4000$ ) et qu'à la suite de cette émission, la distribution de charges dans la pointe n'avait pas le temps de se réorganiser pour permettre une émission statique entre les impulsions. Au moment de l'arrivée d'une deuxième impulsion, les électrons émis seront donc ceux qui auront transités le long de la pointe par conduction PF.

## 5.5 EFFET DE SEUIL DANS LA TRANSITION ENTRE LES DEUX RÉGIMES

En reprenant les mesures du courant d'émission en fonction de l'énergie par impulsion laser ([Figure 5.6a](#)), on identifie une énergie critique  $E_{\text{crit}}$  pour laquelle le courant d'émission commence à saturer. La [Figure 5.10a](#) présente cette même courbe pour différentes tensions appliquées sur la pointe. On remarque que  $E_{\text{crit}}$  varie en fonction de la tension pour un taux de répétition donné. Il est donc possible de prendre une énergie critique du laser  $E_{\text{crit}}$  pour chaque tension appliquée sur la pointe  $V_{DC}$ . Les résultats sont présentés sur la [Figure 5.10b](#). Ils mettent en évidence la séparation entre les deux régimes : émission statique et émission saturée. Au centre de ces deux zones, le courant augmente en suivant une loi multiphotonique.

## 5.6 EFFET DU TAUX DE RÉPÉTITION

Il est possible de reproduire les mesures de la [Figure 5.10a](#) pour différents taux de répétition du laser. La [Figure 5.11a](#) présente les résultats des mesures du courant en fonction de l'énergie des impulsions pour trois taux de répétition différents (250, 500 et 1000 kHz). On remarque que l'énergie critique de saturation diminue quand on augmente le taux de répétition. Cela peut être expliqué qualitativement par le fait qu'un haut taux de répétition empêche d'autant plus vite à la pointe de se recharger entre chaque impulsion. La saturation du courant arrivera donc pour des énergies par

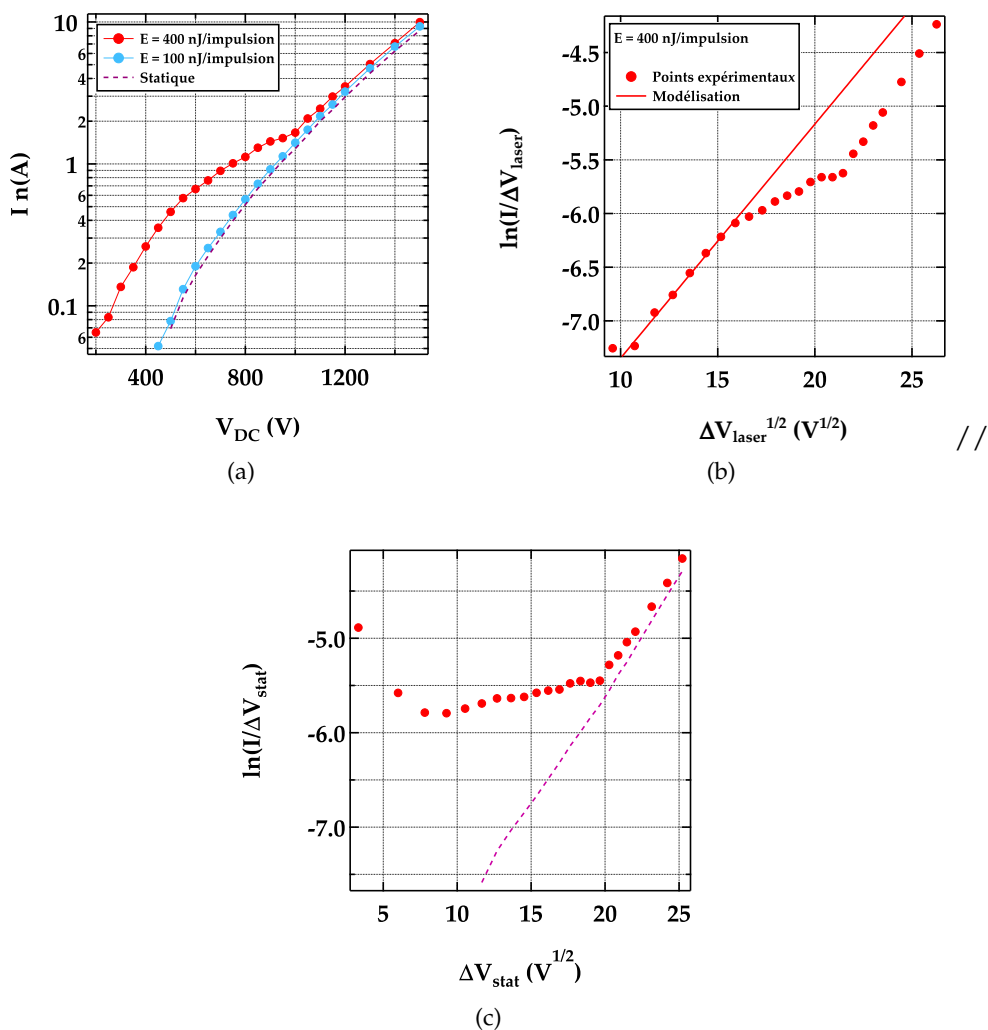


FIGURE 5.9 – (a) Courbe du courant d'émission en fonction de la tension appliquée sur la pointe dans le cas statique (tirets violets) et pour différentes énergies du laser (points rouges et bleus). La courbe à 100 nJ/impulsion est prise en-dessous de l'énergie seuil du laser pour voir de la photoémission à ces tensions statiques. La courbe à 400 nJ/impulsion présente de la photoémission pour les basses tensions avant de repasser en émission statique à haute tension. (b) En retraçant la courbe à 400 nJ/impulsion en coordonnées PF, on remarque la présence d'un comportement linéaire pour les basses tensions correspondant à une émission laser gouvernée par la loi PF. Le décrochage s'explique par le fait que le  $\Delta V$  est ici le  $\Delta V_{laser}$  pour tous les points. (c) La même courbe a été tracée pour le cas du  $\Delta V$  statique. Dans ce cas, le courant statique est une droite et le courant laser suit la loi statique pour les hautes tensions.

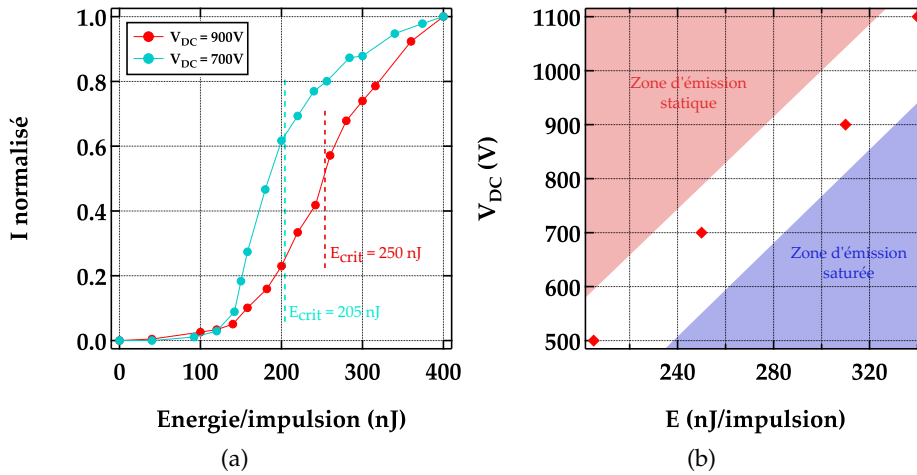


FIGURE 5.10 – (a) Courbe du courant normalisé en fonction de l'énergie par impulsion du laser pour deux tensions statiques différentes. On remarque que la zone de saturation du courant est différente en fonction de la tension appliquée sur la pointe. On note  $E_{crit}$  l'énergie du laser pour laquelle le courant commence à saturer. (b) On trace  $E_{crit}$  en fonction de la tension statique appliquée sur la pointe. Ces points forment une droite séparant les régimes statique et de saturation.

impulsion plus faibles. La Figure 5.11b présente les mêmes mesures tracées en fonction de la puissance moyenne du faisceau laser. Il serait alors possible de reprendre la Figure 5.10b de la partie précédente et d'y rajouter un troisième axe. Ce troisième axe représenterait le taux de répétition du laser et l'énergie critique serait donc dépendante à la fois de la tension statique, de l'énergie des impulsions et du taux de répétition du laser.

## 5.7 CONCLUSION SUR LE MODÈLE QUALITATIF

L'ensemble des observations sur l'émission de nanopointes de diamant en statique et en laser nous ont permis d'établir un modèle d'émission et de conduction des électrons pour nos échantillons. En émission purement statique, le courant d'émission est dirigé par le mécanisme de conduction Poole-Frenkel ainsi que par le mécanisme d'émission de Fowler-Nordheim. Ces deux mécanismes régissent le courant en alternance en fonction de la tension statique appliquée sur la pointe.

En illuminant l'apex de la pointe avec un laser femtoseconde, on observe une émission multiphotonique qui sature en fonction de l'énergie laser. En regardant les valeurs de courant, on s'aperçoit que le nombre d'électrons qui sort pour chaque impulsion du laser est bien supérieur à 1 (plusieurs milliers dans le régime de saturation). Le diamant étant un matériau non-métallique, la dynamique des électrons le long de la pointe est très lente. A l'arrivée d'une impulsion, environ un millier d'électron quitte la pointe. Ce départ applique alors à l'apex de la pointe une charge positive importante que la densité de charges dans le diamant a du mal à combler dû à la lenteur de sa dynamique. Le courant de Fowler-Nordheim présent entre deux impulsions pourra revenir à sa valeur maximale à condition que le taux de répétition

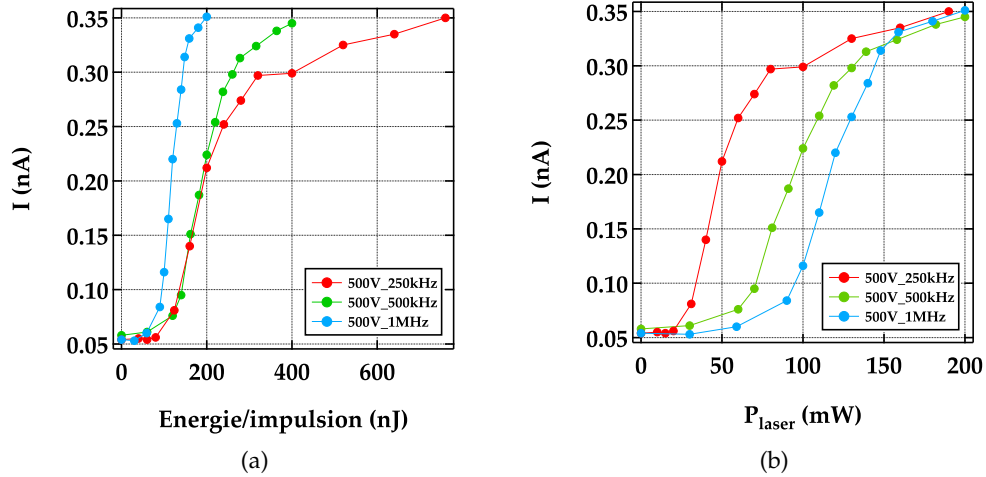


FIGURE 5.11 – Mesure du courant en fonction de l'énergie des impulsions (a) (ou de la puissance moyenne du faisceau laser (b)). On remarque un décalage de la valeur pour laquelle le courant sature en fonction du taux de répétition du laser.

du laser soit assez faible. Dans les autres cas, le niveau du courant statique entre deux impulsions ne reprend jamais sa valeur maximale et l'on atteint donc rapidement un régime où l'impulsion laser fait émettre la totalité des charges disponibles à l'apex de la pointe. Dans ce cas, le régime d'émission statique FN est complètement éteint entre deux impulsions laser et l'émission laser saturée devient dépendante du courant de conduction des électrons le long de la pointe.

## 5.8 MODÉLISATION DU COURANT DE REMONTÉE

A partir des résultats recensés tout au long de ce chapitre et en reprenant les résultats de la partie statique, il nous a été possible d'imaginer un circuit électrique modélisant l'émission des électrons d'une nanopointe de diamant sous émission statique ou laser. Dans cette partie, nous reprenons ce modèle afin de modéliser les courbes de remontée temporelle de courant statique de Fowler-Nordheim entre les impulsions laser.

En reprenant la [Figure 5.7](#) du schéma électrique on peut écrire (avec  $i_3 = 0$  après le passage de l'impulsion laser) :

$$I = i_1 + i_2 \quad ; \quad V_{DC} = V_a + \Delta V \quad ; \quad U_c = V_a \quad (5.1)$$

avec  $V_{DC}$  la tension statique appliquée sur la pointe,  $V_a$  la tension à l'apex de la pointe,  $\Delta V$  la tension de le long de la pointe et  $U_c$  la tension aux bornes du condensateur. En utilisant les différentes lois de Kirchoff, on peut écrire une équation différentielle de  $V_a$  telle que :

$$\frac{dV_a}{dt} = \frac{I_{PF} - I_{FN}}{K} = \frac{A(V_{DC} - V_a) \cdot \exp(B\sqrt{V_{DC} - V_a}) - CV_a^2 \cdot \exp\left(-\frac{D}{V_a}\right)}{K} \quad (5.2)$$

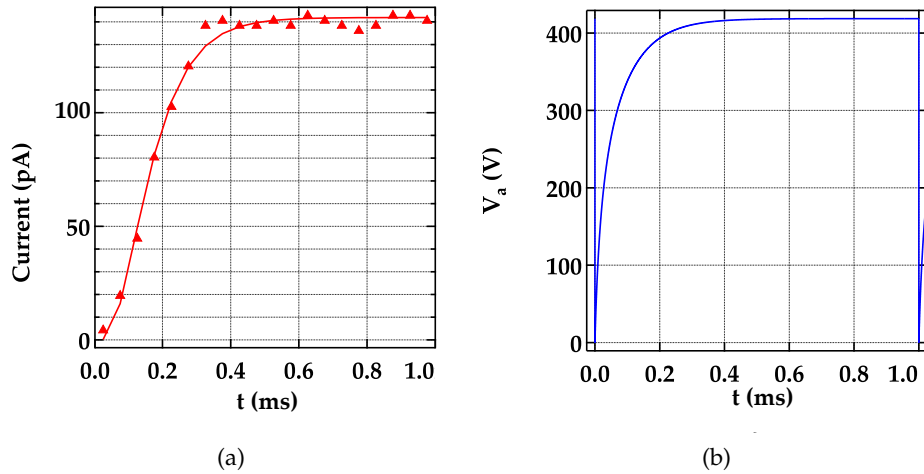


FIGURE 5.12 – (a) Ajustement des points expérimentaux de remontée temporelle à 600 V avec le modèle électrique décrit dans ce chapitre. (b) Calcul de  $V_a$  en fonction du temps en utilisant les paramètres d’ajustement calculés. On remarque que  $V_a$  devient quasi-nul après l’impulsion, ce qui est contraire à nos résultats expérimentaux.

avec  $A$ ,  $B$ ,  $C$ ,  $D$  constantes calculées dans le modèle statique (Tableau 4.1) et  $K$  la capacité du condensateur. Cette équation est en fait directement la différence entre le courant de Poole-Frenkel et le courant de Fowler-Nordheim divisée par la capacité du condensateur. Une résolution numérique de cette équation nous permet de trouver  $V_a(t)$ . Dans nos mesures, nous mesurons le courant FN en sortie de pointe. A partir de la valeur de la tension à l’apex, il suffit donc de reprendre la définition du courant FN tel que :

$$I_{FN}(t) = CV_a(t)^2 \cdot \exp\left(-\frac{D}{V_a(t)}\right) \quad (5.3)$$

En même temps que nous calculons la solution de l’équation différentielle, nous modélisons le résultat pour correspondre au mieux à la remontée du courant statique entre deux impulsions laser. Dans ce cas, deux paramètres de modélisation sont utilisés. Le premier est la valeur de la capacité  $K$  du condensateur. Le deuxième est la valeur de la tension à l’apex  $V_a$  à l’origine, i.e. juste après l’impulsion laser. Cette valeur est connue puisque l’on est capable de mesurer la valeur  $\Delta V_{laser}$  juste après le pulse. Nous décidons cependant de la laisser libre puisqu’elle pourra servir de gage de qualité à notre modélisation.

La Figure 5.12a présente le calcul de l’ajustement numérique du courant FN de remontée entre deux impulsions pour la courbe à  $V_{DC} = 600$  V sur la Figure 5.5. Les triangles représentent les points expérimentaux et la ligne pleine est le résultat de la modélisation. On remarque que la modélisation est en très bon accord avec les points expérimentaux. En même temps que l’ajustement est effectué, nous sommes capables de calculer la valeur de  $V_a$  pour n’importe quel temps entre les impulsions (Figure 5.12b). Le temps  $t = 0$  correspond au moment de l’impulsion. On remarque qu’à ce temps la,  $V_a$  chute à une tension nulle. Ce calcul est en désaccord avec la



mesure expérimentale de la tension à l'apex ( $V_a \sim 0.5V_{DC}$ ).

Ces courbes nous ont permis de montrer que le modèle établi pour expliquer les phénomènes de remontée temporelle entre les impulsions n'était pas suffisant. Nous proposons dans le chapitre suivant un modèle complexifié, reprenant les principales hypothèses faites jusqu'ici mais en séparant la tension à l'apex pour y distinguer les contributions des charges à l'apex et des charges dans le reste de la pointe.

## 5.9 CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats de l'émission d'électrons induite par laser de nanopointes de diamant. Le comportement de l'émission est très différent de la photoémission dans le cas de nanopointes métalliques. Nous avons remarqué plusieurs points importants :

- A hauts taux de répétition du laser ( $> 10$  kHz), l'illumination laser annule l'émission statique entre deux impulsions
- Le courant d'émission possède une dépendance particulière en fonction de l'énergie des impulsions du laser : émission multiphotonique à basse puissance, puis saturation du courant à partir d'une énergie critique dépendant de la tension statique appliquée sur la pointe et du taux de répétition
- La chute de tension  $\Delta V$  augmente quand l'émission induite par laser atteint le seuil de saturation
- A bas taux de répétition, le courant d'émission statique entre deux impulsions augmente avec une dynamique très lente ( $\sim$  ms)

Les quatre points cités peuvent être expliqués qualitativement en reprenant le modèle électrique du chapitre 4. Nous y avons ajouté une résistance multiphotonique afin de modéliser le courant de photoémission. L'ajout d'un condensateur, en parallèle, a aussi permis de comprendre l'effet de charge à l'apex entre deux impulsions. L'hypothèse principale ici est que l'impulsion laser vient arracher un certain nombre d'électrons lors de la photoémission. Le diamant étant un faible conducteur, il faut un certain temps, mesurable, afin que les électrons rechargent l'apex de la pointe et permettent une nouvelle émission statique.

