



# Thèse de Doctorat de l'Université de Reims Champagne-Ardenne

*Pour obtenir le grade de*

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE**

*Spécialité : Physique*

*Présentée et Soutenue Publiquement*

*par*

**Slim FAKHFAKH**

Le 6 / 12 / 2004

*Sujet :*

## **ETUDE DES PHENOMENES DE CHARGE DES MATERIAUX DIELECTRIQUES SOUMIS A UNE IRRADIATION ELECTRONIQUE PERMANENTE**

*Directeur de thèse*

**M. Omar JBARA**

JURY

<i>M.G.Balossier</i>	Professeur, Université de Reims	<b>Président</b>
M. G. Moya	Professeur, Université de Marseille	<b>Rapporteur</b>
M. J.J. Martinez-Vega	Professeur, Université Paul Sabatier, Toulouse	<b>Rapporteur</b>
M. P. Molinié	Professeur, Supelec Paris	<b>Examineur</b>
M. Z. Fakhfakh	Professeur, Faculté des Sciences de Sfax	<b>Examineur</b>
M. O. Jbara	Maître de conférence, HDR, Université Champagne-Ardenne, Reims	<b>Directeur</b>

---

## AVANT-PROPOS

---

CES TRAVAUX ONT ETE REALISE AU SEIN DE LA PARTIE PHYSIQUE DE L'UNITE *DTI* (DYNAMIQUE DES TRANSFERTS AUX INTERFACES) DE L'UNIVERSITE DE REIMS (FRANCE) SOUS LA DIRECTION DE MONSIEUR LE PROFESSEUR *OMAR JBARA*.

JE REMERCIE VIVEMENT MONSIEUR *G. BALOSSIER*, PROFESSEUR A UNIVERSITE DE REIMS, D'AVOIR BIEN VOULU ASSURER LA PRESIDENCE DE MON JURY DE THESE.

MESSIEURS, *G. MOYA*, PROFESSEUR A UNIVERSITE DE MARSEILLE, *J.J. MARTINEZ-VEGA*, PROFESSEUR, UNIVERSITE PAUL SABATIER TOULOUSE, DE M'AVOIR FAIT L'HONNEUR DE PARTICIPER A CE MEME JURY ET D'AVOIR ACCEPTE D'ETRE RAPPORTEURS.

JE REMERCIE EGALEMENT MESSIEURS *Z. FAKHFAKH*, PROFESSEUR A LA FACULTE DES SCIENCES DE SFAX, *P. MOLINIE*, PROFESSEUR *SUPELEC PARIS* D'AVOIR ACCEPTE D'EXAMINER CE TRAVAIL.

MES REMERCIEMENTS VONT NATURELLEMENT AUSSI A MONSIEUR OMAR JBARA POUR LA DISPONIBILITE ET LA COMPETENCE CONSTANTE DONT IL A SU FAIRE PREUVE ET POUR SA CONSTANTE BIENVEILLANCE A REUNIR LES CONDITIONS LES PLUS FAVORABLES POSSIBLES.

JE TIENS AUSSI A REMERCIER :

MON AMI, M. *BELHAJ* POUR SON AIDE ET SES CONSEILS SUR L'ASPECT PRATIQUE DU SUJET.

*MONSIEUR J. CAZAUX*

*MONSIEUR J. AMBLARD*

*MONSIEUR D. MOUZE*

*MONSIEUR A. EL- HIDY*

*MONSIEUR P. BODART*

*MONSIEUR A. PERCHET*

*MONSIEUR J.M. PATAT*

*MES PARENTS,*

ET MES AMI(E)S THESARDS QUI M'ONT ACCOMPAGNE DURANT CES TROIS ANNEES : *KHALID MSELLAK, D. ZIANE, DANA SADER, NOUHA GHORBEL* .

*A TOUS MES AMI(E)S ET A TOUS QUI ME SONT CHERS.*

## Table des matières

<b>INTRODUCTION GENERALE.....</b>	<b>7</b>
<b>CHAPITRE.I : PHYSIQUE DES ISOLANTS SOUS IRRADIATION ELECTRONIQUE.....</b>	<b>9</b>
<b>I.1 Introduction.....</b>	<b>10</b>
<b>I.2 Interaction électron - matière.....</b>	<b>11</b>
<b>I.2.1 Volume d'interaction et signaux générés.....</b>	<b>11</b>
<b>I.2.2 Distribution énergétique des électrons émis.....</b>	<b>12</b>
<b>I.2.3 Emission électronique.....</b>	<b>13</b>
I.2.3.1 Electrons rétrodiffusés.....	13
I.2.3.2 Emission électronique secondaire.....	14
I.2.3.3 Rendement d'émission total.....	16
I.2.3.4 Influence de l'angle d'incidence.....	18
I.2.3.5 Comparaison de l'émission secondaire des métaux et des isolants.....	20
I.2.3.6 Approche conventionnelle et irradiation permanente.....	22
<b>I.2.4 Emission photonique.....</b>	<b>24</b>
I.2.4.1 Mécanisme de base.....	24
I.2.4.2 Mesure du potentiel de surface.....	25
<b>I.3 Interaction électron-isolant : piégeage et transport de charge.....</b>	<b>25</b>
<b>I.3.1 Cas des matériaux isolants parfaits.....</b>	<b>26</b>
<b>I.3.2 Cas des isolants réels.....</b>	<b>27</b>
I.3.2.1 Défauts et impuretés.....	27
I.3.2.2 Désordre et états localisés dans la bande de conduction.....	28
I.3.2.3 défauts et mobilité.....	29
I.3.2.4 Création de défauts sous irradiation électronique.....	31
<b>I.4 Principe des charges images et du courant d'Influence.....</b>	<b>32</b>
<b>I.4.1 Généralités.....</b>	<b>33</b>
I.4.1.1 Effet d'un champ électrique sur un conducteur.....	33
I.4.1.2 Influence totale, Influence partielle.....	33
<b>I.4.2 Principe des charges images.....</b>	<b>34</b>
<b>I.4.3 Mesure de la charge piégée à partir du courant d'influence et loi de conservation du courant.....</b>	<b>36</b>
I.4.3.1 Mesure de la charge piégée à partir du courant d'influence.....	36
I.4.3.2 Loi de conservation du courant.....	37
<b>Références Bibliographiques chapitre I.....</b>	<b>39</b>
<b>CHAPITRE.II : MISE AU POINT DE METHODES DE MESURE DE LA CHARGE PIEGEE.....</b>	<b>42</b>
<b>II.1 Introduction.....</b>	<b>43</b>
<b>II.2 Techniques et méthodes de mesure du potentiel de surface et/ou de la charge piégée.....</b>	<b>44</b>
<b>II.2.1 Conditions expérimentales.....</b>	<b>44</b>
II.2.1.1 Vide, champs électriques et sources d'électrons perturbateurs.....	44
II.2.1.2 Choix du mode d'injection électronique et pré-irradiation.....	45

II.2.1.3 Echantillons.....	46
<b>II.2.2 Mesure du potentiel de surface.....</b>	<b>47</b>
II.2.2.1 Spectroscopie d'émission X.....	47
II.2.2.2 Spectroscopie électronique.....	50
II.2.2.2.1 Principe.....	50
II.2.2.2.2 Choix du spectromètre.....	51
II.2.2.2.3 Description du spectromètre.....	51
II.2.2.2.4 Exemple de spectre acquis avec le SET.....	53
II.2.2.2.5 Limites de la méthode spectroscopie électronique.....	54
<b>II.2.3 Mesure de la charge piégée.....</b>	<b>54</b>
II.2.3.1 Méthode basée sur la déflexion du faisceau primaire.....	54
II.2.3.1.1 Principe.....	55
II.2.3.1.2 Calcul de trajectoires électroniques.....	56
II.2.3.1.3 Application : cas du Verre amorphe (ECH.1).....	58
II.2.3.1.4 Effet de la déflexion sur la densité surfacique des électrons injectés.....	59
II.2.3.1.5 Limite de la méthode de déflexion du faisceau primaire.....	60
II.2.3.2 Méthode basée sur la mesure du courant d'influence.....	61
II.2.3.2.1 Principe.....	61
II.2.3.2.2 Dispositif expérimental classique.....	61
II.2.3.2.2.1 Principe.....	61
II.2.3.2.2.2 Effets perturbateurs et conséquences.....	62
II.2.3.2.3 Nouveau dispositif expérimental.....	63
II.2.3.2.3.1 Description.....	63
II.2.3.2.3.2 Tests préliminaires.....	65
II.2.3.2.3.3 Optimisation du dispositif.....	65
II.2.3.2.3.4 Limite de la méthode sensibilité, dynamique et incertitudes.....	68
<b>II.3 Facteur d'influence électrostatique.....</b>	<b>71</b>
<b>II.3.1 Etalonnage.....</b>	<b>71</b>
<b>II.3.2 Approche expérimentale.....</b>	<b>71</b>
II.3.2.1 Déflexion du faisceau primaire.....	71
II.3.2.2 Spectroscopie électronique.....	71
II.3.2.3 Mesure simultanée des courants d'influence et de fuite.....	72
II.3.3 Discussion du facteur K.....	72
<b>II.4 Conclusion.....</b>	<b>75</b>
<b>Références Bibliographiques chapitre II.....</b>	<b>76</b>

**CHAPITRE.III : APPLICATIONS : ETUDE DU COMPORTEMENT DES ISOLANTS SOUS IRRADIATION ELECTRONIQUE ET DETERMINATION DE LA DEUXIEME ENERGIE CRITIQUE..... 78**

<b>III.1 Introduction.....</b>	<b>79</b>
<b>III.2 Mesure des courants d'influence et de fuite.....</b>	<b>80</b>
<b>III.2.1 Conditions expérimentales.....</b>	<b>80</b>
<b>III.2.2 Allure typique.....</b>	<b>80</b>
III.2.2.1 Etape d'irradiation.....	81
III.2.2.2 Etape après l'arrêt d'irradiation.....	81
<b>III.3 Détermination de la charge piégée.....</b>	<b>81</b>
<b>III.3.1 Facteur d'influence électrostatique.....</b>	<b>83</b>
<b>III.3.2 Cinétique et correction de l'effet de la déflexion.....</b>	<b>84</b>

<b>III.4 Résultats et discussion.....</b>	<b>86</b>
<b>III.4.1 Période de charge et section efficace effective.....</b>	<b>88</b>
<b>III.4.2 Période de décharge.....</b>	<b>92</b>
<b>III.5 Potentiel de surface.....</b>	<b>94</b>
<b>III.6 Rendement d'émission électronique total.....</b>	<b>95</b>
<b>III.7 Détermination de l'énergie critique <math>E_{CH}</math>.....</b>	<b>97</b>
<b>III.7.1 Procédure.....</b>	<b>97</b>
III.7.1.1 Position du problème.....	97
III.7.1.2 Formalisme proposé tenant compte du courant de fuite.....	100
<b>III.7.2 Influence de la contamination.....</b>	<b>102</b>
<b>III.7.3 Résultats expérimentaux.....</b>	<b>103</b>
III.7.3.1 Détermination de $E_{CH}$ à l'aide du potentiel de surface.....	103
III.7.3.2 Détermination de $E_{CH}$ à l'aide du courant de fuite ou de la charge piégée.....	108
<b>III.8 Conclusion.....</b>	<b>111</b>
<b>Références Bibliographiques chapitre III.....</b>	<b>112</b>

**CHAPITRE.IV : ETUDE DES ISOLANTS RECOUVERTS SOUS IRRADIATION ELECTRONIQUE ..... 114**

<b>IV.1 Introduction.....</b>	<b>115</b>
<b>IV.2 Loi générale de conservation du courant.....</b>	<b>116</b>
<b>IV.3 Modèle de champ électrique induit et expression du facteur K.....</b>	<b>117</b>
<b>IV.4 Etude expérimentale.....</b>	<b>120</b>
<b>IV.4.1 Dispositif expérimental.....</b>	<b>120</b>
<b>IV.4.2 Résultats expérimentaux et discussion.....</b>	<b>121</b>
<b>IV.4.2.1 Cas du verre.....</b>	<b>121</b>
IV.4.2.1.1 Courant d'influence.....	121
IV.4.2.1.2 Cinétique de charge.....	122
IV.4.2.1.3 Discussion.....	125
<b>IV.4.2.2 Cas PMMA.....</b>	<b>127</b>
IV.4.2.2.1 Courant d'influence.....	127
IV.4.2.2.2 Cinétique de charge.....	128
IV.4.2.3 Constantes de temps des phénomènes de charge et de décharge.....	130
<b>I.5 Conclusion.....</b>	<b>133</b>
<b>Références Bibliographiques chapitre IV.....</b>	<b>134</b>

**CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES..... 135**

**ANNEXE..... 137**  
**PUBLICATIONS.....**

**Article 1: A new experimental approach for characterizing the internal trapped charge and electric field build up in ground-coated insulators during their e-irradiation.**

**Article 2: Dynamic Investigation of electron trapping and charge decay in electron-irradiated  $Al_2O_3$  in a scanning electron microscope: Methodology and mechanisms**

**Article 3: An experimental approach for dynamic investigation of the trapping properties of glass-ceramic under electron beam irradiation from a scanning electron microscope.**

**Article 4: A new method for charge trapping measurement during electron beam irradiation: application to glass containing alkali ions and single-crystalline quartz.**

**Article 5: Charge Implantation Measurement on Electron - Irradiated Insulating Materials by Means of a SEM Technique.**

## **INTRODUCTION GENERALE**

## INTRODUCTION GENERALE

L'utilisation sans cesse croissante de nouveaux matériaux diélectriques dans les domaines notamment de l'isolation électrique de forte puissance ou de l'électronique a suscité ces dernières années un grand intérêt à la caractérisation aussi bien microscopique que macroscopique de ces matériaux. L'importance de cette caractérisation a conduit alors la communauté scientifique à faire preuve d'une grande imagination et d'innovation pour proposer toute une panoplie de techniques à la mesure du problème à résoudre. Le choix de la technique adéquate est souvent conditionné par le fait que le matériau doit être placé dans des conditions proches de celles de son régime de fonctionnement de manière à déterminer le domaine d'utilisation dans lequel on minimise le risque de comportement catastrophique. Bien que la gamme des techniques disponibles soit riche et que les résultats des études qui en découlent soient nombreux, les utilisateurs de matériaux diélectriques sont toujours confrontés à des comportements non prévus lorsque ces matériaux sont soumis à des contraintes de natures différentes.

Dans le cas d'une irradiation électronique, les isolants sont le siège de phénomènes très complexes appelés « effets de charge » qui résultent de la localisation de charges et d'énergie à l'interface vide-isolant. Pour l'observation des isolants en microscopie électronique ces effets constituent plutôt une gêne qui se manifeste par l'instabilité de l'image électronique. En revanche cet aspect négatif peut constituer un outil pour optimiser d'une part l'élaboration des matériaux isolants et leurs procédés de fabrication et d'autre part de sélectionner les matériaux destinés aux applications industrielles, électriques ou mécaniques. Ainsi ce travail de thèse qui se situe dans ce contexte consiste à étudier le comportement électrique des isolants face à une irradiation électronique dans un MEB (Microscope Electronique à Balayage) et d'essayer de comprendre les phénomènes physiques sous-jacents.

Dans le premier chapitre, quelques aspects fondamentaux de l'interaction d'un faisceau électronique avec la matière en général et quelques notions de base sur l'interaction électron-isolant en particulier seront rappelés. Le rôle des défauts et des impuretés (intrinsèques ou créés par irradiation) présents dans les matériaux isolants réels, dans la localisation et dans le transport des électrons injectés dans ces matériaux sera souligné. Nous décrirons également le phénomène d'influence électrostatique (totale et partielle) ainsi que le principe des charges images qui sont à la base de l'une des techniques destinées à la mesure de la charge piégée que nous avons mis au point au cours de cette étude.