Dans la dernière partie, nous avons essayé d'ajuster les courbes expérimentales de remontée du courant statique entre les impulsions à partir du modèle établi. Nous avons vu que l'ajustement était possible, mais avec des paramètres incompatibles avec les valeurs mesurées expérimentalement, notamment la tension  $V_a$  à l'apex au moment de l'impulsion. Nous avons alors déduit que le modèle utilisé n'était pas satisfaisant pour décrire l'émission des nanopointes de diamant sous illumination laser. Dans le prochain chapitre, nous décrirons un modèle amélioré à partir de celui-là afin de modéliser plus précisément les résultats obtenus.

## MODÉLISATION ET INTERPRÉTATION DE L'ÉMISSION D'ÉLECTRONS SOUS ILLUMINATION LASER À PARTIR D'UNE NANOPOINTE DE DIAMANT

### Sommaire

6.1	Modélisation de la distribution de charge au sein de la pointe	113
6.2	Amélioration du modèle statique	116
6.3	Temps de remontée du courant FN entre impulsions lasers	118
6.4	Régime de saturation	122
6.5	Conclusion	124

Dans ce chapitre, nous reprenons les résultats expérimentaux sur l'émission laser de nanopointes de diamant du chapitre 5 pour tenter de les modéliser plus précisément. Nous avons vu, à la fin de celui-ci, que le modèle électrique établi dans le 4 et complexifié dans le chapitre 5 ne suffisait pas pour retrouver quantitativement les données expérimentales de l'émission laser. Dans la première partie, nous appliquerons un changement dans la définition du courant Fowler-Nordheim régissant l'émission statique de la pointe. Ce changement sera induit par la séparation des charges dans la pointe en deux zones spatiales distinctes. La deuxième partie permettra de démontrer que ce nouveau modèle est beaucoup plus adéquat que le précédent puisqu'il nous permettra de modéliser quantitativement à toutes les données mesurées.

#### 6.1 MODÉLISATION DE LA DISTRIBUTION DE CHARGE AU SEIN DE LA POINTE

Dans le premier modèle (décrit au chapitre 4), nous avons fait l'hypothèse forte que le champ électrique à l'apex de la pointe  $F_a$  pouvait s'écrire comme  $F_a = \beta V_a$  avec  $\beta$  un facteur de proportionnalité constant et  $V_a$  le potentiel à l'apex de la pointe. Ce potentiel peut être retrouvé expérimentalement par la mesure de l'énergie cinétique des électrons émis. Nous avons démontré qu'une chute de tension  $\Delta V$  prenait place le long de la pointe pour une émission liée à une tension statique  $V_{DC}$  tel que  $V_a = V_{DC} - \Delta V$ . A partir de l'hypothèse faite, nous pouvions prendre la liberté d'écrire le courant de Fowler-Nordheim  $I_{FN}$  comme une fonction du potentiel à l'apex de la pointe :  $I_{FN} = CV_a^2 \cdot \exp\left(-\frac{D}{V_a}\right)$  avec  $C$  et  $D$  des constantes dépendantes de  $\beta$ . C'est en essayant de modéliser la remontée du courant statique entre les impulsions que nous avons remarqué que cette hypothèse n'était pas compatible avec l'émission laser des nanopointes. En effet, le courant FN descendant à 0 à la suite d'une impulsion laser, cela imposait forcément une tension à l'apex  $V_a$  nulle (ou très proche de 0 car le courant FN est très non-linéaire). Or, des mesures expérimentales ont montré que cette tension juste après l'impulsion laser était égale à  $\sim 0.5V_{DC}$  (voir partie 5.4.2 où l'on a montré que  $\Delta V \sim 0.5V_{DC}$  avec  $\Delta V = V_{DC} - V_a$ ). Dans la suite, nous faisons l'hypothèse que  $\beta$  n'est plus constant. Il est important de noter que dans toute la suite

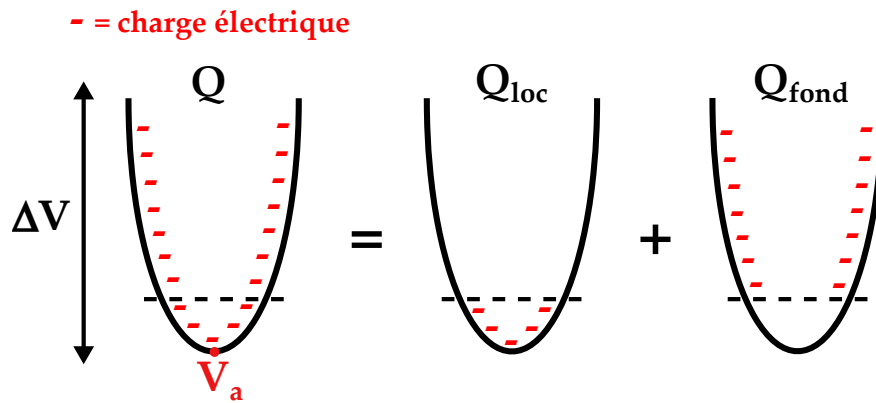


FIGURE 6.1 – Modèle simple de répartition des charges (représentées en surface, mais ce n'est pas indispensable pour le modèle) de la pointe. On les divise en deux parties : des charges locales à l'apex qui contribuent au courant de photoémission, au potentiel et au champ à l'apex, et des charges de fond, éloignées de l'apex de sorte qu'elles ne puissent pas être émises, mais qui contribuent au potentiel et au champ à l'apex.

du manuscrit, nous ne toucherons pas à la définition de la conduction des électrons le long de la pointe (conduction PF :  $I_{PF} = A\Delta V \cdot \exp(B\sqrt{\Delta V})$ ). La variable principale de notre étude ne sera donc plus la chute de tension le long de la pointe  $\Delta V$  mais la tension à l'apex  $V_a$ .

Une méthode pour connaître la valeur de  $\beta$  aurait été de calculer le champ électrique et le potentiel en tout point de la surface de la pointe. Cette méthode, exigeant la mise en place d'un modèle microscopique, aurait été plus compliquée à faire. Nous proposons donc un modèle intermédiaire où nous séparons les charges dans la pointe. Ce nouveau modèle reste macroscopique dans le sens où il ne cherche pas à calculer des grandeurs locales mais se contente de valeurs à l'apex. Nous considérons que les charges électriques de la pointe (en surface et/ou en volume) peuvent être séparées en deux contributions. Une première partie, proche de l'apex qui contribue au potentiel et au champ à l'apex de la pointe, et est aussi la seule à participer à la photoémission (l'impulsion étant très courte, les charges les plus éloignées n'ont pas le temps d'atteindre l'apex). La deuxième partie de la charge se situe dans le reste (fond) de la pointe. Les charges électriques présentes dans cette partie sont trop éloignées de l'apex pour pouvoir être émises. Cependant, on considère qu'elles contribuent elles aussi au champ et au potentiel à l'apex.

Dans la suite, on assimile ces deux distributions de charges à deux charges ponctuelles  $Q_{fond}$  et  $Q_{loc}$ . Ceci est une approximation qui suppose que les distributions restent similaires pour différentes valeurs de tension et courant (l'intérêt d'introduire ces deux charges sera que leur contribution au champ et au potentiel d'apex seront différentes). On suppose également que seules les charges  $Q_{loc}$  contribuent au courant sous illumination laser. Par linéarité des équations de Maxwell-Gauss et de Poisson, il est possible d'écrire le champ  $F_a$  et le potentiel  $V_a$  à l'apex de la pointe comme la somme des contributions  $Q_{loc}$  et  $Q_{fond}$ , tels que :

$$F_a = F_{loc} + F_{fond} \quad \text{avec} \quad F_{loc} \propto Q_{loc} \quad \text{et} \quad F_{fond} \propto Q_{fond} \quad (6.1)$$

$$V_a = V_{loc} + V_{fond} \quad \text{avec} \quad V_{loc} \propto Q_{loc} \quad \text{et} \quad V_{fond} \propto Q_{fond} \quad (6.2)$$

Il est important de noter ici, que contrairement au premier modèle, nous n'avons plus  $F_a \propto V_a$ . En considérant les potentiels et les champs indépendants entre eux, on peut écrire :  $F_{loc} = \beta_{loc} V_{loc}$  et  $F_{fond} = \beta_{fond} V_{fond}$  avec  $\beta_{loc}$  et  $\beta_{fond}$  constants. Cette hypothèse est moins forte que celle utilisée dans le modèle précédent car on estime que les charges électriques se réorganisent toujours de la même façon dans leur zone de la pointe respective.

En mesurant le courant d'émission laser, nous avons remarqué une zone de saturation de ce courant pour les hautes énergies des impulsions laser (Figure 5.6a). La mesure de l'énergie cinétique des électrons dans ce régime nous renseigne sur la tension à l'apex  $V_a$ . Cette mesure a été faite dans la partie 5.4.2, où l'on mesurait  $\Delta V = 0.511 V_{DC}$ . Il est alors possible d'écrire dans ce cas :

$$V_a = V_{DC} - \Delta V = V_{DC} - 0.511 V_{DC} = \alpha V_{DC} \quad (6.3)$$

avec  $\alpha = 1 - 0.511 = 0.489$  un coefficient de proportionnalité sans dimension. Toujours dans ce régime d'émission saturée, pour les hauts taux de répétition, nous avons montré (partie 5.3) qu'aucun courant statique FN ne prenait place entre les impulsions. Cette observation nous permet de supposer que chaque impulsion laser vide la charge  $Q_{loc}$  et que celle-ci reste très faible entre chaque impulsion. A partir de là, on peut écrire  $V_{loc} \propto Q_{loc} = 0$  et donc  $V_a$  mesuré sous illumination laser approximativement égale à  $\simeq V_{fond}$ . En reprenant l'Équation 6.2 et l'Équation 6.3, on peut écrire, pour le régime d'émission laser saturée :

$$V_{fond} = \alpha V_{DC} \quad (6.4)$$

On suppose dans la suite que cette expression reste valable tout le temps (en dehors du cas de l'émission laser saturée). Pour s'en convaincre, on rappelle que l'illumination laser se fait sur une zone très réduite ( $\sim 3 \mu\text{m}$ ), et affecte peu la distribution des charges du fond. En reprenant l'Équation 6.1, on peut écrire :

$$F_a = \beta_{loc} V_{loc} + \beta_{fond} V_{fond} = \beta_{loc} (V_{loc} + \delta V_{DC}) \quad (6.5)$$

avec  $\delta = \alpha \frac{\beta_{fond}}{\beta_{loc}}$  un coefficient sans dimension. Il est alors possible de définir un potentiel  $V_{FN}$  proportionnel au champ à l'apex  $F_a$  tel que :

$$V_{FN} = V_{loc} + \delta V_{DC} = V_a - (\alpha - \delta) V_{DC} \quad (6.6)$$

avec  $V_a$  et  $V_{DC}$  des tensions mesurables expérimentalement. Ce potentiel  $V_{FN}$  n'a pas de réalité physique car il ne correspond pas au potentiel calculé en un point précis. Nous introduisons cette notation pour l'utiliser à la place de  $F_a$  (champ à l'apex) et

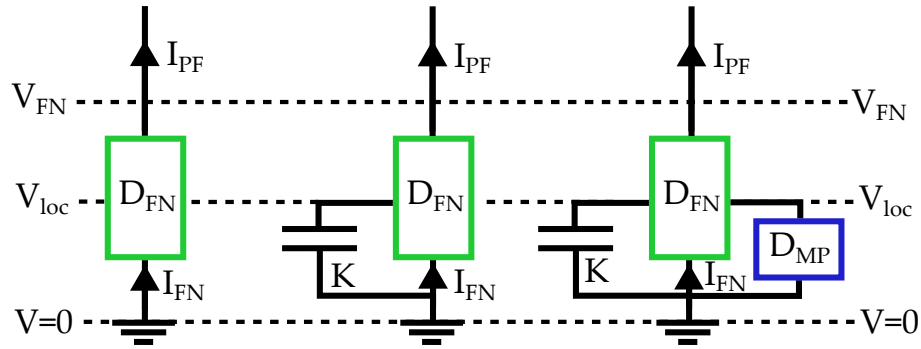


FIGURE 6.2 – Pseudo-schéma électrique du modèle statique (gauche), de la remontée temporelle du courant statique entre les impulsions (milieu) et de l'émission laser (droite).  $D_{FN}$  représente l'émission FN, qui dépend en réalité du champ à l'apex. Ce champ figure dans le schéma via le potentiel  $V_{FN}$ . Ce potentiel n'a donc pas réellement de sens physique. Le condensateur  $K$  modélise la charge d'électrons à l'apex ( $Q_{loc}$ ) et la résistance  $D_{MP}$  l'émission multiphotonique. Ces deux dipôles sont associés à la charge  $Q_{loc}$  (donc au potentiel  $V_{loc}$ ), ce qui nécessite de les raccorder en un point intermédiaire de  $D_{FN}$  (car  $V_{FN} = V_{loc} + \delta V_{DC} > V_{loc}$ ).

ainsi ne garder que des grandeurs ayant la dimension d'une tension. La Figure 6.2 présente des pseudo-schémas électriques récapitulatifs du modèle électrique utilisé pour les différents phénomènes d'émission des nanopointes de diamant. Le schéma de gauche montre le cas de l'émission purement statique pour lequel le courant PF est strictement égal au courant FN. Le schéma du milieu correspond au cas de la remontée temporelle du courant FN entre deux impulsions laser. Le condensateur permet de comprendre l'effet de charge de la pointe. Cette charge est naturellement associée au potentiel  $V_{loc} < V_{FN}$ , ce qui justifie son raccordement en un point arbitraire de  $D_{FN}$ . Le schéma de droite montre le cas de l'émission laser saturée. Dans ce cas, une résistance  $D_{MP}$ , correspondant à l'émission multiphotonique, s'ajoute à la résistance FN. Le fait que le courant FN soit gouverné par une relation entre le champ et le courant et non une relation tension/courant rend difficile une représentation électrique plus rigoureuse. Nous pensons cependant que cette représentation est utile pour rendre compte des mécanismes en jeu dans l'émission d'électrons. Nous avons représenté sur ces schémas les tensions intéressantes pour la suite  $V_{FN}$  et  $V_{loc}$ .

## 6.2 AMÉLIORATION DU MODÈLE STATIQUE

En reprenant les hypothèses du modèle de la partie précédente, il est possible d'utiliser ce nouveau modèle pour ajuster le modèle statique du chapitre 4. Pour faire cela, on considère que la conduction le long de la pointe reste la même et donc que les coefficients  $A$  et  $B$  de l'équation du courant de Poole-Frenkel ne changent pas :  $A = 3.07 \times 10^{-14}$  A/V et  $B = 0.238$  V $^{-1/2}$ . On peut écrire le courant Fowler-Nordheim en fonction de la tension  $V_{FN}$  tel que :

$$I_{FN} = C' V_{FN}^2 \cdot \exp\left(-\frac{D'}{V_{FN}}\right) \quad (6.7)$$

avec  $C'$  et  $D'$  des nouvelles constantes dépendant entre autres de  $\beta_{loc}$ , du travail de sortie  $\phi$  ou de la masse de l'électron  $m$ , et  $V_{FN} = V_a - (\alpha - \delta)V_{DC}$  définie dans

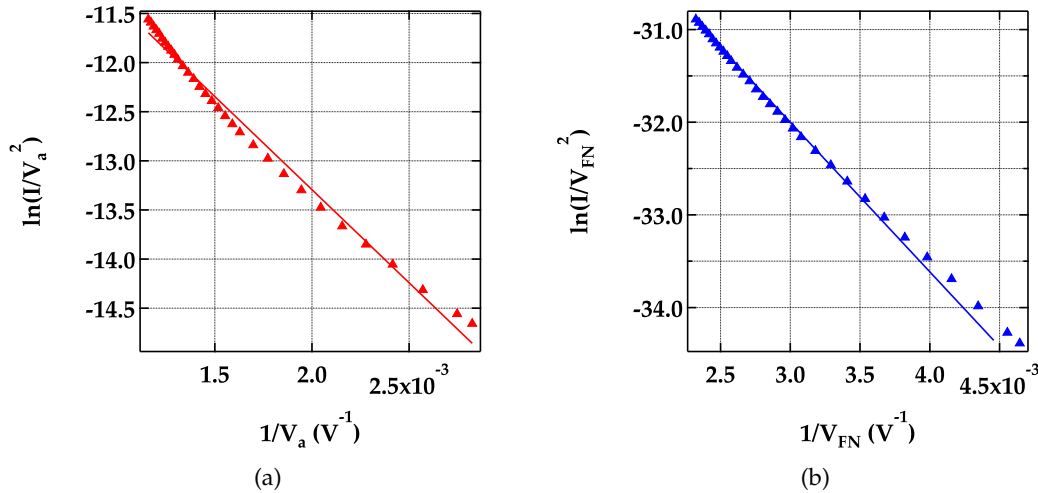


FIGURE 6.3 – Tracé en coordonnées Fowler-Nordheim du courant d’émission statique en fonction de  $V_a$  (a) ou de  $V_{FN}$  (b). La première courbe reprend la modélisation du chapitre 4 tandis que la deuxième utilise le nouveau modèle. On montre que le deuxième cas permet une légère amélioration de la modélisation dans le cas des tensions élevées (les points à basses tensions correspondent à des courants très faibles avec une incertitude relative élevée, non représentée sur la figure).

la partie précédente. En utilisant les données expérimentales de  $I_{FN}$ ,  $V_a$  et  $V_{DC}$ , et en prenant  $\alpha = 0.489$ , comme discuté dans la partie précédente, il est possible de modéliser le courant d’émission statique mesuré dans la partie 4.2.1.1 en fonction de  $V_{FN}$  afin de trouver les paramètres d’ajustement  $C'$ ,  $D'$  et  $\delta$ .

La Figure 6.3b présente le résultat de la modélisation en coordonnées FN, dans le cas du nouveau modèle en comparaison de celui du chapitre 4 (Figure 6.3a). On remarque que le fait de prendre une nouvelle tension  $V_{FN}$  dépendant des paramètres expérimentaux  $V_{DC}$  et  $V_a$  et de deux paramètres  $\alpha$  et  $\delta$  permet une légère amélioration de l’ajustement. Etant donné que cette nouvelle modélisation se fait avec un paramètre d’ajustement supplémentaire ( $\delta$ ), il n’est pas surprenant qu’elle soit meilleure. En prenant en compte les différentes incertitudes dans les mesures, on remarque que la modélisation reste bonne pour des valeurs de  $\delta$  entre 0.2 et 0.28 avec différentes valeurs de  $C'$  et  $D'$ . Dans la suite, nous utiliserons les valeurs suivantes :  $C' = 1.6 \times 10^{-12} \pm 0.0227 \times 10^{-12} \text{ A/V}^2$ ,  $D' = 1614 \pm 4.4 \text{ V}$  et  $\delta = 0.2$ .