Le chapitre II est consacré à la description des différentes méthodes que nous avons mises au point ou utilisées pour déterminer la quantité de charges piégées dans l'isolant (ou le potentiel de surface résultant) et son évolution au cours du temps (pendant et après l'irradiation). Une attention particulière sera accordée à la méthode d'influence et à l'optimisation du nouveau dispositif expérimental correspondant en précisant un certain nombre de problèmes expérimentaux inhérents à l'irradiation électronique d'isolants dans un MEB notamment l'importance de la présence d'une source électronique parasite irradiant l'échantillon en même temps que le faisceau électronique primaire. Aussi dans ce chapitre, nous présenterons les différentes approches aussi bien théoriques qu'expérimentales qui permettent de déterminer le facteur d'influence électrostatique qui intervient dans la relation entre la charge piégée et la charge image.

La première partie du troisième chapitre présentera les résultats expérimentaux obtenus à l'aide des méthodes décrites dans le chapitre II. L'analyse de ces résultats permettra de mieux comprendre les mécanismes de régulation de la charge et de préciser le poids du courant de fuite dans ces mécanismes. La cinétique des phénomènes de charge et de décharge sera étudiée en fonction de l'énergie primaire et leurs constantes de temps seront déterminées.

La divergence systématique entre les résultats expérimentaux et l'approche dite « approche conventionnelle » basée sur la courbe du rendement électronique total a été soulignée. Le rendement d'émission électronique total déduit des mesures simultanées des courants d'influence et de fuite confirme cette divergence.

La seconde partie de ce chapitre sera consacrée à la détermination de l'énergie critique  $E_{CII}$  dans le cas d'une irradiation permanente à l'aide d'une procédure basée sur l'approche conventionnelle du rendement d'émission électronique total qui tient compte de l'effet du courant de fuite.

Le quatrième chapitre concernera les isolants recouverts d'un film métallique mis à la masse. Pour pouvoir étudier les mécanismes de charge et de décharge, la méthode du courant d'influence a été mise en œuvre moyennant une légère modification du dispositif expérimental utilisé dans le cas des isolants nus. D'un point de vue théorique, nous nous appuyons sur le fait que pendant l'irradiation les charges piégées se redistribuent pour donner un champ électrique interne maximal à l'interface métal/isolant et qui s'annule à une profondeur très proche de la profondeur de pénétration des électrons primaires.

Ainsi, pour ces isolants recouverts, nous mettons en évidence l'existence de ce champ en déterminant sa valeur et en discutant ses effets sur la modification des paramètres gouvernant les interactions électron-matière.

## **CHAPITRE I**

# **PHYSIQUE DES ISOLANTS SOUS IRRADIATION ELECTRONIQUE**

"Les sciences ont deux extrémités qui se touchent. La première est l'ignorance où se trouvent les hommes en naissant. La deuxième est celle qu'atteignent les grandes âmes. Elles ont parcouru ce que les hommes peuvent savoir, trouvent qu'ils savent tout, se rencontrent dans cette ignorance d'où ils étaient partis. C'est une ignorance savante qui se connaît. Ceux d'entre eux qui, étant sortis de la première ignorance, n'ont pu arriver à l'autre, ont quelques teintures de cette science suffisante, font les étendus. "

ISIDORE DUCASSE.

« Ne soyer jamais esclave de l'idée originale »

HOWARD P. LOVECRAFT

## I.1 Introduction

Bien que les travaux portant sur l'irradiation électronique des isolants au sein d'un microscope électronique à balayage (MEB) soient relativement abondants, nombreuses sont les interrogations à élucider sur le comportement de ces matériaux vis à vis de l'irradiation car les mécanismes de base des phénomènes physiques élémentaires qui prennent naissance sous bombardement électronique sont très complexes. La conséquence de ces phénomènes est la charge du matériau isolant qui implique plusieurs paramètres notamment l'échantillon et sa géométrie, le vide du microscope ainsi que les caractéristiques du faisceau électronique incident. Ainsi pour comprendre les phénomènes de charge résultant du bombardement électronique d'un matériau isolant nous passerons en revue dans ce chapitre les éléments de base associés à l'interaction électron- matière en général et électron-isolant en particulier.

Les différents processus physiques accompagnant l'injection d'une charge dans un isolant et le comportement de ce dernier suite à cette injection seront décrits. Les propriétés des isolants d'une manière globale telles que le rôle du désordre dans la localisation de la charge, l'influence des défauts aussi bien intrinsèques qu'induits par l'irradiation électronique et les processus de transport de charge seront également présentés. L'influence des phénomènes de charge sur les signaux émis notamment l'émission électronique et l'émission des rayons X sera ensuite abordée.

Enfin pour pouvoir comprendre la méthode d'influence mise en œuvre pour mesurer la charge piégée au cours de l'irradiation de l'isolant (Chapitre. II) nous évoquerons le principe des charges images et du courant d'influence résultant.

## I.2 Interaction électron - matière

### I.2.1 Volume d'interaction et signaux générés

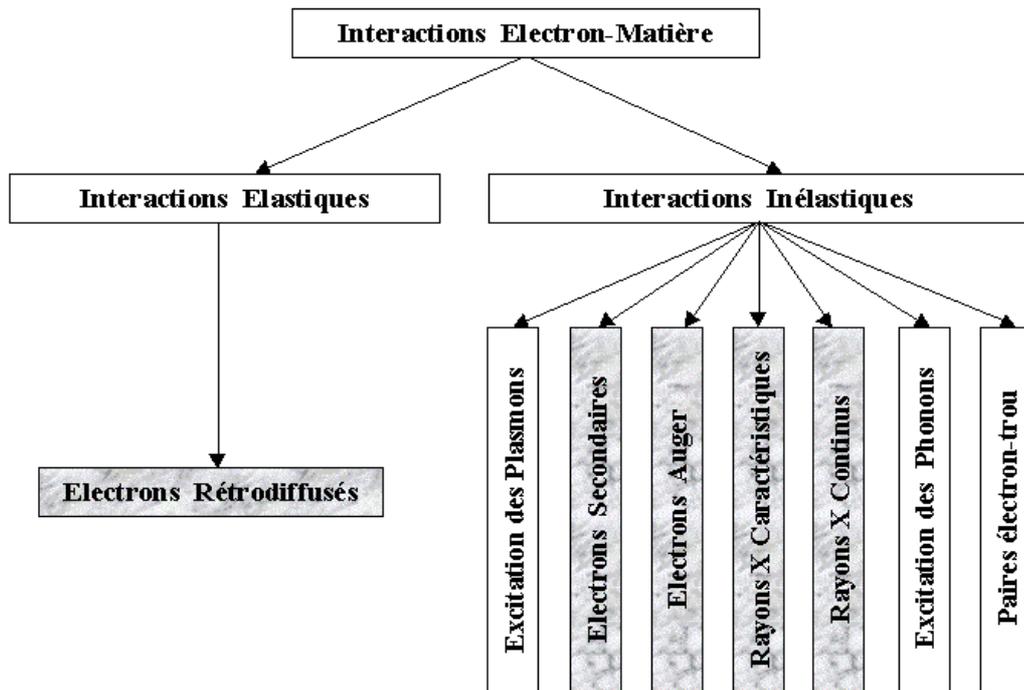
La réponse d'un matériau à l'excitation d'un faisceau d'électrons se traduit généralement par une émission secondaire d'électrons ou de photons X qui dépend principalement de l'énergie des électrons incidents et de la composition chimique de ce matériau.

Lors du cheminement d'un électron incident dans le matériau, on distingue habituellement deux types d'interactions concomitantes, les interactions élastiques et les interactions inélastiques [1]. L'interaction est élastique lorsqu'un électron pénétrant dans la zone d'influence du potentiel qui règne autour d'un cœur ionique est dévié sans perte d'énergie appréciable. Si l'énergie de l'électron varie d'une manière significative, par exemple en transmettant une partie de son énergie à un électron d'une couche atomique, l'interaction est dite inélastique. Au gré de ces deux types d'interactions (voir Figure.I.1) les électrons incidents empruntent des parcours aléatoires dans la matière jusqu'à la perte totale de leur énergie cinétique. Le lieu de l'ensemble de ces interactions est appelé : volume d'interaction ou "poire" d'interaction. Les dimensions latérales  $z_m$  (profondeur de pénétration maximale, de quelques nm à quelques  $\mu\text{m}$ ) de ce volume dépendent principalement de l'énergie incidente et des propriétés physico-chimiques de la cible (numéro atomique de la cible notamment). La littérature relate plusieurs définitions de cette profondeur, dans ce travail nous utilisons l'expression proposée par Kanaya-Okayama déduite de simulations de Monte-Carlo [2] et qui reste valable dans les conditions d'utilisation d'un MEB [3] :

$$z_m (\mu\text{m}) = \frac{0.0276 A E_0^{1.67}}{Z^{0.89} \rho} \quad (\text{E.I.1})$$

où A est la masse atomique moyenne de la cible,  $\rho$  sa densité en  $\text{g/cm}^3$ , Z son numéro atomique moyen et  $E_0$  l'énergie des électrons primaires exprimée en keV.

Dans le volume d'interaction, des émissions multiples et de natures physiques différentes sont générées (voir Figure.I.1). Il s'agit principalement de l'émission électronique, de l'émission photonique, de la cathodoluminescence, des plasmons (liés aux oscillations collectives des électrons de valence), des phonons (associés à l'agitation thermique d'une structure périodique) ainsi que de la création de paires électron-trou. Dans le cadre de notre étude seules l'émission électronique secondaire et l'émission photonique seront décrites dans ce chapitre.



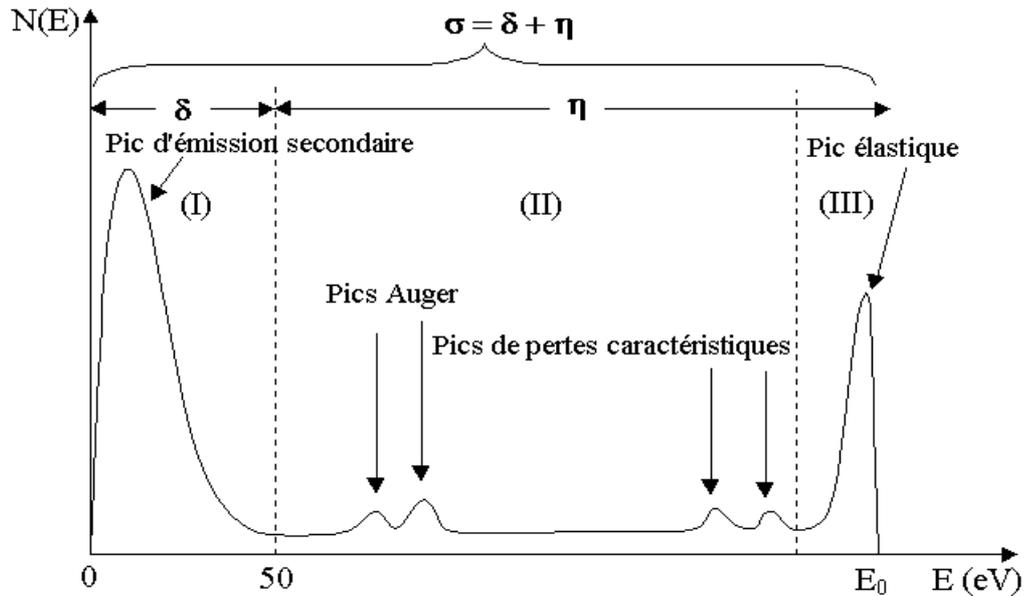
*Fig.I.1 : Organigramme des différentes interactions possibles et des signaux émis lors de la pénétration d'un électron primaire dans la matière.*

## I.2.2 Distribution énergétique des électrons émis

La distribution énergétique des électrons émis,  $N(E)$ , par une cible soumise à l'irradiation par un faisceau d'électrons incidents d'énergie  $E_0$  est illustrée schématiquement sur la Figure.I.2.

On distingue habituellement trois parties dans cette distribution :

- (I) Le domaine des électrons secondaires qui se présente sous la forme d'un pic dont la position du maximum se situe vers 2 eV et dont la largeur à mi-hauteur est généralement inférieure à 10 eV. La limite supérieure de ce domaine est conventionnellement fixée à 50 eV.
- (II) Un fond continu attribuable aux multiples interactions élastiques et inélastiques subies par les électrons au sein du matériau (gamme d'énergie compris entre 50 eV et le début du pic centré autour de l'énergie primaire  $E_0$ ). Dans cette zone apparaissent également des pics de faible amplitude correspondant à des pertes caractéristiques. On distingue les pics Auger vers les basses énergies [4] et près du pic élastique, des pics caractéristiques qui résultent des excitations des plasmons de volume ou de surface.



**Fig.1.2 :** Distribution énergétique schématique,  $N(E)$ , des électrons émis par une cible irradiée par un faisceau d'électrons primaires d'énergie  $E_0$ .

- (III) Le pic élastique, centré autour de l'énergie primaire  $E_0$ , est celui des électrons primaires réfléchis élastiquement ou ayant subis de très faibles pertes d'énergie (fraction d'électron-volt) par suite de collisions électrons-phonons.

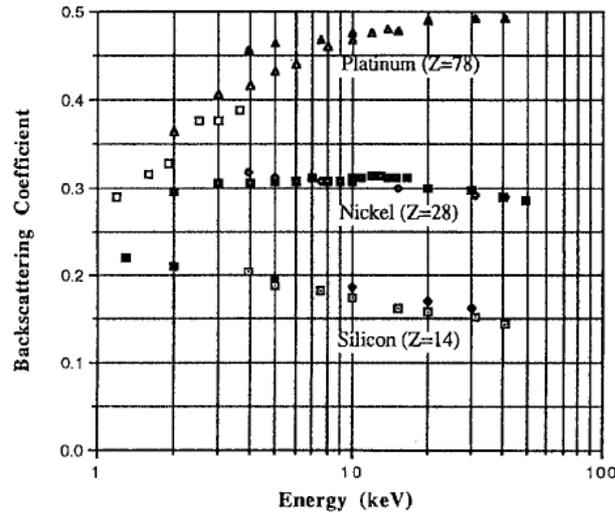
## I.2.3 Emission électronique

### I.2.3.1 Electrons rétrodiffusés

Ce sont les électrons issus du faisceau primaire et qui sont ressortis du matériau irradié après avoir ou non cédé une part plus ou moins importante de leur énergie. Ces électrons proviennent d'une profondeur moyenne estimée à  $z_m/2$  par Niedrig *et al.* [5] et leur distribution spectrale à la sortie de la cible s'étend de 50 eV à l'énergie des électrons primaires. On caractérise souvent les électrons rétrodiffusés par ce qu'on appelle le coefficient de rétrodiffusion  $\eta$  défini par le rapport du nombre d'électrons rétrodiffusés émis par unité de temps,  $I_\eta$ , à l'intensité du courant primaire  $I_0$ .

La littérature concernant la rétrodiffusion étant importante [5-7] nous nous contenterons d'un bref rappel de quelques grandeurs caractéristiques de cette émission qui nous seront utiles pour la compréhension de certains points dans les chapitres à venir.

La Figure.1.3, extraite des travaux de Joy [8], représente des courbes donnant la variation du coefficient de rétrodiffusion, obtenu par simulations de Monte-Carlo, en fonction de l'énergie des électrons primaires pour trois cibles composées respectivement d'un élément léger (silicium), d'un élément intermédiaire (nickel) et d'un élément lourd (platine).



**Fig.I.3 :** Variation du coefficient de rétrodiffusion en fonction de l'énergie primaire pour trois éléments simples : Si, Ni et Pt. [8].

L'examen de l'ensemble de ces courbes révèle deux intervalles d'énergies remarquables:

- Pour une énergie primaire comprise entre 10 – 30 kV, le coefficient de rétrodiffusion est pratiquement indépendant de l'énergie primaire.
- A basses énergies, ce coefficient augmente avec la diminution de l'énergie pour les cibles composées d'éléments légers et diminue pour les cibles composées d'éléments lourds.