A partir des valeurs des paramètres d’ajustement  $C'$ ,  $D'$  et  $\delta$ , du modèle statique, il est possible de calculer les différentes tensions mises en jeu dans le modèle en fonction de la tension statique  $V_{DC}$  appliquée sur la pointe. La Figure 6.4 présente les valeurs calculées de  $V_{FN}$ ,  $V_a$ ,  $V_{fond}$  et  $V_{loc}$ , ainsi que les valeurs expérimentales de la mesure de  $V_a$ , en fonction de la tension statique appliquée sur la pointe  $V_{DC}$ . Comme dans le premier modèle, les données calculées sont en très bon accord avec les données expérimentales. On remarque aussi que pour les valeurs de tension de nos données expérimentales (entre 500 et 1500 V) la tension locale  $V_{loc}$  est quasi-constante. Ce résultat peut être vu sur les données expérimentales. En effet,  $V_{loc}$  est directement

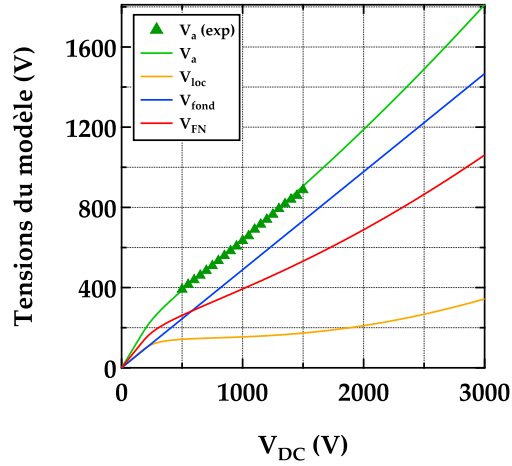


FIGURE 6.4 – Calcul numérique des potentiels liés à la pointe en fonction de la tension appliquée dessus. On rajoute les points expérimentaux de  $V_a$  afin de voir le très bon accord entre eux et les valeurs calculées. On remarque aussi que, pour les tensions dans la gamme de nos mesures (entre 500 et 1500 V), le potentiel local  $V_{loc}$  est quasiment constant.

proportionnelle à la différence entre les  $\Delta V$  statique et laser. Cette différence a été mesurée comme constante pour les tensions qui nous intéressent (Figure 5.8), ce qui reste en accord avec les calculs.

Nous avons vu dans cette partie que le nouveau modèle permet une légère amélioration de la modélisation du courant FN en émission statique. Même si l'ajout des paramètres  $\alpha$  et  $\delta$  ne semble pas nécessaire ici, nous verrons dans la modélisation de la dynamique de l'émission laser, qu'ils sont indispensables pour la compréhension des phénomènes.

### 6.3 TEMPS DE REMONTÉE DU COURANT FN ENTRE IMPULSIONS LASERS

Dans la partie 5.3, nous avons présenté les données expérimentales du temps de remontée du courant statique FN entre deux impulsions lasers pour un faible taux de répétition (1 kHz). Dans la partie 5.8, nous avons montré que l'ancien modèle ne permettait pas de modéliser cette remontée temporelle avec les données expérimentales. Dans cette partie, nous utilisons le nouveau modèle afin de modéliser les données obtenues à  $V_{DC} = 600$  V (Figure 5.5). En reprenant l'étude de la partie 5.8, on peut écrire, à nouveau  $Q_{loc} = KV_{loc}$  et, l'équation différentielle régissant la tension  $V_{loc}$  devient maintenant :

$$K \frac{dV_{loc}}{dt} = I_{PF} - I_{FN} = A\Delta V \cdot \exp\left(B\sqrt{\Delta V}\right) - C'V_{FN}^2 \cdot \exp\left(-\frac{D'}{V_{FN}}\right) \quad (6.8)$$

avec  $\Delta V = (1 - \alpha)V_{DC} - V_{loc}$  et  $V_{FN} = V_{loc} + \delta V_{DC}$ . La résolution de cette équation différentielle nous permet de connaître  $V_{loc}(t)$ . Il est facile à partir de là de remonter au courant  $I_{FN}(t)$  (qui est la grandeur mesurée expérimentalement) en reprenant la

définition de  $V_{FN}$  (Équation 6.6).

La résolution de l'équation différentielle se fait en même temps que la modélisation sur les données expérimentales. Pour cette modélisation, nous avons deux paramètres d'ajustement différents. Le premier est la valeur de la capacité  $K = \frac{Q_{loc}}{V_{loc}}$  du condensateur équivalent. Le deuxième est la valeur initiale  $V_{loc}(t = 0^+)$ . Pour n'importe quel temps, on sait que  $V_{loc}$  est proportionnel à la charge à l'apex  $Q_{loc}$ . Dans notre modèle, le temps  $t = 0$  correspond au moment où l'impulsion laser atteint l'apex de la pointe. On considère que les charges présentes à l'apex juste avant l'arrivée de l'impulsion  $Q_{loc}(t = 0^-)$  ont toute la même probabilité  $p_0$  d'être photoémises. La charge émise durant l'impulsion sera donc  $p_0 Q_{loc}(t = 0^-)$ , avec  $p_0$  dépendant de l'intensité et de la durée des impulsions lasers. On peut alors écrire :

$$V_{loc}(t = 0^+) = (1 - p_0)V_{loc}(t = 0^-) \quad (6.9)$$

Pour les bas taux de répétition, le temps entre les impulsions est assez long pour que le courant FN revienne à sa valeur purement statique, avant l'arrivée de l'impulsion suivante. Cette observation expérimentale nous permet d'établir la valeur  $V_{loc}(t = 0^-)$  comme la valeur  $V_{loc}$  correspondant au courant FN dans le régime permanent. La Figure 6.5 présentent les mesures de remontée temporelle du courant FN entre deux impulsions à 1 kHz. Cette courbe reprend les résultats de la Figure 5.5, avec certaines tensions différentes. Pour la modélisation, nous avons retracé ces courbes en utilisant des valeurs de courant total (en A) et non plus le courant de comptage obtenu sur les MCP. Pour cela, nous considérons que le courant final de chacune des courbes correspond au courant d'émission purement statique (valable car le temps entre les impulsions est assez long). Il est alors possible de calculer la valeur de ce courant en utilisant les paramètres  $C'$ ,  $D'$ ,  $\alpha$  et  $\delta$ . En considérant que l'efficacité de mesure des MCP reste constante pour ces courants, un simple rapport de proportionnalité nous permet d'obtenir la totalité de la courbe.

L'Équation 6.8 permet de modéliser les données expérimentales de la courbe à 600 V avec deux paramètres d'ajustement  $K$  et  $p_0$ . Nous retrouvons numériquement les valeurs  $K = 4.51 \times 10^{-16}$  F et  $p_0 = 0.85$ . Nous pouvons alors calculer numériquement le courant de remontée pour les autres courbes sans aucune modélisation supplémentaire. Les résultats sont montrés dans la Figure 6.5. Ce calcul fonctionne bien pour  $V_{DC} = 550$  V. Pour les plus basses valeurs de  $V_{DC}$ , par contre, le calcul montre des limites. Ces cas correspondent à des tensions pour lesquelles le courant entre les impulsions ne revient pas à sa valeur maximale avant l'arrivée de l'impulsion suivante. Il est alors possible de considérer que pour ces tensions là, la charge  $Q_{loc}$  juste après l'impulsion est complètement nulle après un certain nombre d'impulsions. Afin d'en tenir compte, nous avons choisi de prendre  $p_0 = 1$  dans ces cas là, ce qui permet alors une très bonne adéquation avec les valeurs expérimentales.

La valeur de la capacité trouvée  $K$ , associée à une valeur de résistance PF :  $R_{PF} = 1.33$  T $\Omega$  (prise à  $V_{DC} = 600$  V et  $\Delta V = 186$  V) nous permet de remonter à une constante de temps  $\tau = KR_{PF} = 600$   $\mu$ s. L'ordre de grandeur est en accord avec les observations expérimentales. La différence vient du fait que la tension PF, et



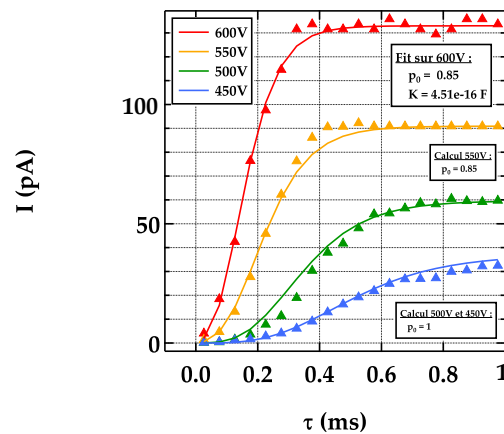


FIGURE 6.5 – Mesures du courant de remontée statique entre deux impulsions. Les données expérimentales sont prises pour quatre tensions de pointe différentes. On modélise la courbe à 600 V puis on calcule avec les paramètres d’ajustement trouvés les courbes numériques pour les autres tensions. La probabilité d’émission d’un électron  $p_0$  est prise égale à 0.85 ou à 1 en fonction de la tension étudiée (voir texte).

donc la résistance PF, n’est pas constante au cours de la remontée du courant. On peut aussi calculer la valeur numérique de la charge  $Q_{loc}$  en régime statistique avec  $Q_{loc} = KV_{loc}$ . On trouve  $Q_{loc} = 3.6 \times 10^5 e$  avec  $e$  la charge élémentaire. Cette valeur est 100 fois supérieure à la charge émise par une impulsion pour  $V_{DC} = 500$  V et  $E = 500$  kHz (calculée dans la partie 5.4). Cela signifie alors que seulement 1% de la charge maximale est atteinte entre les impulsions.

La valeur calculée numériquement de  $p_0$  (85%) nous donne le pourcentage de charges déplétées hors de l’apex à chaque impulsion. Cette probabilité ne dépend a priori pas du taux de répétition. Pour des taux de répétition élevés, le temps entre chaque impulsion est trop court pour que l’émission statique reprenne sa valeur maximale. Dans ces cas là, la charge locale à l’apex, juste après l’impulsion, va rapidement diminuer, pour chaque impulsion, jusqu’à devenir presque nulle. On retrouve ce phénomène lorsque le courant d’émission laser est saturé.

Afin d’aider à la compréhension du phénomène physique prenant place entre chaque impulsion, nous avons calculé numériquement les grandeurs physiques pertinentes de courant et de tension en fonction du temps au cours de la charge. La Figure 6.6a présente le calcul numérique des courants PF et FN pour un temps de 2 ms, correspondant à deux impulsions lasers successives à 1 kHz. Au moment de l’impulsion, l’apex de la pointe se vide, ce qui a pour effet d’éteindre le courant FN et d’augmenter le courant PF. Entre les impulsions, ces deux courants se stabilisent pour redevenir égaux (modèle statique).

La Figure 6.6b présente les valeurs calculées des potentiels  $V_{loc}$ ,  $V_{FN}$ ,  $V_a$  et  $\Delta V$  en fonction du temps pour un temps de 2 ms. Cette courbe permet d’avoir un aperçu global de l’évolution de ces tensions au moment des impulsions et après celles-ci.

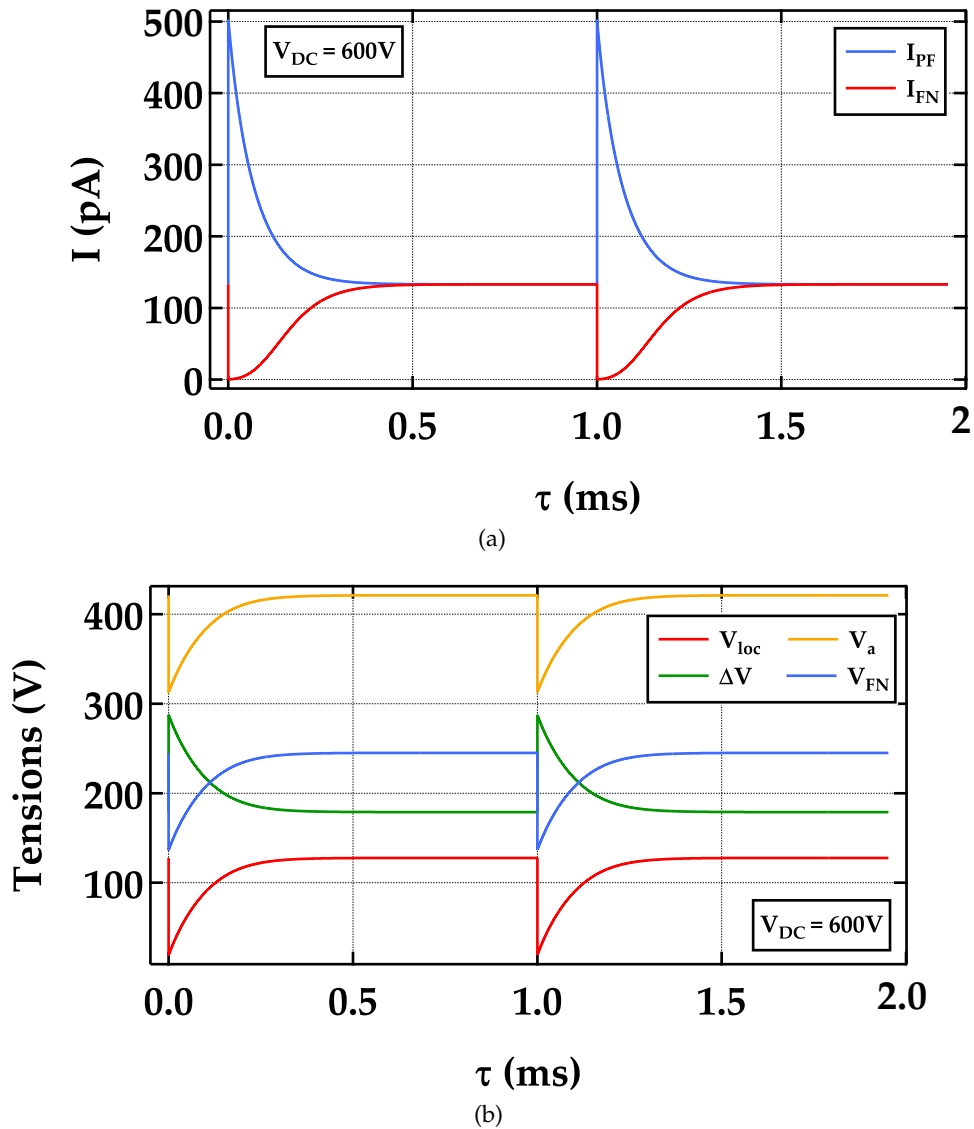


FIGURE 6.6 – (a) Tracé du calcul numérique des courants PF et FN en fonction du temps au cours de deux impulsions lasers. Au moment de l'impulsion,  $t = 0$ , la charge locale se vide et le courant FN tombe à zéro. Le courant PF augmente afin de recharger l'apex de la pointe. Les deux courants se stabilisent entre les impulsions jusqu'à rejoindre un niveau où ils sont égaux. (b) Tracé des différentes valeurs des potentiels au niveau de la pointe en fonction du temps pendant 2 ms.

#### 6.4 RÉGIME DE SATURATION

Dans la partie précédente, nous avons utilisé les courbes de remontée temporelle du courant statique entre les impulsions, pour un taux de répétition du laser faible, afin de retrouver les valeurs des paramètres  $K$  et  $p_0$ . La capacité  $K$  est a priori une grandeur géométrique et ne varie pas dans nos expériences. Il est possible de garder ces paramètres pour prédire le comportement de l'émission pour des taux de répétition élevés, i.e. des cas pour lesquels le courant FN n'a pas le temps de revenir entre les impulsions. Pour cela, nous faisons l'hypothèse que la probabilité de photoémission  $p_0$  ne varie pas en fonction du taux de répétition. Elle dépend cependant de la durée temporelle des impulsions (ne change pas dans nos expériences) et de l'énergie des impulsions. Comme nous voulons étudier la photoémission en fonction de l'énergie des impulsions  $E$ , nous réécrivons  $p_0$  comme  $p(E)$  qui n'est maintenant plus une constante.

Le schéma électrique, à droite de la [Figure 6.2](#) présente le cas de la photoémission. On modélise le courant par une résistance multiphotonique  $R_{MP}(t)$ , égale à zéro entre les impulsions lasers, et avec une valeur constante lorsque l'impulsion illumine l'apex ([Figure 6.7](#) (haut)). Ceci implique que chaque impulsion du laser libère la même charge ( $p(E)Q_{loc}$ ) en moyenne une fois le régime permanent atteint. Le courant de photoémission total peut donc être pris comme la valeur moyenne du courant induit par chaque impulsion. En notant  $\Delta t$  la durée temporelle de l'impulsion, on peut écrire le courant de photoémission  $I_{MP}$  comme :

$$I_{MP} = \frac{pQ_{loc}}{\Delta t} = \frac{pK}{\Delta t}V_{loc} = \frac{V_{loc}}{R_{MP}} \quad (6.10)$$

avec  $R_{MP} = \frac{\Delta t}{pK}$ . Pour les valeurs de  $p_0$  et de  $K$  trouvées dans la partie précédente, et en prenant  $\Delta t = 300$  fs, on trouve  $R_{MP} = 780 \Omega$ . En substituant à  $\Delta t$  le temps  $T$  entre deux impulsions (ce qui revient à considérer la charge  $pQ_{loc}$  émise en continu ou faire une moyenne de conductance), on obtient  $\tilde{R}_{MP} = \frac{T}{pK} = 2.6 \text{ G}\Omega$  avec  $T = 1 \mu\text{s}$  à 1 MHz. On remarque que  $\tilde{R}_{MP} \ll R_{PF} \sim \text{T}\Omega$ . Ceci implique donc que le régime PF est le régime limitant de l'émission même pendant la photoémission, ce qui explique la saturation du courant en fonction de l'énergie laser.

Pour les hauts taux de répétition (supérieurs à quelques kHz), nous avons montré qu'entre les impulsions, la charge locale  $Q_{loc}$  n'avait pas le temps de rejoindre son niveau stationnaire. La charge locale après une impulsion sera donc plus faible que celle après l'impulsion d'avant. Ce phénomène se produit pour plusieurs impulsions jusqu'à arrivée à un régime permanent pour lequel  $Q_{loc}$  est toujours quasi nul juste après l'impulsion ([Figure 6.7](#) (bas)). Dans ce cas, nous avons aussi vu que la valeur de  $Q_{loc}$  atteinte juste avant l'impulsion n'était pas assez haute pour permettre d'observer de l'émission FN.

Il est possible d'utiliser ce modèle afin de calculer numériquement la dépendance du courant de photoémission en fonction de l'énergie des impulsions pour différentes tensions de pointe ou différents taux de répétition. Dans la partie [5.4.1](#), nous avons établis l'émission laser des nanopointes de diamant était multiphotonique avec un

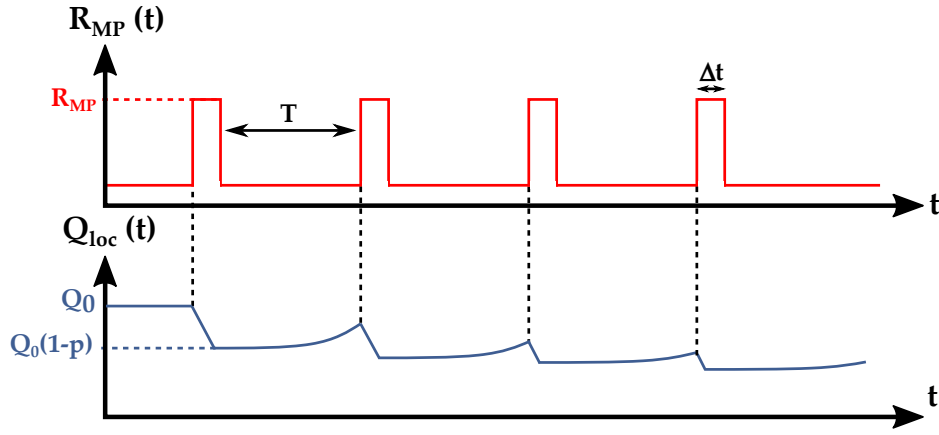


FIGURE 6.7 – Schéma présentant l'effet de diminution de la charge locale à l'apex en émission laser saturée. Pour chaque impulsion laser, de durée  $\Delta t$ , une partie constante de la charge  $Q_{loc}$  est émise hors de la pointe. Pour les hauts taux de répétition, cette charge n'a pas le temps de revenir à sa valeur stationnaire avant l'impulsion suivante, avec  $T$  le temps entre les impulsions. Le niveau diminue donc petit à petit après chaque impulsion jusqu'à atteindre une valeur nulle après chaque impulsion. A noter que le schéma n'est pas du tout à échelle avec  $\Delta t = 300$  fs et  $T \sim \mu s$ .

ordre  $n$  entre 4 et 5. On rappelle que  $n$  représente le nombre de photons absorbés pour la photoémission d'un électron. On peut alors écrire, pour une durée d'impulsion fixe, que la probabilité de photoémission d'un électron  $p(E)$  est :

$$p(E) = p_0 \left( \frac{E}{E_0} \right)^n \quad \text{et} \quad p(E) = 1 \quad \text{si} \quad \left( \frac{E}{E_0} \right)^n p_0 > 1 \quad (6.11)$$

avec  $E$  l'énergie des impulsions du laser et  $E_0$  l'énergie des impulsions pour laquelle la probabilité  $p_0$  a été calculée. La probabilité ne peut bien évidemment pas dépasser 1, ce qui a pour conséquence de garder le courant de photoémission constant à partir d'une valeur d'énergie des impulsions. On peut également écrire :

$$p(E) = \left( \frac{E}{E_1} \right)^n \quad \text{si} \quad E < E_1 \quad (6.12)$$

$$= 1 \quad \text{si} \quad E \geq E_1 \quad (6.13)$$

avec  $E_1^n = E_0^n / p_0$ .  $E_1^n$  représente l'énergie d'une impulsion nécessaire pour avoir  $p = 1$ , c'est à dire que la totalité des charges à l'apex  $Q_{loc}$  est émise durant l'illumination laser. En pratique, nous avons vu que le courant en régime laser saturé n'était pas complètement constant en augmentant l'énergie  $E$ . On pourrait expliquer cela avec un modèle microscopique qui prendrait en compte le fait qu'à hautes énergies, la photoémission n'est sans doute plus complètement uniforme sur l'apex de la pointe et donc la charge maximale  $Q_{loc}$  n'est plus constante.

Pour une valeur fixe de  $n = 4$  pour nos nanopointes, nous pouvons calculer numériquement l'évolution de  $V_{loc}$  entre les impulsions laser. Puisque le temps entre deux impulsions ( $< 10 \mu s$ ) est largement supérieur à la durée d'une impulsion 300 fs,

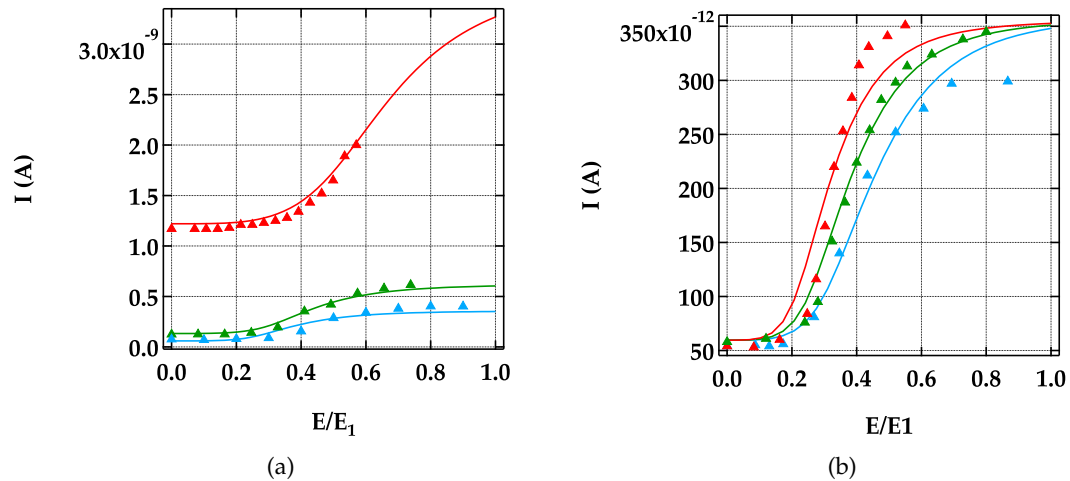


FIGURE 6.8 – Courbe du courant de photoémission, dans le régime laser saturé, en fonction de l'énergie par impulsion rapporté à  $E_1$ , l'énergie pour laquelle la probabilité d'émission est 1. Ces courbes ont été faites pour différentes tensions de pointes (a) et différents taux de répétition (b). La valeur de  $E_1$  étant dépendante de l'alignement du faisceau laser sur la pointe, elle est a priori différente pour chaque courbe car l'on réaligne le laser entre chaque série de mesures. Les données expérimentales sont ajoutées aux valeurs calculées sans aucune modélisation supplémentaire.

on peut considérer que chaque impulsion émet les électrons de manière instantanée avec la même probabilité  $p$ . Cette approximation nous permet d'éviter la description temporelle de l'émission au cours de l'impulsion.

La Figure 6.8a présente les données expérimentales (triangles) et les données calculées (trait plein) du courant de photoémission en fonction de l'énergie par impulsion pour trois tensions de pointes différentes. La grandeur physique importante pour étudier la photoémission aurait été l'intensité lumineuse. Cependant, comme le laser est réaligné entre chaque mesure, la focalisation du faisceau sur la pointe peut être différente d'une courbe à une autre. Nous avons donc a priori une valeur  $E_1$  différente pour chacune des courbes. Il est important de noter que les calculs sont faits sans aucun autre ajustement supplémentaire et que les paramètres utilisés sont ceux calculés dans la partie précédente. La Figure 6.8b présente les mêmes résultats pour des taux de répétition du laser différents. Dans les deux cas, le modèle déployé pour retrouver les données expérimentales est très satisfaisant et confirme la validité de notre modèle dans notre gamme de paramètres.

## 6.5 CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons décrit un nouveau modèle, reprenant les hypothèses principales du précédent, afin de modéliser plus précisément les mesures de l'émission statique mais surtout de celle sous illumination laser de nanopointes de diamant. Le souci principal du modèle précédent vient du fait que le champ à l'apex est directement proportionnel au potentiel à l'apex. Le principal changement dans notre

nouveau modèle par rapport au précédent consiste à diviser les charges de la pointe en deux : une partie à l'apex de la pointe, contribuant au courant d'émission, au champ et au potentiel à l'apex, et le reste contribuant lui aussi au potentiel et au champ à l'apex mais pas au courant d'émission. Ceci nous a permis de définir un nouveau potentiel  $V_{FN}$ , sans réalité physique et dépendant des grandeurs mesurables  $V_a$  (tension à l'apex) et  $V_{DC}$  (tension appliquée sur la pointe), décrivant le champ à l'apex par un facteur de proportionnalité.

Dans la deuxième partie, nous avons utilisé ce nouveau potentiel  $V_{FN}$  afin de réajuster la modélisation des courbes du courant statique (Chapitre 4). Ceci nous a permis de rendre la modélisation légèrement meilleure, notamment pour les hautes tensions.

Dans la troisième partie, nous avons repris les courbes de remontée temporelle du courant statique entre les impulsions afin de les modéliser avec le nouveau modèle. Une des courbes a servi à l'ajustement des paramètres  $K$ , capacité d'un condensateur modélisant la charge à l'apex, et  $p_0$ , probabilité d'un électron d'être émis par l'impulsion laser. A partir de ces coefficients, nous avons pu calculer, sans modélisation supplémentaire, les valeurs attendues du courant de remontée pour des tensions de pointe différentes. Les résultats ont montré un très bon accord entre les données expérimentales et les valeurs calculées du courant.

Dans la dernière partie, nous avons utilisé notre modèle pour calculer le courant de photoémission en fonction de l'énergie des impulsions pour des tensions de pointe et des taux de répétition du laser différents. Comme précédemment, les valeurs calculées ont montré un bon accord avec les données expérimentales, confirmant la validité de notre modèle dans notre gamme de paramètres.



---

**Sommaire**


---

7.1	Motivations	127
7.2	Dispositif expérimental	129
7.2.1	Cahier des charges	129
7.2.2	Channel Electron Multiplier	130
7.2.3	Mesure du temps de vol	131
7.3	Statistique temporelle de l'émission statique	132
7.3.1	Principe de la mesure	132
7.3.2	Mesures sur pointes de tungstène et de diamant	132
7.4	Statistique temporelle de l'émission laser	135
7.4.1	Principe de la mesure	135
7.4.2	Mesures sur pointes de tungstène	136
7.5	Conclusion	137

---

Dans ce chapitre, nous présentons des résultats préliminaires de mesures de la statistique temporelle de l'émission d'électrons, statique ou laser, de nanopointes de tungstène et de diamant. Dans la première partie, nous établirons les motivations qui nous ont poussé à effectuer de telles mesures. Dans la deuxième partie, nous décrirons la mise en place d'un nouveau dispositif expérimental essentiel pour ce type de mesure. Nous verrons qu'un changement de détecteur était nécessaire afin d'améliorer l'efficacité de détection. Enfin dans la dernière partie, nous présenterons des résultats préliminaires obtenus sur des nanopointes de tungstène et de diamant.

### 7.1 MOTIVATIONS

Les chapitres 4, 5 et 6 du manuscrit ont permis de montrer la dynamique lente de l'émission d'une pointe de diamant par rapport aux pointes métalliques. Nous avons montré que, pour une nanopointe de diamant, l'émission d'un électron modifiait la charge électrique à l'apex de la pointe, et que l'émission était gouvernée par une dynamique temporelle de l'ordre de la centaine de microsecondes. Ce temps caractéristique pourrait alors se manifester dans la statistique temporelle de l'émission d'électrons. A fort courant, il devient peu probable que le temps séparant l'émission de deux électrons puisse tendre vers 0. Nous avons voulu mesurer la distribution de bruit de grenaille (*shot noise*) pour l'émission d'électrons dans les cas statique et laser. Ce bruit est analogue au bruit de photon en optique, en gardant à l'esprit que la statistique des fermions est différente de la statistique des bosons. Dans le cas de photons, on peut considérer que l'émission d'un photon est indépendante de l'émission des autres photons. La distribution temporelle de l'émission suit alors une



loi poissonnienne. Si le nombre moyen d'occurrences dans un intervalle de temps fixé est  $\lambda$ , alors la probabilité d'avoir  $k$  occurrences est :

$$p(k) = \frac{\lambda^k}{k!} e^{-\lambda} \quad (7.1)$$

Cette statistique poissonnienne définit le bruit quantique standard en optique quantique [GRYNBERG et al. (2010)], généralement observé pour un faisceau laser (état cohérent dans le formalisme de l'optique quantique) [GLAUBER (1963)]. La manipulation de ces fluctuations quantiques est un enjeu majeur en optique quantique, avec notamment des applications pour les mesures de très grandes précisions (détection d'ondes gravitationnelles par exemple [BARSOTTI et al. (2018)]).

Dans le cas des électrons, le bruit de grenaille est plus facile à conceptualiser, car il est associé à leur nature corpusculaire. Il y a plus d'un siècle, Schottky [SCHOTTKY (1922)] a montré que le caractère discret de l'émission d'électrons entraînait forcément une fluctuation du courant. Ces fluctuations de l'émission d'électrons s'accompagnent d'un bruit de grenaille qui s'écrit :

$$S = 2eI \quad (7.2)$$

avec  $S$  la densité spectrale de puissance de bruit à fréquence nulle (en  $A^2/Hz$ ),  $e$  la charge élémentaire et  $I$  le courant moyen d'émission. Ce phénomène fut confirmé expérimentalement dans la foulée pour des tubes à vide où les fluctuations thermiques étaient les principales sources de fluctuation du courant [HARTMANN (1921); HULL et al. (1925)]. Des mesures de ces fluctuations ont été effectuées dans le cas de mesure de courant total. Nous proposons ici de reproduire ces mesures pour un comptage des électrons individuels possible grâce à notre dispositif expérimental. La première mesure effectuée sera alors de mesurer le bruit de grenaille dans le cas des nanopointes de tungstène et de le comparer à une distribution poissonnienne. Des calculs théoriques [BULASHENKO et al. (2003); WU et al. (2008)] dans le cas de l'émission de champ ont permis de montrer qu'une augmentation du courant, dûe à une augmentation du champ électrique, écarte la distribution de bruit d'une distribution poissonnienne vers une distribution sub-poissonnienne (Figure 7.1). Cette réduction de bruit peut s'expliquer de manière intuitive en rappelant le fait, qu'à fort courant, la répulsion coulombienne a tendance à ordonner temporellement les électrons et donc réduire les fluctuations de courant. La transition s'effectue pour des champs de l'ordre du GV/m, atteignables dans notre expérience.

Dans le cas des pointes de diamant, nous avons remarqué que la dynamique de remplissage de la pointe était très lente (ordre de la microseconde) due à la conduction de Poole-Frenkel (faible conductivité). On a montré au chapitre précédent que l'émission d'un électron dépend de la distribution de charge au bout de la pointe, et donc des électrons émis avant lui. L'idée est alors de mesurer les fluctuations sur le courant d'émission pour des nanopointes de diamant afin d'apercevoir une différence avec les nanopointes de tungstène.

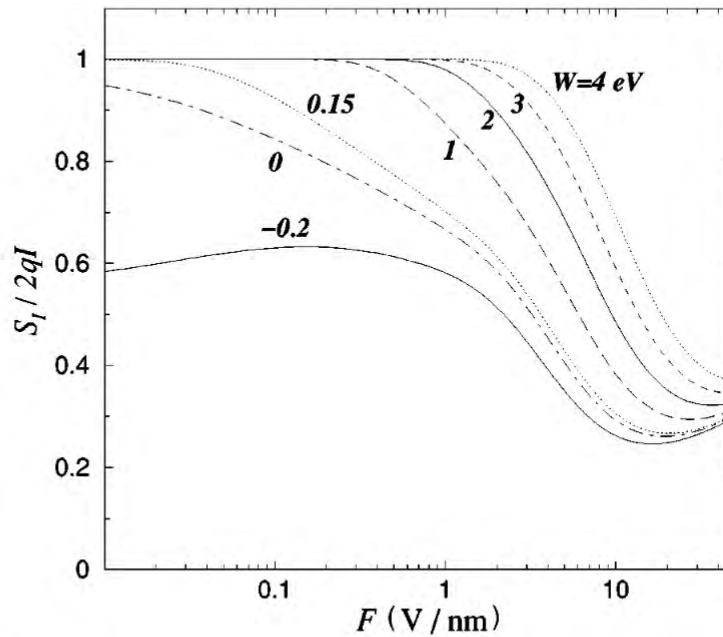


FIGURE 7.1 – Puissance de bruit du courant d'émission de champ à froid  $S_I$  normalisée par la valeur de Schottky  $2eI$  en fonction du champ électrique  $F$ . L'émission se fait au travers d'une barrière de potentiel triangulaire. Les courbes sont prises pour des valeurs de travail de sortie  $W$  différentes. [Bulashenko (2003)]

## 7.2 DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

### 7.2.1 Cahier des charges

Le dispositif expérimental décrit dans le chapitre 2 a du être modifié afin de permettre les mesures décrites dans la suite de ce chapitre. L'objectif premier était d'améliorer l'efficacité de notre détecteur pour collecter la plus grande partie des électrons émis. En effet, lors de l'émission de champ d'une nanopointe, toutes les pertes arrivant après l'émission auront tendance, si elles sont le fruit du hasard, à faire tendre les fluctuations du courant vers une distribution poissonnienne. Dans la partie 2.2.4, nous avons vu que le spectromètre, composé de plusieurs grilles et de deux MCP en chevron avait une efficacité de l'ordre de 1%. Nous décrivons dans la suite la conception et la mise en place d'un nouveau détecteur utilisant un CEM (Channel Electron Multiplier) ayant la forme d'un entonnoir et permettant une efficacité 40 fois supérieure à celle du spectromètre utilisant des MCP.

Le deuxième objectif à atteindre était la mise en place d'un dispositif permettant de mesurer des temps de vol de l'ordre de la nanoseconde. Pour cela, nous utilisons un TDC (Time-to-Digitale Converter). Cet appareil permet l'ouverture de porte de détection afin de mesurer le temps entre l'ouverture de cette porte et un signal de comptage arrivant durant l'ouverture de la porte. Nous décrivons dans la suite les caractéristiques de cet appareil ainsi que les différentes manières de l'utiliser.