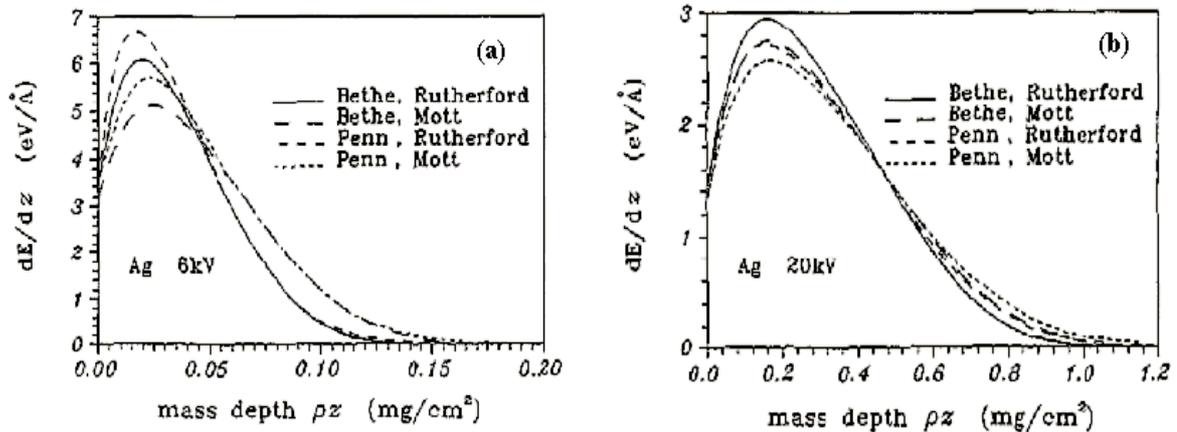
### 1.2.3.2 Emission électronique secondaire

Le phénomène d'émission électronique secondaire (EES) est à la base du fonctionnement des MEB et des multiplicateurs d'électrons, il a suscité de ce fait autant d'intérêt sur le plan expérimental que sur le plan théorique. L'EES a fait l'objet de nombreux travaux aussi bien théoriques qu'expérimentaux concernant les mécanismes et les processus élémentaires intervenant dans cette émission, à l'heure actuelle l'interprétation la plus complète et la plus satisfaisante des propriétés émissives des cibles métalliques peut être trouvée dans les articles de Dionne [9], Shih [10], Schwarz [11] et Cazaux [12]. La littérature concernant l'émission secondaire des matériaux isolants sous bombardement électronique quant à eux est peu abondante car à cause des effets de charge non seulement les théories établies pour les matériaux conducteurs ne sont pas toujours valables dans le cadre des isolants mais également les études expérimentales ne sont pas toujours faciles à conduire. Cependant, il faut mentionner les travaux récents de Cazaux portant sur une approche analytique du transport et du rendement des électrons secondaires [13].

Le phénomène d'émission secondaire se déroule selon trois processus différents :

### Génération

L'électron incident excite (en perdant une partie de son énergie) un électron de la cible. Généralement les électrons excités sont ceux des couches externes des atomes de la cible qui sont faiblement liés. La génération d'électrons secondaires se fait le long du parcours des électrons primaires dans le volume d'interaction. La distribution en profondeur du taux de production,  $n(z)$  d'électrons secondaires est proportionnelle à celle des pertes d'énergie,  $dE/dz$ .



**Fig.1.4 :** Distribution des pertes d'énergie en profondeur pour un échantillon d'argent irradié à 6 keV (a) et à 20 keV (b).

Les Figures (4a et 4b) déduites de simulations de Monte-Carlo donnent l'allure de la fonction de perte ( $dE/dz$ ) pour un échantillon d'Ag irradié par deux tensions d'accélération différentes [14].

La production des électrons secondaires se déroule d'une manière isotrope dans le volume d'interaction.

### Transport vers la surface

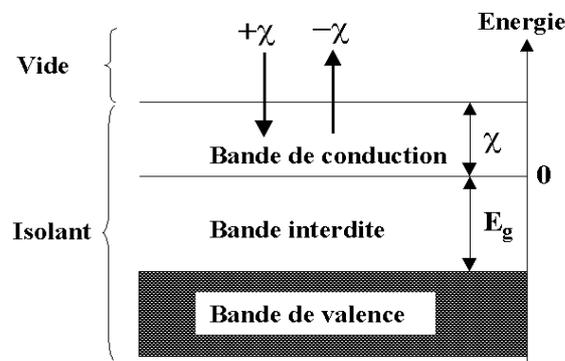
L'étape qui suit la génération des électrons secondaires est leur transport vers l'interface cible/vide. L'émission étant isotrope, seule une fraction (en première approximation, la moitié) des électrons générés migrent dans la direction de cette interface. En outre à cause des interactions avec les électrons de la bande de conduction et avec les phonons, seuls les électrons créés entre la surface et une certaine profondeur  $z_e$  appelé profondeur d'échappement parviennent à l'interface cible/vide. Selon les travaux de Seiler [15] la profondeur maximum d'échappement des électrons secondaires est d'environ  $5\lambda$  (où  $\lambda$  est le libre parcours moyen des électrons). Notons que le transport des électrons secondaires vers l'interface cible/vide est plus facile dans un isolant que dans un métal (de l'ordre de 10 nm dans les métaux et de 100 nm dans les isolants) car  $\lambda \approx 0.5-1.5$  nm dans les

métaux alors que dans les isolants  $\lambda \approx 10\text{-}20$  nm [4] : dans les isolants les électrons secondaires internes interagissent uniquement avec les phonons.

Franchissement de la surface

Pour franchir l'interface cible/vide, les électrons secondaires qui ont pu atteindre cette interface doivent avoir au moins une énergie correspondant au travail de sortie dans le cas d'une cible métallique ou à l'affinité électronique (énergie minimale à fournir à un électron situé au bas de la bande de conduction pour l'éjecter dans le vide) dans le cas d'une cible isolante ou semi-conductrice (voir Figure.I.5). A titre d'exemple, les affinités électroniques de l'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) et de la silice ( $\text{SiO}_2$ ) toutes deux monocristallines sont proches de  $\chi = 1$  eV [16]. Les électrons du faisceau primaire, ou les électrons secondaires rappelés à la surface par un potentiel de surface positif, auront à franchir la surface, mais en sens inverse. Dans ce cas, ils gagneront l'énergie  $\chi$  (voir Fig. I.5).

Finalement, les électrons secondaires émis sont peu énergétiques (intervalle entre 0 et 50 eV, (limite conventionnelle) et proviennent de régions voisines de la surface (de l'ordre de quelques nm). Leur taux d'émission électronique secondaire ou rendement d'électrons secondaires,  $\delta$  est défini comme étant le rapport du nombre d'électrons secondaires émis par seconde au courant primaire. Le rendement  $\delta$  qui est un des points remarquables de notre étude sera amplement examiné aussi bien dans le cadre de l'approche conventionnelle que dans le cadre de l'approche critique proposée par Cazaux [17].



**Fig.I.5 :** Schéma simplifié de la structure de bande de l'interface vide-isolant. Un électron sortant du matériau perd l'énergie  $\chi$  (valeur de l'affinité électronique); un électron entrant gagne cette énergie.