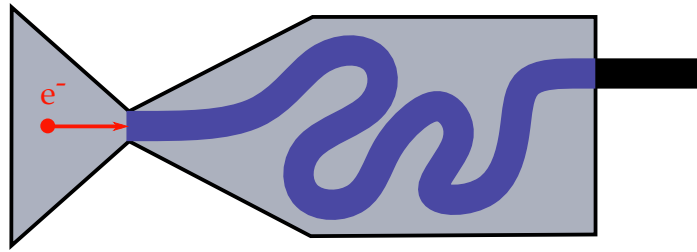


FIGURE 7.2 – Schéma du Channeltron utilisé dans le nouveau dispositif. La taille de l'entonnoir (10 mm) placé assez proche de la pointe permet de recueillir la plus grande partie des électrons émis.

### 7.2.2 Channel Electron Multiplier

Un CEM (Channel Electron Multiplier) ou Channeltron est un amplificateur de signal électrique ou photonique. Il permet la détection de particules uniques en amplifiant le signal par multiples collisions avec ses parois. La différence par rapport aux galettes de microcanaux est son entrée en forme d'entonnoir sur plusieurs millimètres (Figure 7.2). Placé proche de la pointe, il permet alors de recueillir une grande partie des électrons émis. Cependant, comme pour les microcanaux, plusieurs particules arrivant simultanément sur la cathode du CEM ne pourront pas être différenciées et seront comptées comme une seule. Ceci peut entraîner une perte d'efficacité dans le cas d'émission multiphotonique avec plus d'un électron émis par impulsion par exemple.

Le Channeltron utilisé est un Standard CEM de SJUTS. Le diamètre de son entonnoir est de 10 mm. Après différents tests, nous avons établis que la détection était la meilleure pour une tension d'entrée nulle et une tension sur la sortie de +2100V. Cette différence de potentiel entre l'entrée et la sortie correspond à un gain de plus de  $10^8$ . La tension sur l'anode est mise à +2300V. Entre la pointe et le Channeltron, nous disposons une grille d'anode à la masse (Figure 7.3). Cette grille possède un taux de passage de 90.3%, estimé par la fabricant. Il est possible avec ce dispositif de mesurer l'énergie cinétique des électrons. Pour cela, nous utilisons la face d'entrée du détecteur comme une tension de retard. Il est important dans ce cas de garder constante la différence de potentiel entre l'entrée et la sortie du Channeltron. Un changement sur la tension d'entrée du détecteur entraîne cependant une chute dans l'efficacité de détection. Cette chute n'empêche pas de mesurer l'énergie cinétique des électrons mais réduit la précision de notre mesure à  $\sim 10$  eV.

L'objectif de la mise en place de ce nouveau dispositif de comptage est d'améliorer l'efficacité de détection. Nous présentons ici une méthode afin de connaître ce taux d'efficacité dans le cas du Channeltron. Pour cela, nous mesurons le courant d'émission  $I$  au Channeltron en fonction de la tension statique  $V_{DC}$  appliquée sur la pointe, dans le cas d'une pointe de tungstène. Ce courant peut être tracé en coordonnées Fowler-Nordheim ( $\ln(I/V_{DC}^2) \propto 1/V_{DC}$ ) afin d'obtenir une droite d'équation  $\ln(I/V_{DC}) = -25188/V_{DC} + 24.991$  (courbe bleue sur la Figure 7.4). Le courant d'émission total a aussi été mesuré au picoampèremètre pour des tensions appliquées sur la pointe plus élevées. La limite basse du picoampèremètre et le seuil de saturation du Channeltron

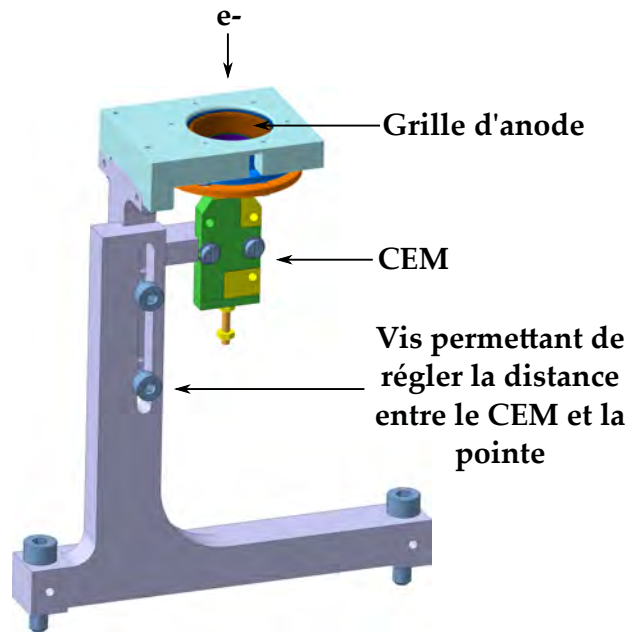


FIGURE 7.3 – Schéma du dispositif de détection des électrons pour les mesures de statistiques temporelles.

ne nous permettant pas de mesurer les courants pour les mêmes tensions. Il est possible de tracer sur la même courbe les points expérimentaux du courant total mesuré au picoampèremètre ainsi que la courbe modélisée, d'équation  $\ln(I/V_{DC}) = -25688/V_{DC} + 26.44$  (courbe rouge sur la Figure 7.4). Le fait que les deux courbes aient la même pente nous assure une efficacité du Channeltron constante sur toute la gamme de tension qui nous intéresse. A partir de ces deux courbes, l'efficacité de détection du Channeltron peut être facilement déduite en prenant la différence entre les deux courbes. Ceci nous permet d'établir une valeur d'efficacité  $\sim 40\%$ .

### 7.2.3 Mesure du temps de vol

Afin de mesurer les temps de vol des électrons émis, nous utilisons un Time-to-Digital Converter (TDC). Cet appareil permet de mesurer des temps entre un signal d'entrée (trigger) et un signal de comptage (stop). Le TDC que nous utilisons possède une carte fabriquée par la plateforme DTPI (Détection : Temps, Positon, Image) du laboratoire LUMAT à l'Université d'Orsay à Paris. Il permet de mesurer des temps jusqu'à 3.9 ms avec une précision de  $\sim 30$  ps (valeur donnée par le fabricant). Nous proposons une mesure simple afin de retrouver cette valeur expérimentalement. La Figure 7.5 présente les mesures de temps entre deux impulsions électriques provenant de la même source et divisées par une BNC-T. Elles sont envoyées sur le TDC comme déclenchement pour l'une et comptage pour l'autre. On s'assure au préalable que le fil du signal de comptage soit plus long que le fil du signal de déclenchement. La courbe mesurée présente la forme d'une Gaussienne avec une largeur à mi-hauteur de  $\sim 123$  ps correspondant à la limite de précision de notre dispositif. Pour la suite, toutes les mesures seront donc faites avec une précision de 123 ps. Au cours de nos

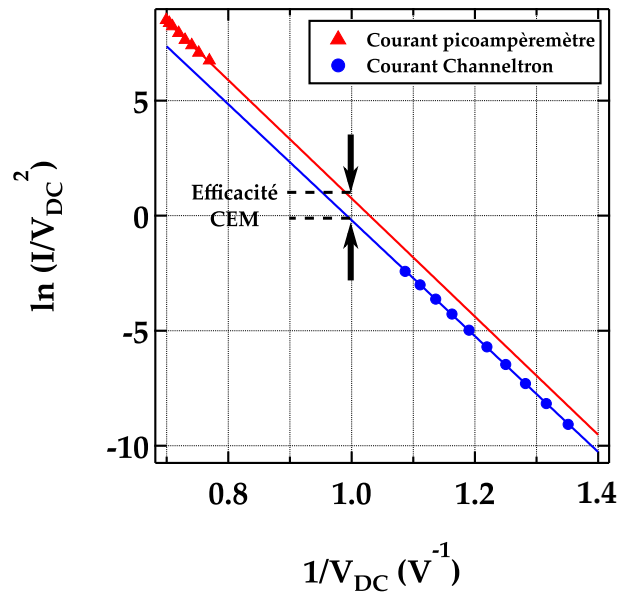


FIGURE 7.4 – Courbes en coordonnées Folwer-Nordheim du courant mesuré au Channeltron (bleu) et au picoampèremètre (rouge) modélisées par une droite. La différence entre ces droites permet de remonter à l'efficacité de détection du CEM.

mesures, nous avons utilisé le dispositif expérimental de deux manières différentes que nous présentons dans la suite.

### 7.3 STATISTIQUE TEMPORELLE DE L'ÉMISSION STATIQUE

#### 7.3.1 Principe de la mesure

La première mesure qui nous intéresse est le temps d'arrivée entre deux électrons successifs en émission statique et laser (Figure 7.6). Pour cela, nous utilisons un signal périodique, créé à partir d'un générateur de signal, qui génère des impulsions NIM à une fréquence de 1 kHz. Le signal de comptage du TDC, marquant la mesure, est relié au signal de sortie du Channeltron. Un discriminateur est placé entre les deux éléments pour ne garder que les signaux que l'on considère être de vrais électrons détectés. La durée de la porte de mesure sur le TDC est choisie à la valeur maximale possible pour la fréquence choisie du générateur de signal, i.e. 980  $\mu$ s.

#### 7.3.2 Mesures sur pointes de tungstène et de diamant

Les premières mesures présentent les résultats obtenus pour une nanopointe de tungstène et de diamant sous émission de champ à froid. Nous mesurons les temps d'arrivée entre deux électrons consécutifs au sein d'une même porte de détection. La Figure 7.7 présente l'histogramme des différences de temps d'arrivée entre deux électrons consécutifs au sein d'une même porte de mesure pour le tungstène et

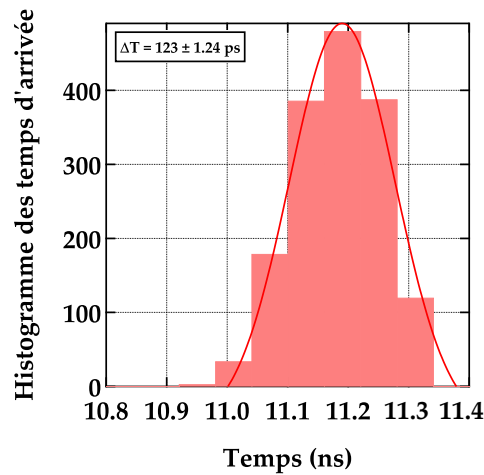


FIGURE 7.5 – Histogramme du temps d’arrivée entre deux signaux électriques venant du même générateur, séparés par un BNC-T. La largeur à mi-hauteur de la modélisation par une courbe de Gauss permet de remonter à la précision sur la mesure de temps du TDC.

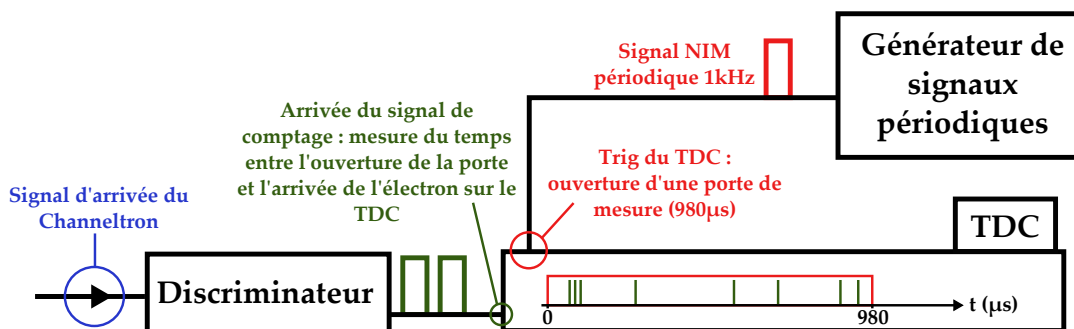


FIGURE 7.6 – Schéma de la mesure du temps d’arrivée entre deux électrons émis successivement. Le TDC (Time-to Digital Converter) est déclenché par une signal périodique à 1 kHz. Pendant 980 μs après le déclenchement, le TDC mesure le temps entre l’ouverture de la porte de mesure et l’arrivée des électrons.

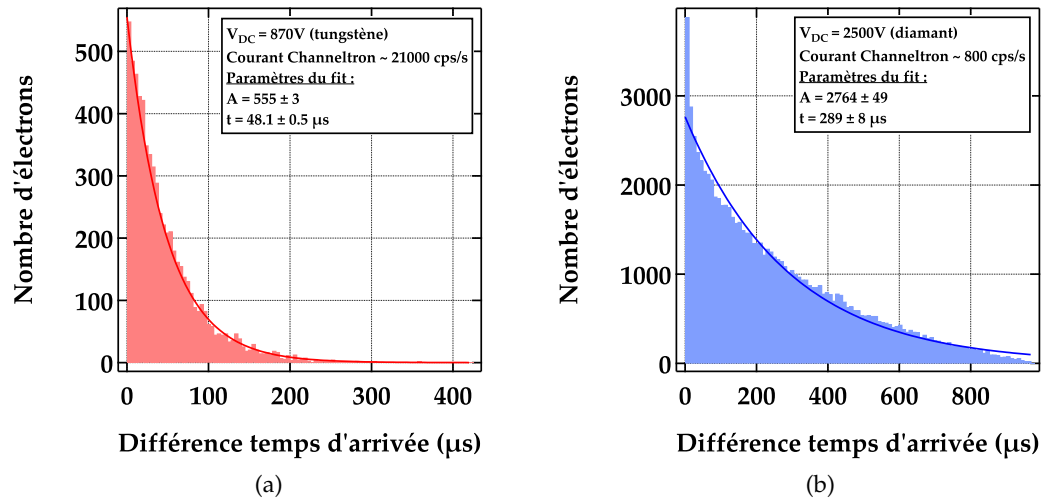


FIGURE 7.7 – Histogramme du temps entre deux électrons émis successivement pour une pointe de tungstène (a) et de diamant (b). Les deux sont modélisés par l'équation de la distribution de Poisson pour  $k = 1$  et permettent de remonter au paramètre  $\tau$  correspondant au temps moyen entre deux électrons successifs.

le diamant. Cette histogramme  $H$  peut être modélisé par l'équation de Poisson (Équation 7.1) pour  $k = 0$  tel que :

$$H = A \cdot e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (7.3)$$

avec  $A$  l'amplitude initiale et  $\tau$  le temps moyen entre deux électrons émis consécutivement. Parallèlement à cette mesure, nous mesurons le courant d'émission moyen au Channeltron. En connaissant le nombre d'électrons par seconde, il est donc possible pour chacune des courbes de comparer le temps moyen entre deux électrons consécutifs mesuré au Channeltron et celui modélisé sur l'histogramme.

La Figure 7.7a présente les résultats pour une pointe de tungstène à 870 V. La modélisation est en très bon accord avec les données expérimentales. Le coefficient  $\tau$  est trouvé égale à 48.1  $\mu s$ . Ce coefficient représentant le temps moyen entre deux électrons consécutifs, il est possible de remonter à un courant en électrons par seconde. En utilisant la valeur de  $\tau$ , on trouve  $I_{calcul} \sim 20833$  cps/s. Cette valeur est en accord avec le courant moyen mesuré au Channeltron :  $I_{exp} \sim 21000$  cps/s. Cela montre que le courant est bien poissonnien.

En reprenant la même étude pour la pointe de diamant (Figure 7.7b), on remarque que la modélisation n'est pas satisfaisante pour les temps courts. Il semble donc que les électrons aient tendance à sortir plus proche les uns des autres que pour une distribution poissonnienne, ce qui est contradictoire à l'intuition qu'on pourrait avoir avec les résultats des chapitres précédents. Ces résultats préliminaires n'ont pas pu être testés sur une autre pointe et il est donc possible que cet effet soit un effet de la mesure.

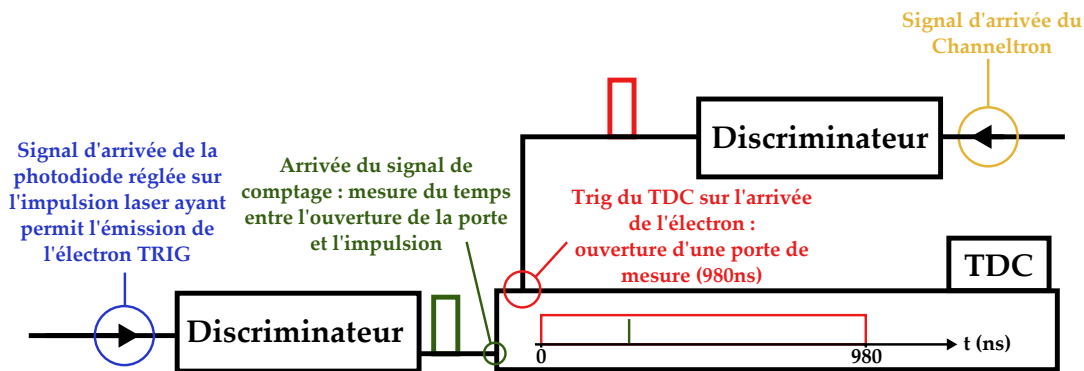


FIGURE 7.8 – Schéma de la mesure du temps d'arrivée entre un électron détecté et l'impulsion qui a permis son émission. Le TDC est déclenché l'arrivée de l'électron. Pendant 980 ns (dépendant du taux de répétition du laser) après le déclenchement, le TDC mesure le temps entre l'ouverture de la porte de mesure et l'arrivée de l'impulsion ayant permis l'émission de l'électron déclencheur.

#### 7.4 STATISTIQUE TEMPORELLE DE L'ÉMISSION LASER

Dans cette partie, nous présentons les résultats préliminaires de la statistique temporelle de l'émission laser d'une nanopointe de tungstène.

##### 7.4.1 Principe de la mesure

Il est possible de réaliser deux mesures différentes pour étudier statistique temporelle de l'émission laser. La première reprend le principe de la mesure statique (Figure 7.6). Dans ce cas, on mesure la différence d'arrivée entre deux électrons émis successivement. L'émission étant gouvernée par un laser femtoseconde à impulsion cadencé, ces temps devraient toujours être des multiples de la durée  $\Delta t$  entre deux impulsions.

Dans la deuxième utilisation du dispositif, nous nous intéressons au temps entre l'arrivée d'une impulsion laser sur la pointe et l'arrivée de l'électron sur l'anode (Figure 7.8). Ce temps est dépendant de nombreux paramètres (tailles des fils, rebonds dans le Channeltron ...). La mesure intéressante est l'écart relatif de ce temps d'arrivée entre plusieurs expériences faites pour des tensions appliquées sur la pointe différentes. L'émission multiphotonique d'une pointe de tungstène pour nos puissance laser se fait à moins d'un électron par impulsion. Afin d'éviter le bruit dû à un déclenchement du TDC sans signal d'arrêt, nous le déclenchons avec le signal d'arrivée des électrons. Le signal de comptage provient alors d'une photodiode rapide (temps de monté  $< 10$  ns) captant une partie de l'impulsion laser. En rallongeant de plusieurs mètres le fil reliant la photodiode au TDC, il nous a été possible de détecter l'impulsion ayant servi à l'émission de l'électron déclencheur de la porte TDC. Si le temps de vol de l'électron depuis sa photoémission est  $t_0$ , nous mesurons donc un temps égal à  $T_0 - t_0$  avec  $T_0$  constant et dépendant du chemin optique et de la longueur des fils.



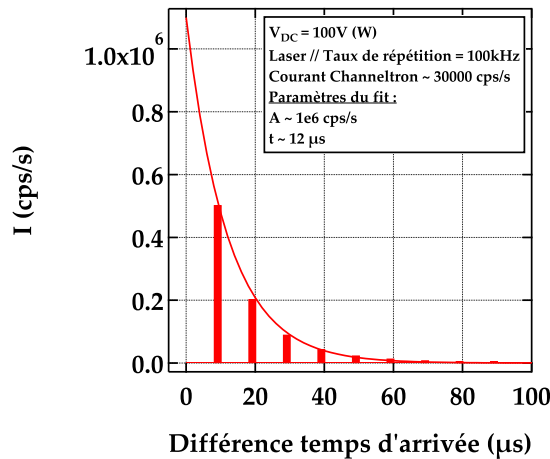


FIGURE 7.9 – Histogramme du temps d'arrivée entre deux électrons émis consécutivement dans le cas d'une émission laser à un taux de répétition de 100 kHz. Les pics de l'histogramme sont séparés d'un multiple du temps  $\Delta t$  entre deux impulsions. L'histogramme est modélisé par l'équation de la distribution de Poisson pour  $k = 1$ .

#### 7.4.2 Mesures sur pointes de tungstène

Dans cette partie, nous présentons les mesures faites sur une pointe de tungstène pour de l'émission laser. La Figure 7.9 montre l'histogramme du temps d'arrivée entre deux électrons émis successivement par le laser. Ici, le laser (Tangerine) est pris à un taux de répétition de 100 kHz avec une puissance moyenne de 2.7 mW. Une tension statique de 100 V est appliquée sur la pointe. Le courant d'émission est mesuré à 30000 cps/s. Comme dans la partie précédente, cet histogramme peut être modélisé par une loi de Poisson avec  $k = 0$ . La modélisation, très correcte, apparaît sur la courbe avec un paramètre d'ajustement  $\tau \sim 12 \mu\text{s}$ . Nous rappelons que ce paramètre correspond au temps moyen entre deux électrons émis consécutivement. Un rapide calcul permet de remonter à une valeur théorique du nombre d'électrons par seconde. On trouve  $I_{\text{calcul}} \sim 8000 \text{ cps/s}$ . En comparant ce courant à celui mesuré,  $I_{\text{exp}} \sim 30000 \text{ cps/s}$ , on remarque une forte différence. Nous n'expliquons pas ce phénomène mais il nous paraît indispensable de reproduire ces expériences en changeant la tension de pointe ou la puissance du laser par exemple.

En reprenant l'histogramme de la Figure 7.9, on remarque une différence avec les histogrammes statiques (Figure 7.7). En effet, l'émission laser étant cadencée par l'arrivée des impulsions, le temps d'arrivée entre deux électrons consécutifs ne peut être qu'un multiple du temps  $\Delta t$  en deux impulsions. A 100 kHz, ce temps est  $\Delta t = 10 \mu\text{s}$ , ce que l'on aperçoit clairement sur l'histogramme puisque les pics sont espacés de cette durée.

La deuxième mesure faite sur cette pointe consiste à mesurer le temps d'arrivée entre l'impulsion laser et l'électron émis pour différentes tensions appliquées sur la pointe. On cherche alors à montrer que ce temps de vol est proportionnel à une constante près à  $1/\sqrt{V_{DC}}$ , d'après un calcul classique de temps de vol. Nous rappelons

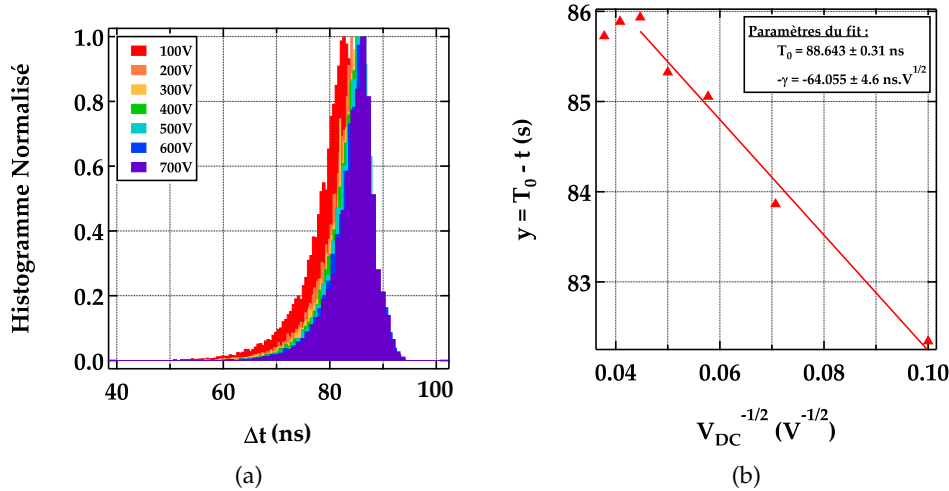


FIGURE 7.10 – (a) Mesure de l’histogramme normalisé du temps entre un électron et l’impulsion qui a permis son émission pour différentes tensions statiques. La largeur de chaque histogramme est la même  $\Delta t \sim 8$  ns, ce qui est une mesure de gigue du Channeltron. (b) Tracé expérimental du temps pour lequel l’histogramme est maximal en fonction de  $1/\sqrt{V_{DC}}$ . La courbe peut être modélisée par une droite. On remarque néanmoins un effet de saturation pour les premiers points, correspondant aux hautes tensions.

que le temps mesuré est égal à  $T_0 - t$  avec  $T_0$  une constante dépendant du chemin optique et de la longueur des fils. L’ouverture de la porte de détection sur le TDC est effectué par l’arrivée d’un électron. Le comptage se fait lors de l’arrivée de l’impulsion laser ayant permis l’émission de l’électron déclencheur. La Figure 7.10a présente des histogrammes normalisés du temps d’arrivée des électrons pour différentes tensions statiques. Les histogrammes ont tous les mêmes largeur à mi-hauteur  $\Delta t \sim 8$  ns. Cette largeur ne dépendant pas de la tension statique, on peut déduire que cet effet n’est pas géométrique (lié à la trajectoire des électrons), mais plutôt un effet de la détection sur le Channeltron. Cette mesure pourrait être apparentée à une mesure de la gigue (*jitter*) du Channeltron (non-fournie par le constructeur).

Il est possible, pour chaque courbe de tension, de mesurer un temps moyen correspondant au maximum du pic de l’histogramme. Nous nommerons ce point  $y(V_{DC}) = T_0 - t(V_{DC})$ . La Figure 7.10b montre les points expérimentaux (triangles rouges) de  $y$  en fonction de  $T_0 - \frac{\gamma}{\sqrt{V_{DC}}}$  avec  $\gamma$  un coefficient (en  $s \cdot V^{1/2}$ ). Il semble que les points aient l’aspect d’une droite sauf pour les deux premiers points, correspondant aux tensions statiques les plus hautes. On modélise les derniers points par une droite pour remonter aux valeurs de  $T_0$  et  $\gamma$ . La courbe de modélisation ainsi que les valeurs des paramètres sont notées sur la Figure 7.10b.

## 7.5 CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats des mesures de la statistique temporelle de l’émission d’électrons. En reprenant les observations faites sur l’émis-

sion de nanopointes de diamant, et notamment sur la dynamique très lente de ce matériau, nous avons voulu voir un effet de l'émission sur la statistique temporelle de ces échantillons. Malheureusement, le manque, sur la fin de mes trois années de thèse, de nanopointes avec un  $\Delta V$  a rendu impossible la mesure sur le diamant.

Dans la deuxième partie du chapitre, nous avons décrit la mise en place d'un nouveau dispositif expérimental. Le but était d'améliorer l'efficacité de détection de notre détecteur. Nous avons alors remplacé le spectromètre par un Channeltron permettant de maximiser la collecte des électrons émis. Nous avons utilisé un TDC afin de permettre la mesure de temps très courts avec une précision de l'ordre de la centaine de picosecondes.

Dans les troisième et quatrième parties, nous avons décrit les résultats préliminaires obtenus en émission statique et sous illumination laser d'une nanopointe de tungstène. Nous avons montré que l'émission se comportait avec une statistique temporelle poissonnienne, comme attendue. L'étude du temps de vol entre un électron émis sous illumination laser et l'arrivée de l'impulsion qui a permis son émission a aussi montré que la durée du temps de vol était bien proportionnelle à  $1/\sqrt{V_{DC}}$ , ce qui peut être prédit par un calcul classique.

## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

---

Dans ce manuscrit, nous avons présenté les différentes études expérimentales faites sur l'émission statique et sous illumination laser de nanopointes. Les résultats obtenus dans le cas du tungstène, très bien documentés dans la littérature [HOMMELHOFF et al. (2006); BIONTA et al. (2014)], nous ont servi d'étalon afin de les comparer à des résultats inédits sur des nanopointes de diamant.

Les chapitres 1 et 2 nous ont permis d'établir les bases théoriques ainsi que les outils expérimentaux utilisés au cours de ma thèse. Le dispositif expérimental sert, entre autres, à la mesure du courant d'émission de nanopointe dans le cas de l'émission statique ou lorsque la pointe est illuminée à l'apex par un laser femtoseconde. Les différentes techniques d'émission ont été décrites. Deux catégories sont particulièrement intéressantes pour nos mesures. L'émission de champ à froid, prenant place sous l'effet d'un champ statique intense, et la photoémission, dans le cas de la physique du champ fort (illumination par un laser femtoseconde). Cette dernière permet l'émission d'électrons de deux manières différentes en fonction de l'intensité du champ électrique laser. Afin de différencier les deux, nous possédons un spectromètre à retard, mesurant l'énergie cinétique des électrons émis. Une étude des spectres de photoémission permet de distinguer l'émission multiphotonique, présentant des pics d'émission sur le spectre, de l'émission de champ optique, caractérisée par un plateau sur le spectre s'étendant à de hautes énergies. Une étude des mécanismes de conduction au sein des diélectriques a aussi été proposée afin de comprendre ce phénomène dans des nanopointes de diamant. La conduction des électrons dans les diélectriques est rendue possible par la présence de nombreux défauts. Les mécanismes PF, VRH et SCL (mécanismes de conduction des électrons dans les diélectriques) ont été décrits et ont été réutilisés dans la suite du manuscrit pour définir le mécanisme de conduction à l'intérieur des nanopointes de diamant.

Dans le chapitre 3, nous avons présenté les résultats expérimentaux obtenus sur l'émission statique et sous illumination laser de nanopointes de tungstène. Des calculs du coefficient d'amplification optique en fonction de la phase et de la polarisation ont été effectués afin de les comparer aux cartographies de l'émission. Nous avons montré, à partir de trois études, que la photoémission dans le cas de nanopointes de tungstène était multiphotonique pour les énergies des impulsions laser qui nous intéressent. L'étude de l'émission statique a aussi permis de rappeler la description Fowler-Nordheim de l'émission de champ à froid. Ces résultats, obtenus en statique et sous illumination laser, ont été comparés dans la suite aux résultats obtenus sur le diamant.

Les chapitres 4, 5 et 6 ont présenté l'ensemble des résultats obtenus expérimentalement pour l'émission d'électrons de nanopointes de diamant, ainsi que la modélisation des phénomènes par un circuit électrique simple. Les chapitres 4 et 5 ont été consacrés respectivement à l'étude des résultats pour l'émission statique et sous illumination

laser. Dans le cas statique, l'émission peut être divisée en deux parties : un phénomène de conduction le long de la pointe (conduction Poole-Frenkel) et un phénomène d'émission à l'apex de la pointe (émission Fowler-Nordheim). En faisant l'hypothèse naturelle que les courants associés à ces deux mécanismes sont égaux à n'importe quel moment de l'émission, nous avons pu imaginer un circuit électrique simple, composé de deux résistances en série, afin de modéliser l'émission statique. L'ajustement du modèle sur les courbes expérimentales a permis de remonter à différents paramètres des équations gouvernant les deux phénomènes. Malheureusement, la méconnaissance de la physique de surface de ces pointes (présence de nombreux défauts) ne nous a pas permis de relier ces paramètres d'ajustement à des grandeurs physiques réelles. Dans le chapitre 5, nous avons présenté les résultats pour l'émission sous illumination laser. Ces résultats ont montré un effet de charge de la pointe entre les impulsions du laser. Notre hypothèse est que l'impulsion laser décharge une grande quantité d'électrons, et qu'à la suite de ça, la dynamique lente de la pointe de diamant ne permet pas à l'émission statique de revenir immédiatement. Elle réapparaît cependant après un temps caractéristique de l'ordre de la centaine de microsecondes. Des mesures de ce courant de remontée, entre deux impulsions, à faible taux de répétition du laser, ainsi que des mesures de courant d'émission en fonction de l'énergie des impulsions du laser permettent de confirmer cette hypothèse. En réutilisant le modèle défini dans le chapitre 4, nous avons montré que la dynamique de l'émission sous illumination laser ne peut pas être modélisée par celui-ci. Dans le chapitre 6, nous avons introduit un changement sur le modèle afin de permettre un ajustement plus précis des résultats de l'émission sous illumination laser. Ce nouveau modèle sépare les charges à l'intérieur de la pointe de sorte que le champ à l'apex ne soit plus proportionnel à la tension à l'apex. Ce changement permet l'ajustement d'une des courbes de remontée temporelle. Avec les paramètres d'ajustement calculés, nous avons montré qu'il est possible de calculer des valeurs de courant de photoémission dans divers régimes et que les données expérimentales sont à chaque fois en très bon accord avec les calculs du modèle.

Dans le chapitre 7, nous avons présenté les résultats préliminaires de mesures de la statistique temporelle de l'émission d'électrons. La fabrication d'un nouveau dispositif expérimental a été nécessaire dans le but d'améliorer l'efficacité de détection de notre détecteur. L'ajout d'un TDC (*Time to Digital Converter*), permettant la mesure de temps très courts entre un signal d'entrée et de sortie, nous a permis d'effectuer des mesures de temps entre deux électrons émis successivement ou entre un électron émis et l'impulsion laser à l'origine de la photoémission. Les premières mesures ont confirmé le caractère poissonnien de l'émission en statique ou sous illumination laser pour les nanopointes de tungstène.

L'ensemble du manuscrit ne prétend pas fournir une étude complète sur l'émission d'électrons à partir de nanopointes. De nombreuses autres études auraient pu être faites, notamment sur les pointes de diamant, très peu documentées. Une étude microscopique de la surface de ces pointes serait un bon point de départ afin de comprendre la proportion de défauts sur ces pointes. En effet, la conduction dans un diélectrique provient exclusivement de ses défauts, et en ce sens, l'étude de leurs caractéristiques permettrait de remonter à des grandeurs microscopiques permettant

de valider notre modèle. Au cours de ma thèse, nous avons été limité par le manque de pointes avec un  $\Delta v$ . De nouvelles pointes pourront permettre d'effectuer des mesures de photoémission en changeant la durée temporelle des impulsions du laser ou leur longueur d'onde par exemple. Toutes ces nouvelles mesures pourront venir enrichir l'étude proposée tout en permettant d'ajouter des paramètres de validité à notre modèle.

Le chapitre 7 ne présentant que des résultats préliminaires, il reste aussi de nombreuses mesures à effectuer. L'étude de la densité spectrale de bruit en fonction de la tension statique appliquée pourra être menée dans le cas de pointes métalliques. Toutes les mesures pour des pointes de diamant ont aussi été impossibles à faire par manque de pointes valides. L'étude de la statistique temporelle d'émission dans les cas statique et sous illumination laser, pourrait nous permettre de mieux comprendre le phénomène d'émission, et notamment l'effet de l'émission d'un électron sur ceux qui restent au sein de la pointe.

Les résultats décrits dans ce manuscrit ne constituent pas la fin d'un voyage. Dans le chapitre 3, les calculs et les cartographies sur la photoémission en polarisation laser, ont montré qu'il pourrait être possible de contrôler spatialement l'émission d'électrons par un contrôle optique. En ce qui concerne les pointes de diamant, nous avons montré qu'elles possédaient de nombreuses propriétés d'émission très différentes des métaux. Ces propriétés pourraient être intéressantes dans le cas de la microscopie par exemple. L'un des principaux avantages de ce matériau est sa transparence. Les puissances moyennes utilisées dans nos études sont presque 100 fois supérieure à celles utilisées dans le cas de pointes de tungstène sans que l'on ait observé de dégâts sur la pointe. Cela permettrait par exemple d'éviter des problèmes de chauffage de pointes. Lorsqu'elles sont illuminées par un laser femtoseconde, les nanopointes de tungstène permettent d'émettre un paquet d'onde électronique ultra-court de façon périodique. Nous avons montré que l'effet inverse était possible pour des nanopointes de diamant. En effet, la photoémission, dans le cas du diamant, permet l'annulation du courant statique juste après l'impulsion. Ceci pourrait permettre d'annuler un courant quasi-instantanément pour une durée de quelques centaines de microsecondes. Un des aspects original de mes travaux est que nous avons essayé, tout au long des résultats sur les pointes de diamant, de modéliser l'émission par un schéma électrique équivalent. Ce modèle macroscopique, peu effectué sur des nanopointes de tungstène, permet de comprendre la physique de l'émission du diamant et pourrait être étendu dans le cadre de la mise en place de circuits électriques plus complexes. On pourrait alors utiliser les lois électriques, et notamment certains circuits avec des propriétés spécifiques, afin de construire des systèmes d'émission d'électrons dans le vide utilisant ces propriétés.