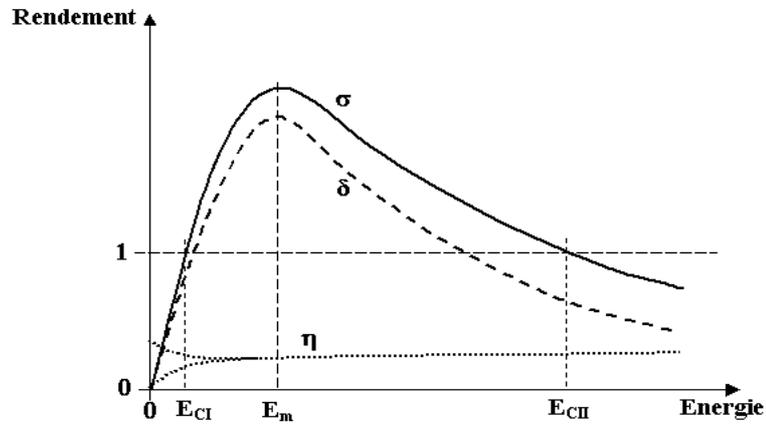
**I.2.3.3 Rendement d'émission total**

Le rendement d'émission électronique total  $\sigma$  est défini par la relation suivante :

$$\sigma = \delta + \eta \tag{E.I.2}$$

avec  $\delta$  rendement d'émission secondaire et  $\eta$  coefficient de rétrodiffusion.

La Figure.I.6 représente schématiquement l'allure caractéristique de ce rendement ainsi que ses deux composantes  $\delta$  et  $\eta$  en fonction de l'énergie  $E_0$  du faisceau primaire.



**Fig.I.6 :** Tracé schématique des rendements d'émission électronique secondaire, rétrodiffusé et total en fonction de l'énergie des électrons primaires.

Cette allure est la même pour tous les matériaux. Le coefficient de rétrodiffusion  $\eta$  étant pratiquement constant et sa variation à basse énergie très faible (par rapport à  $\delta$ ), l'allure de  $\sigma$  est par conséquent dictée par la variation du rendement  $\delta$  comme l'illustre la Figure I.6.

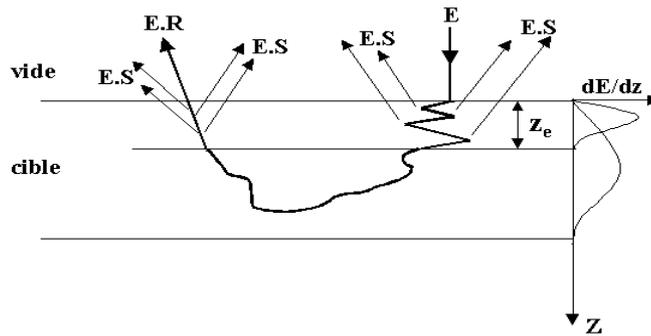
Pour expliquer la variation du rendement d'émission électronique total  $\sigma$  en fonction de l'énergie primaire  $E_0$ , on considère deux intervalles d'énergie :

- Intervalle  $0 - E_m$  (énergie correspondant au maximum du rendement  $\delta$ ) :

L'augmentation de l'énergie primaire dans cet intervalle s'accompagne d'une augmentation de l'émission électronique secondaire car la profondeur de pénétration des électrons primaires ne dépasse pas la profondeur d'échappement des électrons secondaires  $z_e$  : tous les électrons secondaires générés qui se dirigent vers la surface sont susceptibles d'être émis dans le vide.

- Intervalle  $E_0 > E_m$  :

Dans ce domaine l'augmentation de l'énergie primaire se traduit par une décroissance du rendement d'émission électronique secondaire bien que le nombre d'électrons secondaires total généré augmente dans le volume d'interaction. En effet, la profondeur de pénétration des électrons primaires  $Z$  est supérieure à  $Z_e$ , la fonction perte d'énergie s'étale (voir Fig.I.4 [14]) et devient moins importante entre la surface de l'échantillon et  $Z_e$  ; le nombre d'électrons secondaires générés et susceptibles d'être émis dans le vide diminue (voir Fig.I.7).



**Fig.I.7 :** Illustration de la variation de la fonction de perte d'énergie pour différentes profondeurs de pénétration des électrons primaires.

Deux valeurs de l'énergie primaire  $E_{CI}$  et  $E_{CII}$  sont remarquables (voir Fig.I.6), elles correspondent aux deux points d'intersection de la droite  $\sigma = 1$  avec la courbe du rendement d'émission total  $\sigma(E_0)$ .

#### 1.2.3.4 Influence de l'angle d'incidence

L'influence de l'angle d'incidence sur le rendement d'émission secondaire est illustré sur la Figure.I.8 (a). Les fonctions perte d'énergie correspondant aux incidences normale et oblique sont également représentées de façon schématique sur la même figure. Quand l'angle d'incidence,  $\alpha$ , des électrons primaires s'écarte de la normale, on constate une compression vers la surface de la fonction perte d'énergie. Cette compression entraîne une augmentation du nombre d'électrons secondaires générés entre la surface de l'échantillon et la profondeur d'échappement  $Z_e$ . La Figure.I.8 (b) donnant le rendement d'émission normalisé en fonction de l'angle d'incidence illustre cette augmentation [18]. On constate que le rendement  $\delta(\alpha)$  est multiplié par deux lorsque l'angle d'incidence passe de  $0^\circ$  à  $60^\circ$  pour des énergies primaires supérieures à 5 keV. La variation de  $\delta$  est à relier à la distance susceptible d'être parcourue par un électron secondaire  $L(\alpha)$  (voir Figure.I.8 (c)):

$$L(\alpha) = R \cos \alpha \quad (\text{E.I.3})$$

où  $R$  est le parcours de l'électron primaire.

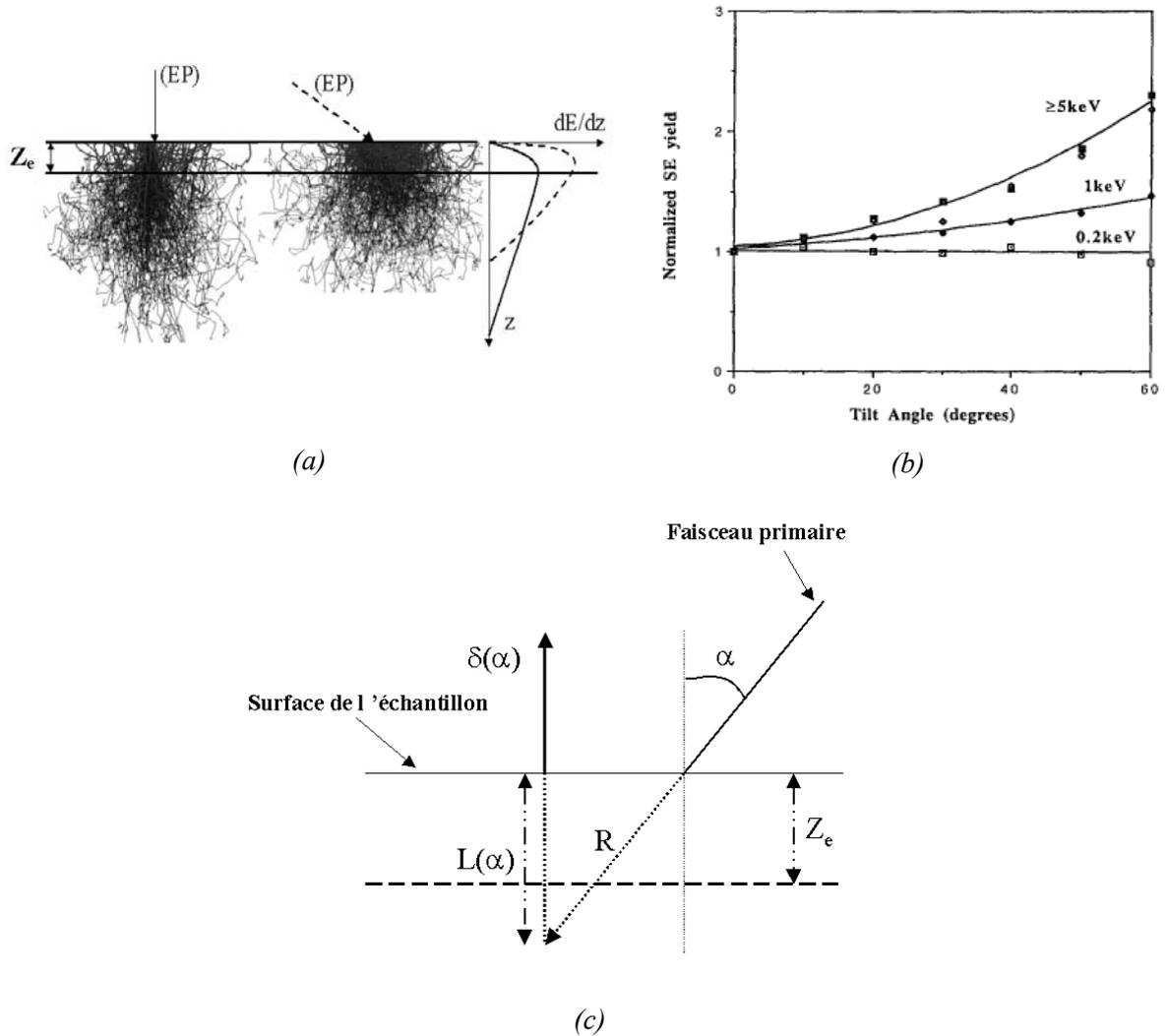
Le nombre d'électrons ayant une énergie suffisante pour atteindre et franchir la surface va donc augmenter car une augmentation de l'angle  $\alpha$  provoque une diminution de la profondeur  $L(\alpha)$ . Ainsi la loi de variation de  $\delta(\alpha)$  avec l'angle  $\alpha$  est donnée par [19]:

$$\delta(\alpha) = \delta(0) (\cos \alpha)^{-n} \quad (\text{E.I.4})$$

où  $n$  dépend du numéro atomique moyen  $Z$  du matériau [4].

Dans le contexte de ce travail deux points importants sont à souligner :

- La forte dépendance de l'émission électronique secondaire à l'angle d'incidence est utilisée en microscopie électronique à balayage comme moyen d'étude de la topographie de la surface balayée.
- Aux faibles énergies primaires ( $< 0.2$  keV), la profondeur de pénétration des électrons primaires est inférieure à la profondeur d'échappement des électrons secondaires, l'angle d'incidence n'a alors pratiquement aucun effet sur l'émission électronique secondaire.



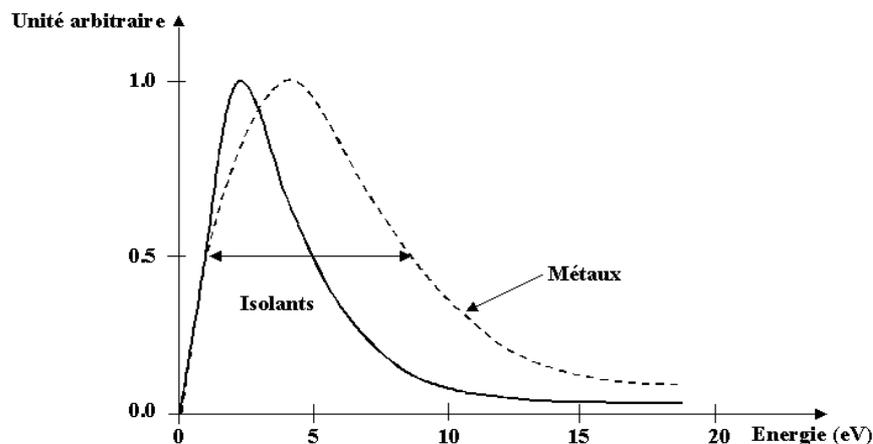
**Fig.1.8 :** (a) :Simulation de Monte-Carlo du volume d'interaction et représentation de l'influence de l'angle d'incidence sur la fonction perte d'énergie (génération des électrons secondaires), l'incidence oblique est en pointillé et l'incidence normale est en trait plein. (b) :Variation du rendement d'émission secondaire normalisé  $\delta(\alpha)/\delta(0)$  en fonction de l'angle d'incidence  $\alpha$  (d'après [18]). (c): Dépendance de la distance susceptible d'être parcourue par un électron secondaire  $L(\alpha)$ .

### I.2.3.5 Comparaison de l'émission secondaire des métaux et des isolants

Hormis les conditions d'excitation, l'émission secondaire est non seulement sensible à la nature physico-chimique de l'échantillon étudié mais également à ses propriétés physiques. Dans le cadre de cette étude la comparaison de l'émission secondaire des métaux et des isolants sous bombardement électronique s'avère nécessaire. Cette comparaison, dans un premier stade, ne tiendra pas compte des phénomènes de charge dans les isolants.

La distribution énergétique des électrons secondaires diffère pour ces deux types de matériaux (Figure.I.9). Le pic d'émission des métaux admet une largeur à mi-hauteur toujours plus grande que celle des isolants. Elle est de l'ordre de 10 eV pour les métaux et de l'ordre de 5 eV pour les matériaux isolants [20].

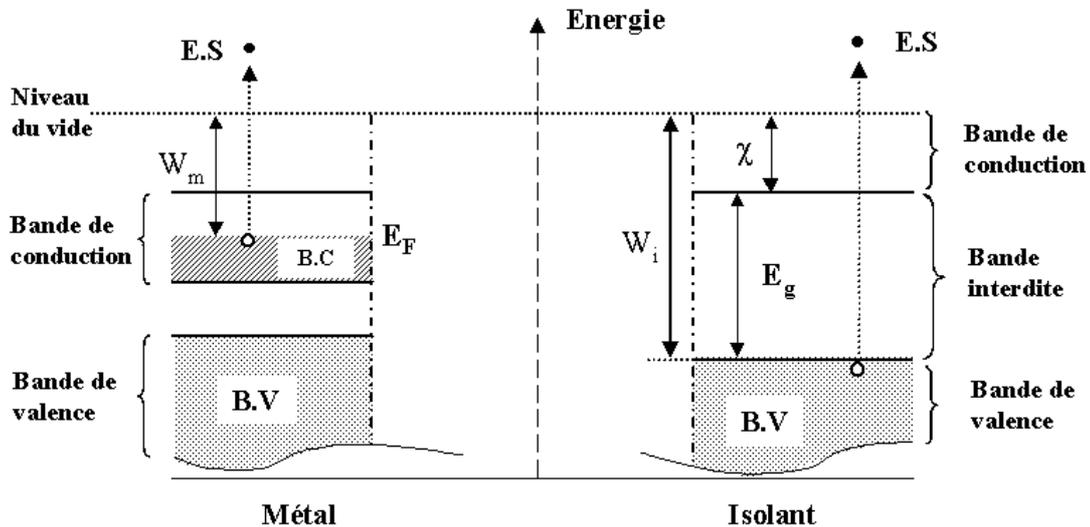
L'émission secondaire maximale des métaux est généralement comprise entre 1 et 2. Celle des isolants peut elle être supérieure d'un à deux ordres de grandeur [21] même si celle des polymères se limite souvent à l'intervalle  $3 < \delta_m < 7$  [22],  $\delta_m \approx 22$  pour MgO monocristallin [20] et peut atteindre des valeurs extrêmement élevées comme celles observées récemment pour un échantillon de diamant ( $\delta_m \approx 84$ ) [23] à une énergie de 3 keV.



**Fig.I.9 :** Rendement d'émission électronique secondaire des matériaux isolants et métalliques.

La différence de comportement observée sur les deux classes de matériaux vis-à-vis de l'émission secondaire peut être discutée de manière qualitative à partir de l'étude de la génération des électrons secondaires et de leur transport jusqu'à leur sortie à la surface de l'échantillon. La Figure.I.10 montre les structures électroniques simplifiées des deux types de matériaux. Pour les métaux, la bande la plus élevée (bande de conduction) est partiellement remplie et les électrons libres participent à la conduction électrique du matériau. Pour qu'un électron libre soit émis dans le vide, il doit posséder une énergie au minimum égale à la

barrière de surface  $W_m$  égale au travail de sortie  $\phi$  ( de l'ordre de 4 à 5 eV). Dans le cas des isolants, l'analogue du travail de sortie est l'affinité électronique  $\chi$  ( de l'ordre de 1 eV ). L'énergie minimale nécessaire à l'émission d'un électron dans le vide  $W_i$  admet dans ce dernier cas un terme supplémentaire :  $W_i = \chi + E_g$  où  $E_g$  est la largeur de la bande interdite du matériau (de quelques eV à 10 eV).