## BIBLIOGRAPHIE

---

- AGOSTINI, P., FABRE, F., MAINFRAY, G., PETITE, G. et RAHMAN, N. K. (1979), *Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms*, *Physical Review Letters* **42**, 17, p. 1127-1130, DOI : [10.1103/PhysRevLett.42.1127](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.42.1127).
- AIDELSBURGER, M., KIRCHNER, F. O., KRAUSZ, F. et BAUM, P. (2010), *Single-electron pulses for ultrafast diffraction*, *Proceedings of the National Academy of Sciences* **107**, 46, p. 19714-19719, DOI : [10.1073/pnas.1010165107](https://doi.org/10.1073/pnas.1010165107).
- ARBOUET, A., HOUELIER, F., MARTY, R. et GIRARD, C. (2012), *Interaction of an ultrashort optical pulse with a metallic nanotip : A Green dyadic approach*, *Journal of Applied Physics* **112**, 5, p. 053103, DOI : [10.1063/1.4747840](https://doi.org/10.1063/1.4747840).
- ARTHUR, J. R. (1965), *Photosensitive Field Emission from p-Type Germanium*, *Journal of Applied Physics* **36**, 10, p. 3221-3227, DOI : [10.1063/1.1702953](https://doi.org/10.1063/1.1702953).
- BANDIS, C. et PATE, B. B. (1996), *Simultaneous field emission and photoemission from diamond*, *Applied Physics Letters* **69**, 3, p. 366-368, DOI : [10.1063/1.118062](https://doi.org/10.1063/1.118062).
- BARSOITI, L., HARMS, J. et SCHNABEL, R. (2018), *Squeezed vacuum states of light for gravitational wave detectors*, *Reports on Progress in Physics* **82**, 1, p. 016905, DOI : [10.1088/1361-6633/aab906](https://doi.org/10.1088/1361-6633/aab906).
- BARWICK, B., CORDER, C., STROHABER, J., CHANDLER-SMITH, N., UITERWAAL, C. et BATELAAN, H. (2007), *Laser-induced ultrafast electron emission from a field emission tip*, *New Journal of Physics* **9**, 5, p. 142-142, DOI : [10.1088/1367-2630/9/5/142](https://doi.org/10.1088/1367-2630/9/5/142).
- BASKIN, L. M., LVOV, O. I. et FURSEY, G. N. (1971), *General features of field emission from semiconductors*, *physica status solidi (b)* **47**, 1, p. 49-62, DOI : [10.1002/pssb.2220470105](https://doi.org/10.1002/pssb.2220470105).
- BAUM, P. (2013), *On the physics of ultrashort single-electron pulses for time-resolved microscopy and diffraction*, *Chemical Physics* **423**, p. 55-61, DOI : [10.1016/j.chemphys.2013.06.012](https://doi.org/10.1016/j.chemphys.2013.06.012).
- BIONTA, M. R., CHALOPIN, B., CHAMPEAUX, J. P., FAURE, S., MASSEBOEUF, A., MORETTO-CAPELLE, P. et CHATEL, B. (2014), *Laser-induced electron emission from a tungsten nanotip : identifying above threshold photoemission using energy-resolved laser power dependencies*, *Journal of Modern Optics* **61**, 10, p. 833-838, DOI : [10.1080/09500340.2013.846432](https://doi.org/10.1080/09500340.2013.846432).
- BIONTA, M. R., WEBER, S. J., BLUM, I., MAUCHAIN, J., CHATEL, B. et CHALOPIN, B. (2016), *Wavelength and shape dependent strong-field photoemission from silver nanotips*, *New Journal of Physics* **18**, 10, p. 103010, DOI : [10.1088/1367-2630/18/10/103010](https://doi.org/10.1088/1367-2630/18/10/103010).



- BIONTA, M. R. (2015), *New experiment for understanding the physical mechanisms of ultrafast laser-induced electron emission from novel metallic nanotips*, phd, Université de Toulouse, Université Toulouse III - Paul Sabatier.
- BORMANN, R., STRAUCH, S., SCHÄFER, S. et ROPERS, C. (2015), *An ultrafast electron microscope gun driven by two-photon photoemission from a nanotip cathode*, *Journal of Applied Physics* **118**, 17, p. 173105, DOI : [10.1063/1.4934681](https://doi.org/10.1063/1.4934681).
- BORZ, M., H. MAMMEZ, M., BLUM, I., HOUARD, J., COSTA, G. D., DELAROCHE, F., IDLAHCEN, S., HABOUCCHA, A., HIDEUR, A., I. KLESHCH, V., N. OBRAZTSOV, A. et VELLA, A. (2019), *Photoassisted and multiphoton emission from single-crystal diamond needles*, *Nanoscale* **11**, 14, p. 6852-6858, DOI : [10.1039/C9NR01001G](https://doi.org/10.1039/C9NR01001G).
- BORZYAK, P. G., YATSENKO, A. F. et MIROSHNICHENKO, L. S. (1966), *Photo-Field-Emission from High-Resistance Silicon and Germanium*, *physica status solidi (b)* **14**, 2, p. 403-411, DOI : [10.1002/pssb.19660140218](https://doi.org/10.1002/pssb.19660140218).
- BRABEC, T., éd. (2008), *Strong field laser physics*, Springer series in optical sciences 134, OCLC : ocm74966972, New York, NY : Springer.
- BRADLER, M., BAUM, P. et RIEDLE, E. (2009), *Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub- $\mu$ J pump pulses*, *Applied Physics B* **97**, 3, p. 561, DOI : [10.1007/s00340-009-3699-1](https://doi.org/10.1007/s00340-009-3699-1).
- BULASHENKO, O. M. et RUBÍ, J. M. (2003), *Quantum suppression of shot noise in field emitters*, *Physical Review B* **67**, 11, p. 115322, DOI : [10.1103/PhysRevB.67.115322](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.67.115322).
- BUNKIN, F. V. et FEDOROV, M. V. (1965), *Cold Emission of Electrons from the Surface of a Metal in a Strong Radiation Field*, *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics* **21**, p. 896.
- BURNETT, N. H., BALDIS, H. A., RICHARDSON, M. C. et ENRIGHT, G. D. (1977), *Harmonic generation in CO<sub>2</sub> laser target interaction*, *Applied Physics Letters* **31**, 3, p. 172-174, DOI : [10.1063/1.89628](https://doi.org/10.1063/1.89628).
- CARUSO, G. M., HOUELLELIER, F., ABEILHOU, P. et ARBOUET, A. (2017), *Development of an ultrafast electron source based on a cold-field emission gun for ultrafast coherent TEM*, *Applied Physics Letters* **111**, 2, p. 023101, DOI : [10.1063/1.4991681](https://doi.org/10.1063/1.4991681).
- CERULLO, G. et DE SILVESTRI, S. (2003), *Ultrafast optical parametric amplifiers*, *Review of Scientific Instruments* **74**, 1, p. 1-18, DOI : [10.1063/1.1523642](https://doi.org/10.1063/1.1523642).
- CHANG, Z., RUNDQUIST, A., WANG, H., MURNANE, M. M. et KAPTEYN, H. C. (1997), *Generation of Coherent Soft X Rays at 2.7 nm Using High Harmonics*, *Physical Review Letters* **79**, 16, p. 2967-2970, DOI : [10.1103/PhysRevLett.79.2967](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.79.2967).
- CHOUAIB, M., AYARI, A., VINCENT, P., PERISANU, S. et PURCELL, S. T. (2011), *Evidence for Poole-Frenkel conduction in individual SiC nanowires by field emission transport measurements*, *Journal of Applied Physics* **109**, 7, p. 073709, DOI : [10.1063/1.3556736](https://doi.org/10.1063/1.3556736).
- CORKUM, P. B. (1993), *Plasma perspective on strong field multiphoton ionization*, *Physical Review Letters* **71**, 13, p. 1994-1997, DOI : [10.1103/PhysRevLett.71.1994](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.71.1994).

- CORKUM, P. B., BURNETT, N. H. et BRUNEL, F. (1989), *Above-threshold ionization in the long-wavelength limit*, Physical Review Letters **62**, 11, p. 1259-1262, DOI : [10.1103/PhysRevLett.62.1259](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.62.1259).
- DELONG, K. W., TREBINO, R., HUNTER, J. et WHITE, W. E. (1994), *Frequency-resolved optical gating with the use of second-harmonic generation*, JOSA B **11**, 11, p. 2206-2215, DOI : [10.1364/JOSAB.11.002206](https://doi.org/10.1364/JOSAB.11.002206).
- DUSHMAN, S. (1923), *Electron Emission from Metals as a Function of Temperature*, Physical Review **21**, 6, p. 623-636, DOI : [10.1103/PhysRev.21.623](https://doi.org/10.1103/PhysRev.21.623).
- EINSTEIN, A. (1905), *Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt*, Annalen der Physik **322**, 6, p. 132-148, DOI : [10.1002/andp.19053220607](https://doi.org/10.1002/andp.19053220607).
- EKVALL, I., WAHLSTRÖM, E., CLAESSON, D., OLIN, H. a. et OLSSON, E. (1999), *Preparation and characterization of electrochemically etched W tips for STM*, Measurement Science and Technology **10**, 1, p. 11-18, DOI : [10.1088/0957-0233/10/1/006](https://doi.org/10.1088/0957-0233/10/1/006).
- FEIST, A., ECHTERNKAMP, K. E., SCHAUSS, J., YALUNIN, S. V., SCHÄFER, S. et ROPERS, C. (2015), *Quantum coherent optical phase modulation in an ultrafast transmission electron microscope*, Nature **521**, 7551, p. 200-203, DOI : [10.1038/nature14463](https://doi.org/10.1038/nature14463).
- FERRAY, M., HUILLIER, A., LI, X. F., LOMPRES, L. A., MAINFRAY, G. et MANUS, C. (1988), *Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases*, Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics **21**, 3, p. L31-L35, DOI : [10.1088/0953-4075/21/3/001](https://doi.org/10.1088/0953-4075/21/3/001).
- FORBES, R. G. (2008), *Physics of generalized Fowler-Nordheim-type equations*, Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena **26**, 2, p. 788-793, DOI : [10.1116/1.2827505](https://doi.org/10.1116/1.2827505).
- FORBES, R. G. et DEANE, J. G. (2007), *Reformulation of the standard theory of Fowler-Nordheim tunnelling and cold field electron emission*, Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences **463**, 2087, p. 2907-2927, DOI : [10.1098/rspa.2007.0030](https://doi.org/10.1098/rspa.2007.0030).
- FOWLER, H. R. et NORDHEIM, L. (1928), *Electron emission in intense electric fields*, Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character **119**, 781, p. 173-181, DOI : [10.1098/rspa.1928.0091](https://doi.org/10.1098/rspa.1928.0091).
- FREEMAN, R. R., BUCKSBAUM, P. H., MILCHBERG, H., DARACK, S., SCHUMACHER, D. et GEUSIC, M. E. (1987), *Above-threshold ionization with subpicosecond laser pulses*, Physical Review Letters **59**, 10, p. 1092-1095, DOI : [10.1103/PhysRevLett.59.1092](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.59.1092).
- FRENKEL, J. (1938), *On Pre-Breakdown Phenomena in Insulators and Electronic Semiconductors*, Physical Review **54**, 8, p. 647-648, DOI : [10.1103/PhysRev.54.647](https://doi.org/10.1103/PhysRev.54.647).
- FÖRSTER, M., PASCHEN, T., KRÜGER, M., LEMELL, C., WACHTER, G., LIBISCH, F., MADLENER, T., BURGDÖRFER, J. et HOMMELHOFF, P. (2016), *Two-Color Coherent Control of*

- Femtosecond Above-Threshold Photoemission from a Tungsten Nanotip*, Physical Review Letters **117**, 21, p. 217601, DOI : [10.1103/PhysRevLett.117.217601](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.217601).
- FURSEY, G. N. et EGOROV, N. V. (1969), *Field Emission from p-Type Si*, physica status solidi (b) **32**, 1, p. 23-29, DOI : [10.1002/pssb.19690320103](https://doi.org/10.1002/pssb.19690320103).
- FURSEY, G. N. (2007), *Field Emission in Vacuum Microelectronics*, Google-Books-ID : S5a4T1Oub4kC, Springer Science & Business Media.
- GEIS, M. W., TWICHELL, J. C., EFREMOW, N. N., KROHN, K. et LYSZCZARZ, T. M. (1996), *Comparison of electric field emission from nitrogen-doped, type Ib diamond, and boron-doped diamond*, Applied Physics Letters **68**, 16, p. 2294-2296, DOI : [10.1063/1.116168](https://doi.org/10.1063/1.116168).
- GÖHL, A., GÜNTHER, B., HABERMANN, T., MÜLLER, G., SCHRECK, M., THÜRER, K. H. et STRITZKER, B. (2000), *Field emission mechanism from undoped chemical vapor deposition diamond films*, Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena **18**, 2, p. 1031-1034, DOI : [10.1116/1.591321](https://doi.org/10.1116/1.591321).
- GLAUBER, R. J. (1963), *The Quantum Theory of Optical Coherence*, Physical Review **130**, 6, p. 2529-2539, DOI : [10.1103/PhysRev.130.2529](https://doi.org/10.1103/PhysRev.130.2529).
- GLESENER, J. W. et MORRISH, A. A. (1996), *Investigation of the temperature dependence of the field emission current of polycrystalline diamond films*, Applied Physics Letters **69**, 6, p. 785-787, DOI : [10.1063/1.117891](https://doi.org/10.1063/1.117891).
- GOMER, R. (1961), *Field Emission and Field Ionization*, vol. 9 of *Harvard Monographs in Applied Science*, Cambridge, Massachusetts : Harvard University Press.
- GOOD, R. H. et MÜLLER, E. W. (1956), *Field Emission, Electron-Emission Gas Discharges I / Elektronen-Emission Gasentladungen I*, sous la dir. de W. B. NOTTINGHAM, R. H. GOOD, E. W. MÜLLER, R. KOLLATH, G. L. WEISSLER, W. P. ALLIS, L. B. LOEB, A. VON ENGEL et P. F. LITTLE, Encyclopedia of Physics / Handbuch der Physik, Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, p. 176-231, DOI : [10.1007/978-3-642-45844-6\\_2](https://doi.org/10.1007/978-3-642-45844-6_2).
- GRYNBERG, G., ASPECT, A. et FABRE, C. (2010), *Introduction to Quantum Optics : From the Semi-classical Approach to Quantized Light*, Cambridge University Press.
- GULDE, M., SCHWEDA, S., STORECK, G., MAITI, M., YU, H. K., WODTKE, A. M., SCHAFFER, S. et ROPERS, C. (2014), *Ultrafast low-energy electron diffraction in transmission resolves polymer/graphene superstructure dynamics*, Science **345**, 6193, p. 200-204, DOI : [10.1126/science.1250658](https://doi.org/10.1126/science.1250658).
- HARTMANN, C. A. (1921), *Über die Bestimmung des elektrischen Elementarquantums aus dem Schrotheffekt*, Annalen der Physik **370**, 9, p. 51-78, DOI : [10.1002/andp.19213700905](https://doi.org/10.1002/andp.19213700905).
- HERINK, G., SOLLI, D. R., GULDE, M. et ROPERS, C. (2012), *Field-driven photoemission from nanostructures quenches the quiver motion*, Nature **483**, 7388, p. 190-193, DOI : [10.1038/nature10878](https://doi.org/10.1038/nature10878).

- HIMPSEL, F. J., KNAPP, J. A., VANVECHTEN, J. A. et EASTMAN, D. E. (1979), *Quantum photoyield of diamond(111)—A stable negative-affinity emitter*, *Physical Review B* **20**, 2, p. 624-627, DOI : [10.1103/PhysRevB.20.624](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.20.624).
- HOMMELHOFF, P., SORTAIS, Y., AGHAJANI-TALES, A. et KASEVICH, M. A. (2006), *Field emission tip as a nanometer source of free electron femtosecond pulses*, *Physical Review Letters* **96**, 7, p. 077401, DOI : [10.1103/PhysRevLett.96.077401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.077401).
- HORI, H., MAEDA, N., KOBAYASHI, N. et SAKISAKA, M. (1975), *Electron energy spectrometer of retarding field type*, *Nuclear Instruments and Methods* **130**, 1, p. 135-141, DOI : [10.1016/0029-554X\(75\)90165-2](https://doi.org/10.1016/0029-554X(75)90165-2).
- HOUELIER, F., CARUSO, G. M., WEBER, S., KOZIAK, M. et ARBOUET, A. (2018), *Development of a high brightness ultrafast Transmission Electron Microscope based on a laser-driven cold field emission source*, *Ultramicroscopy* **186**, p. 128-138, DOI : [10.1016/j.ultramicro.2017.12.015](https://doi.org/10.1016/j.ultramicro.2017.12.015).
- HULL, A. W. et WILLIAMS, N. H. (1925), *Determination of Elementary Charge E from Measurements of Shot-Effect.*, *Physical Review* **25**, 2, p. 147-173, DOI : [10.1103/PhysRev.25.147](https://doi.org/10.1103/PhysRev.25.147).
- KEALHOFER, C., FOREMAN, S. M., GERLICH, S. et KASEVICH, M. A. (2012), *Ultrafast laser-triggered emission from hafnium carbide tips*, *Physical Review B* **86**, 3, p. 035405, DOI : [10.1103/PhysRevB.86.035405](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.86.035405).
- KELDYSH, L. V. (1965), *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*, *Soviet Physics JETP* **20**, 5, p. 1307.
- KLESHCH, V. I., PURCELL, S. T. et OBRAZTSOV, A. N. (2016), *Single Crystal Diamond Needle as Point Electron Source*, *Scientific Reports* **6**, p. 35260, DOI : [10.1038/srep35260](https://doi.org/10.1038/srep35260).
- KRAUSZ, F. et IVANOV, M. (2009), *Attosecond physics*, *Reviews of Modern Physics* **81**, 1, p. 163-234, DOI : [10.1103/RevModPhys.81.163](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.81.163).
- KRÜGER, M., SCHENK, M., FÖRSTER, M. et HOMMELHOFF, P. (2012), *Attosecond physics in photoemission from a metal nanotip*, *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics* **45**, 7, p. 074006, DOI : [10.1088/0953-4075/45/7/074006](https://doi.org/10.1088/0953-4075/45/7/074006).
- KRÜGER, M., SCHENK, M. et HOMMELHOFF, P. (2011), *Attosecond control of electrons emitted from a nanoscale metal tip*, *Nature* **475**, 7354, p. 78-81, DOI : [10.1038/nature10196](https://doi.org/10.1038/nature10196).
- L'HUILLIER, A. et BALCOU, P. (1993), *High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser*, *Physical Review Letters* **70**, 6, p. 774-777, DOI : [10.1103/PhysRevLett.70.774](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.70.774).
- LAMPERT, M. A. et MARK, P. (1970), *Current injection in solids*, *Electrical science series*, New York, NY : Academic Press.
- LEE, M. J. G. (1973), *Field Emission of Hot Electrons from Tungsten*, *Physical Review Letters* **30**, 24, p. 1193-1196, DOI : [10.1103/PhysRevLett.30.1193](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.30.1193).

- LEWENSTEIN, M., BALCOU, P., IVANOV, M. Y., L'HUILLIER, A. et CORKUM, P. B. (1994), *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*, Physical Review A **49**, 3, p. 2117-2132, DOI : [10.1103/PhysRevA.49.2117](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.49.2117).
- LUAN, S., HIPPLER, R., SCHWIER, H. et LUTZ, H. O. (1989), *Electron Emission from Polycrystalline Copper Surfaces by Multi-Photon Absorption*, Europhysics Letters (EPL) **9**, 5, p. 489-494, DOI : [10.1209/0295-5075/9/5/014](https://doi.org/10.1209/0295-5075/9/5/014).
- LUCIER, A.-S. (2004), *Preparation and Characterization of Tungsten Tips Suitable for Molecular Electronics Studies*, p. 129.
- MALYKHIN, S. A., HOUARD, J., ISMAGILOV, R. R., OREKHOV, A. S., VELLA, A. et OBRAZTSOV, A. N. (2018), *Luminescent Characteristics of Needle-Like Single Crystal Diamonds*, physica status solidi (b) **255**, 1, p. 1700189, DOI : [10.1002/pssb.201700189](https://doi.org/10.1002/pssb.201700189).
- MCPHERSON, A., GIBSON, G., JARA, H., JOHANN, U., LUK, T. S., MCINTYRE, I. A., BOYER, K. et RHODES, C. K. (1987), *Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases*, JOSA B **4**, 4, p. 595-601, DOI : [10.1364/JOSAB.4.000595](https://doi.org/10.1364/JOSAB.4.000595).
- MENDENHALL, C. E. et DEVOE, C. F. (1937), *The Photoelectric Work Functions of the 211 and 310 Planes of Tungsten*, Physical Review **51**, 5, p. 346-349, DOI : [10.1103/PhysRev.51.346](https://doi.org/10.1103/PhysRev.51.346).
- MOTT, N. F. et DAVIS, E. A. (1971), *Electronic processes in non-crystalline materials*, International series of monographs on physics, Oxford : Clarendon Press.
- MURPHY, E. L. et GOOD, R. H. (1956), *Thermionic Emission, Field Emission, and the Transition Region*, Physical Review **102**, 6, p. 1464-1473, DOI : [10.1103/PhysRev.102.1464](https://doi.org/10.1103/PhysRev.102.1464).
- NEUMANN, H. (1967), *Photosensitive Field Electron Emission from In<sub>2</sub>S<sub>3</sub>*, physica status solidi (b) **20**, 1, K33-K35, DOI : [10.1002/pssb.19670200150](https://doi.org/10.1002/pssb.19670200150).
- OBRAZTSOV, A. N., KOPYLOV, P. G., LOGINOV, B. A., DOLGANOV, M. A., ISMAGILOV, R. R. et SAVENKO, N. V. (2010), *Single crystal diamond tips for scanning probe microscopy*, Review of Scientific Instruments **81**, 1, p. 013703, DOI : [10.1063/1.3280182](https://doi.org/10.1063/1.3280182).
- OKANO, K., KOIZUMI, S., SILVA, S. R. P. et AMARATUNGA, G. A. J. (1996), *Low-threshold cold cathodes made of nitrogen-doped chemical-vapour-deposited diamond*, Nature **381**, 6578, p. 140, DOI : [10.1038/381140a0](https://doi.org/10.1038/381140a0).
- ORDAL, M. A., BELL, R. J., ALEXANDER, R. W., NEWQUIST, L. A. et QUERRY, M. R. (1988), *Optical properties of Al, Fe, Ti, Ta, W, and Mo at submillimeter wavelengths*, Applied Optics **27**, 6, p. 1203, DOI : [10.1364/AO.27.001203](https://doi.org/10.1364/AO.27.001203).
- PAARMANN, A., GULDE, M., MÜLLER, M., SCHÄFER, S., SCHWEDA, S., MAITI, M., XU, C., HOHAGE, T., SCHENK, F., ROPERS, C. et ERNSTORFER, R. (2012), *Coherent femtosecond low-energy single-electron pulses for time-resolved diffraction and imaging : A numerical study*, Journal of Applied Physics **112**, 11, p. 113109, DOI : [10.1063/1.4768204](https://doi.org/10.1063/1.4768204).
- PARK, D. J., PIGLOSIEWICZ, B., SCHMIDT, S., KOLLMANN, H., MASCHECK, M. et LIENAU, C. (2012), *Strong Field Acceleration and Steering of Ultrafast Electron Pulses from a*

- Sharp Metallic Nanotip*, Physical Review Letters **109**, 24, p. 244803, DOI : [10.1103/PhysRevLett.109.244803](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.244803).
- PASCHEN, T., FÖRSTER, M., KRÜGER, M., LEMELL, C., WACHTER, G., LIBISCH, F., MADLENER, T., BURGDÖRFER, J. et HOMMELHOFF, P. (2017), *High visibility in two-color above-threshold photoemission from tungsten nanotips in a coherent control scheme*, Journal of Modern Optics **64**, 10-11, p. 1054-1060, DOI : [10.1080/09500340.2017.1281453](https://doi.org/10.1080/09500340.2017.1281453).
- PAULUS, G. G., NICKLICH, W., XU, H., LAMBROPOULOS, P. et WALTHER, H. (1994), *Plateau in above threshold ionization spectra*, Physical Review Letters **72**, 18, p. 2851-2854, DOI : [10.1103/PhysRevLett.72.2851](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.72.2851).
- RICHARDSON, O. W. (1924), *Electron Emission from Metals as a Function of Temperature*, Physical Review **23**, 2, p. 153-155, DOI : [10.1103/PhysRev.23.153](https://doi.org/10.1103/PhysRev.23.153).
- ROBERS, C., SOLLI, D. R., SCHULZ, C. P., LIENAU, C. et ELSAESSER, T. (2007), *Localized Multiphoton Emission of Femtosecond Electron Pulses from Metal Nanotips*, Physical Review Letters **98**, 4, p. 043907, DOI : [10.1103/PhysRevLett.98.043907](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.043907).
- ROSE, A. (1955), *Space-Charge-Limited Currents in Solids*, Physical Review **97**, 6, p. 1538-1544, DOI : [10.1103/PhysRev.97.1538](https://doi.org/10.1103/PhysRev.97.1538).
- SCHAFFER, K. J., YANG, B., DIMAURO, L. F. et KULANDER, K. C. (1993), *Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff*, Physical Review Letters **70**, 11, p. 1599-1602, DOI : [10.1103/PhysRevLett.70.1599](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.70.1599).
- SCHENK, M., KRÜGER, M. et HOMMELHOFF, P. (2010), *Strong-Field Above-Threshold Photoemission from Sharp Metal Tips*, Physical Review Letters **105**, 25, p. 257601, DOI : [10.1103/PhysRevLett.105.257601](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.105.257601).
- SCHERTZ, F., SCHMELZEISEN, M., KREITER, M., ELMERS, H.-J. et SCHÖNHENSE, G. (2012), *Field Emission of Electrons Generated by the Near Field of Strongly Coupled Plasmons*, Physical Review Letters **108**, 23, p. 237602, DOI : [10.1103/PhysRevLett.108.237602](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.237602).
- SCHOTTKY, W. (1922), *Zur Berechnung und Beurteilung des Schroteffektes*, Annalen der Physik **373**, 10, p. 157-176, DOI : [10.1002/andp.19223731007](https://doi.org/10.1002/andp.19223731007).
- SCHOTTKY, W. (1923), *Über kalte und warme Elektronenentladungen*, Zeitschrift für Physik **14**, 1, p. 63-106, DOI : [10.1007/BF01340034](https://doi.org/10.1007/BF01340034).
- SCHRODER, D. K., THOMAS, R. N., VINE, J. et NATHANSON, H. C. (1974), *The semiconductor field-emission photocathode*, IEEE Transactions on Electron Devices **21**, 12, p. 785-798, DOI : [10.1109/T-ED.1974.18055](https://doi.org/10.1109/T-ED.1974.18055).
- SCIAINI, G. et MILLER, R. J. D. (2011), *Femtosecond electron diffraction : heralding the era of atomically resolved dynamics*, Reports on Progress in Physics **74**, 9, p. 096101, DOI : [10.1088/0034-4885/74/9/096101](https://doi.org/10.1088/0034-4885/74/9/096101).
- STONEHAM, A. M., HARKER, A. H. et MORLEY, G. W. (2009), *Could one make a diamond-based quantum computer ?*, Journal of Physics : Condensed Matter **21**, 36, p. 364222, DOI : [10.1088/0953-8984/21/36/364222](https://doi.org/10.1088/0953-8984/21/36/364222).

- TAFEL, A., WU, M., SPIECKER, E., HOMMELHOFF, P. et RISTEIN, J. (2019a), *Fabrication and structural characterization of diamond-coated tungsten tips*, arXiv :1902.01369 [cond-mat], arXiv : 1902.01369.
- TAFEL, A., RISTEIN, J. et HOMMELHOFF, P. (2019b), *Femtosecond laser-induced electron emission from nanodiamond-coated tungsten needle tips*, arXiv :1903.05560 [cond-mat, physics :physics], arXiv : 1903.05560.
- THOMAS, S., KRÜGER, M., FÖRSTER, M., SCHENK, M. et HOMMELHOFF, P. (2013), *Probing of Optical Near-Fields by Electron Rescattering on the 1 nm Scale*, Nano Letters **13**, 10, p. 4790-4794, DOI : [10.1021/nl402407r](https://doi.org/10.1021/nl402407r).
- THOMAS, S., WACHTER, G., LEMELL, C., BURGDÖRFER, J. et HOMMELHOFF, P. (2015), *Large optical field enhancement for nanotips with large opening angles*, New Journal of Physics **17**, 6, p. 063010, DOI : [10.1088/1367-2630/17/6/063010](https://doi.org/10.1088/1367-2630/17/6/063010).
- TORRESIN, O., BORZ, M., MAUCHAIN, J., BLUM, I., KLESHCH, V. I., OBRAZTSOV, A. N., VELLA, A. et CHALOPIN, B. (2019), *Conduction mechanisms and voltage drop during field electron emission from diamond needles*, Ultramicroscopy **202**, p. 51-56, DOI : [10.1016/j.ultramic.2019.03.006](https://doi.org/10.1016/j.ultramic.2019.03.006).
- TSONG, T. T. (1994), *Atom-probe field ion microscopy and applications to surface science*, Surface Science **299-300**, p. 153-169, DOI : [10.1016/0039-6028\(94\)90652-1](https://doi.org/10.1016/0039-6028(94)90652-1).
- TÓTH, C., FARKAS, G. et VODOPYANOV, K. L. (1991), *Laser-induced electron emission from an Au surface irradiated by single picosecond pulses at  $\lambda=2.94 \mu\text{m}$ . The intermediate region between multiphoton and tunneling effects*, Applied Physics B **53**, 4, p. 221-225, DOI : [10.1007/BF00357140](https://doi.org/10.1007/BF00357140).
- UIBERACKER, M., UPHUES, T., SCHULTZE, M., VERHOEF, A. J., YAKOVLEV, V., KLING, M. F., RAUSCHENBERGER, J., KABACHNIK, N. M., SCHRÖDER, H., LEZIUS, M., KOMPA, K. L., MULLER, H.-G., VRACKING, M. J. J., HENDEL, S., KLEINEBERG, U., HEINZMANN, U., DRESCHER, M. et KRAUSZ, F. (2007), *Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms*, Nature **446**, 7136, p. 627-632, DOI : [10.1038/nature05648](https://doi.org/10.1038/nature05648).
- VENUS, D. et LEE, M. J. G. (1983), *Polarization dependence of photoexcitation in photofield emission*, Surface Science **125**, 2, p. 452-472, DOI : [10.1016/0039-6028\(83\)90577-0](https://doi.org/10.1016/0039-6028(83)90577-0).
- WANG, C., GARCIA, A., INGRAM, D. C., LAKE, M. et KORDSCH, M. E. (1991), *Cold field emission from CVD diamond films observed in emission electron microscopy*, Electronics Letters **27**, 16, p. 1459-1461, DOI : [10.1049/el:19910914](https://doi.org/10.1049/el:19910914).
- WEIDE, J. van der, ZHANG, Z., BAUMANN, P. K., WENSELL, M. G., BERNHOLC, J. et NEMANICH, R. J. (1994), *Negative-electron-affinity effects on the diamond (100) surface*, Physical Review B **50**, 8, p. 5803-5806, DOI : [10.1103/PhysRevB.50.5803](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.50.5803).
- WU, L., ANG, L. K. et KOH, W. S. (2008), *Theory of shot noise in high-current space-charge-limited field emission*, Physical Review B **77**, 11, p. 115351, DOI : [10.1103/PhysRevB.77.115351](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.115351).
- YANAGISAWA, H., HAFNER, C., DONÁ, P., KLÖCKNER, M., LEUENBERGER, D., GREBER, T., HENGESBERGER, M. et OSTERWALDER, J. (2009), *Optical Control of Field-Emission*

- Sites by Femtosecond Laser Pulses*, Physical Review Letters **103**, 25, p. 257603, DOI : [10.1103/PhysRevLett.103.257603](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.103.257603).
- YANG, D.-S., MOHAMMED, O. F. et ZEWAİL, A. H. (2010), *Scanning ultrafast electron microscopy*, Proceedings of the National Academy of Sciences **107**, 34, p. 14993-14998, DOI : [10.1073/pnas.1009321107](https://doi.org/10.1073/pnas.1009321107).
- ZEWAİL, A. H. (2010), *Four-Dimensional Electron Microscopy*, Science **328**, 5975, p. 187-193, DOI : [10.1126/science.1166135](https://doi.org/10.1126/science.1166135).
- ZHEREBTSOV, S., FENNEL, T., PLENGE, J., ANTONSSON, E., ZNAKOVSKAYA, I., WIRTH, A., HERRWERTH, O., SÜSSMANN, F., PELTZ, C., AHMAD, I., TRUSHIN, S. A., PERVAK, V., KARSCH, S., VRAKING, M. J. J., LANGER, B., GRAF, C., STOCKMAN, M. I., KRAUSZ, F., RÜHL, E. et KLING, M. F. (2011), *Controlled near-field enhanced electron acceleration from dielectric nanospheres with intense few-cycle laser fields*, Nature Physics **7**, 8, p. 656-662, DOI : [10.1038/nphys1983](https://doi.org/10.1038/nphys1983).
- ZHU, W., KOCHANSKI, G. P. et JIN, S. (1998), *Low-Field Electron Emission from Undoped Nanostructured Diamond*, Science **282**, 5393, p. 1471-1473, DOI : [10.1126/science.282.5393.1471](https://doi.org/10.1126/science.282.5393.1471).





## ABSTRACT

---

This thesis presents electron emission from metallic (tungsten) and dielectric (diamond) nanotips under femtosecond laser illumination. The behavior of DC emission and laser induced photoemission from tungsten nanotips has been widely studied and we use it to benchmark diamond measurements.

In the first part, we study DC emission and photoemission from tungsten nanotips. Numerical simulations made from a finite element model (using COMSOL) of our experimental setup, allow the computation of static and optical field enhancement coefficients linked to the tip geometry. Results are compared with the spatial profile of electron emission, which links the field enhancement area at the tip apex and the electron detection area.

In the second part, we study DC emission and photoemission from diamond nanotips. Electron energy measurements highlight the presence of a voltage drop along the diamond tip, due to the low conductivity of this material. Electron emission current inside the tip and at the apex obeys Poole-Frenkel conduction, coupled with Fowler-Nordheim field emission observed commonly for metallic surfaces. We propose a macroscopic model to combine conduction and emission mechanisms for DC emission. Under laser illumination, emission measurements are very different from the metallic case. Electron emission saturates under intense laser illumination. In this regime, we show that the DC current cannot reach its DC value between pulses. By lowering laser repetition rate, we are able to measure the dynamics of the DC current in between laser pulses. We adapt the DC macroscopic model for laser induced photoemission using an effective capacitance, and we show very good quantitative agreement with experimental measurement obtained on diamond nanotips.

The last part is an introduction to electron time-of-flight measurements to measure the temporal statistics of electron arrival times. We present the modifications made on the experimental setup to be able to make these kinds of measurements, as well as preliminary results obtained on DC and laser-induced emission from tungsten nanotip.

## RÉSUMÉ

---

Cette thèse s'intéresse à l'émission d'électrons à partir de nanopointes métalliques et diélectriques sous illumination laser femtoseconde. Les différents types d'émission sont étudiés dans les cas spécifiques de nanopointes de tungstène et de diamant. Les nombreuses études précédentes sur le tungstène, permettent une comparaison des phénomènes d'émission bien connus, à ceux, nouveaux, observés dans le cas du diamant.

Dans la première partie de l'étude, nous reprenons les résultats expérimentaux de l'émission statique et de la photoémission à partir de nanopointes de tungstène. Des simulations numériques, faites à partir d'un modèle à éléments finis (utilisant le logiciel commercial) COMSOL du dispositif expérimental, permettent un calcul des coefficients d'amplification statique et optique du champ électrique, due à la forme particulière de ces pointes. Les résultats sont alors comparés à des cartographies spatiales de l'émission, ce qui permet de conclure sur la relation directe entre la zone d'amplification du champ à l'apex de la pointe et la zone d'arrivée des électrons sur le détecteur.

Dans la deuxième partie de l'étude, nous reprenons les études expérimentales faites sur le tungstène pour le cas du diamant. Les premières mesures de l'énergie des électrons mettent en évidence la présence d'une chute de tension le long de la pointe de diamant, venant de sa faible conductivité. Le courant de conduction des électrons dans la pointe est alors modélisé par un mécanisme Poole-Frenkel dépendant directement de cette chute de tension. Nous modélisons l'émission statique de ces pointes par un circuit électrique simple composé de deux résistances en série. Dans le régime de photoémission, induit par un laser femtoseconde, les résultats sont très différents du cas du tungstène. Les impulsions laser induisent l'émission d'électrons jusqu'à un courant de saturation tel que l'émission statique entre les impulsions disparaît. Nous avons mesuré le temps nécessaire (de l'ordre de la microseconde) permettant à l'émission statique de réapparaître entre les impulsions laser. Ces mesures sont interprétées par un effet capacitif de déplétion des charges disponibles pour la photoémission. En complétant le modèle électrique précédant avec l'ajout d'un condensateur, il est possible de modéliser quantitativement l'ensemble des résultats obtenus pour l'émission statique et la photoémission de nanopointe de diamant.

La dernière partie de l'étude propose une introduction à la mesure du temps de vol et des statistiques temporelles des électrons émis. Nous présentons les changements opérés sur le dispositif expérimental afin de permettre de telles mesures ainsi que les résultats préliminaires obtenus sur une nanopointe de tungstène sous illumination laser.