*Fig.I.10 : Structures électroniques schématisées d'un métal et d'un isolant.*

L'énergie minimale nécessaire à l'émission d'un électron secondaire est donc environ deux fois plus élevée pour les matériaux isolants ( $W_i$ ) que pour les métaux ( $W_m$ ). La barrière énergétique étant plus basse pour ces derniers, ceci devrait favoriser un rendement d'émission secondaire plus élevé pour une même source de secondaires. Les rendements mesurés montrent le contraire, cette hypothèse apparaît donc incomplète.

Dans les matériaux isolants et métalliques « analogues », c'est-à-dire composés d'atomes de numéros atomiques proches ou ayant des énergies moyennes d'ionisation du même ordre de grandeur, les sources de secondaires sont probablement similaires et le nombre moyen d'électrons secondaires créés par un électron d'énergie donnée devrait être du même ordre. Schou [24] estime par ailleurs que les fortes énergies de liaison des électrons atomiques dans les isolants sont responsables d'une source d'électrons secondaires beaucoup plus faible que pour les métaux. On ne peut donc pas retenir l'hypothèse d'une source de secondaires plus importante dans les isolants, qui permettrait d'expliquer leur fort rendement d'émission électronique.

Plusieurs considérations théoriques [23,25,26] attribuent donc les résultats expérimentaux observés au manque d'interaction électron-électron durant le transport des électrons secondaires générés dans les isolants tout en combinant leur affinité très basse ou également négative. Ce manque provoque une augmentation des libres parcours moyens

dans les isolants (non chargés) et la faible affinité permet souvent aux électrons secondaires générés de s'échapper dans le vide [23].

Les interactions des électrons secondaires avec les phonons ou avec les défauts cristallins expliquent de la même manière la diminution de  $\delta$  (ou  $\sigma$ ) quand la température augmente ou quand un échantillon polycristallin (plutôt qu'un échantillon monocristallin) est irradié [27].

### **1.2.3.6 Approche conventionnelle et irradiation permanente**

L'approche conventionnelle est souvent utilisée pour prévoir le signe de la charge et l'ordre de grandeur du potentiel de surface des matériaux isolants soumis à une irradiation électronique permanente. Cette approche est fondée sur des arguments tirés de la courbe d'émission électronique totale obtenue généralement par la technique dite « par impulsion » [28] ( technique qui permet de s'affranchir pratiquement des phénomènes de charge [29]).

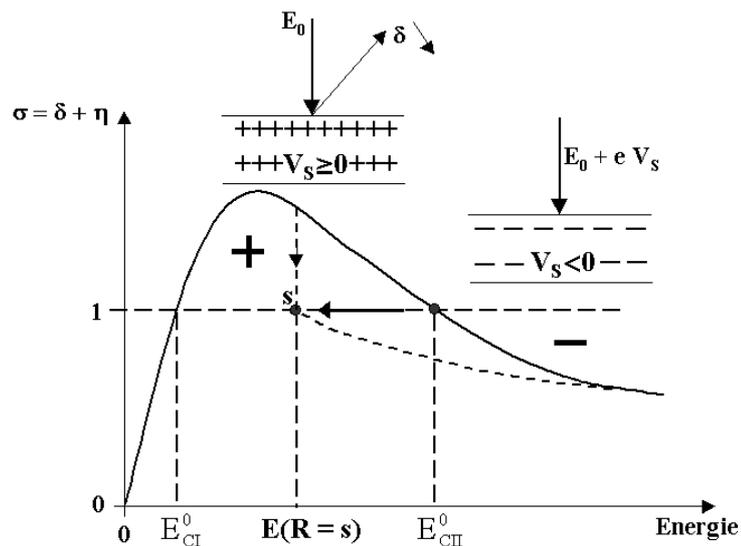
Selon cette approche, le signe de la charge est positif quand l'énergie primaire  $E_0$  est située entre les deux énergies critiques  $E_{CI}$  et  $E_{CII}$ , où le rendement d'émission électronique total,  $\sigma$ , est égal à l'unité alors que ce signe est négatif en dehors de cet intervalle énergétique. Quand les électrons primaires percutent la surface d'un isolant avec une énergie supérieure à  $E_{CII}$ , une charge négative est injectée dans l'isolant ( $I_\sigma < I_0$  ou  $\sigma < 1$ ). Cette charge donne naissance à un champ électrique extérieur (chambre objet du MEB) qui est responsable du ralentissement des électrons primaires. L'énergie d'atterrissage (ou l'énergie effective,  $E_{eff}$ ) de ces derniers est par conséquent déplacée et vaut  $E_0 + e V_s$  où  $e$  est la charge élémentaire de l'électron ( $e = 1.6 \cdot 10^{-19}$  C) et  $V_s$  le potentiel de surface négatif. Cette diminution de l'énergie effective des électrons incidents provoque une augmentation du rendement d'émission électronique total  $\sigma$  de sa valeur initiale ( $\sigma$  à  $E_0$ ) jusqu'à l'unité ( $\sigma = 1$  à  $E_{CII}$ ). Cette dernière valeur de  $\sigma$  atteinte lorsque le nombre d'électrons entrant serait égal au nombre d'électrons sortant se produit pour une énergie critique  $E_{CII}$  donnant un potentiel de surface nul. Entre les énergies critiques  $E_{CI}$  et  $E_{CII}$ , le rendement d'émission électronique total est supérieur à l'unité et le signe positif prévu est le résultat d'un excès de charge positive dû à l'émission électronique secondaire. Pour la plupart des isolants l'utilisation de la méthode d'impulsion conduit à un rendement d'émission électronique total souvent supérieur (plusieurs ordre de grandeur) à celui des métaux et par conséquent à une énergie critique  $E_{CII}$  supérieure ou égale à 10 keV [30-32].

Dans le cas d'une irradiation permanente une charge négative est souvent observée pour des énergies primaires aussi faibles que  $E_{CII} \sim 2-3$  keV, correspondant à des rendements d'émission électronique obtenus par la méthode d'impulsion presque à leur maximum [30], (l'approche conventionnelle prédit une charge positive dans ce cas). Ainsi les prévisions de l'approche conventionnelle se trouvent en contradiction avec de nombreux

résultats expérimentaux [33,34] notamment ceux portant sur les halogénures alcalins monocristallins étudiés par la méthode d'impulsion et pour lesquels le maximum du rendement d'émission électronique secondaire  $\delta_m$  est systématiquement supérieur à 5 ( le plus souvent 10 ) pour des énergies primaires dans l'intervalle 1-2 keV. Dans le cas d'une irradiation permanente de LiF et de NaCl, sous incidence normale, les énergies critiques  $E_{CII}$  obtenues sont respectivement égales à 2 keV et à 2.5 keV [35] ce qui correspond à une charge négative.

Pour lever cette ambiguïté, Cazaux [17,30] à récemment proposé une approche qui permet de distinguer le rendement nominal  $\delta^0$  (correspondant à l'énergie critique  $E_{CII}^0$ ) obtenu à l'aide de la méthode d'impulsion du rendement pratique  $\delta$  ( correspondant à l'énergie critique  $E_{CII}$ ) obtenu suite à une irradiation permanente. La différence entre  $\delta^0$  et  $\delta$  est due à certaines interactions (avec les lacunes ou avec les électrons piégés notamment) que subissent les électrons secondaires sur leur trajet vers la surface.

Concernant l'existence d'un potentiel de surface négatif, les arguments développés par Cazaux sont basés sur l'utilisation du modèle de la double couche [36] ( (+) pour les électrons secondaires qui contribuent à une charge positive et (-) pour les électrons incidents piégés). Dans le cas d'une irradiation permanente, son analyse suggère qu'un potentiel nul ne peut être atteint que lorsque la profondeur de pénétration des électrons est égale à la profondeur d'échappement des électrons secondaires. Cet état correspond à la nouvelle énergie critique  $E(R = s)$  (Fig.I.11).



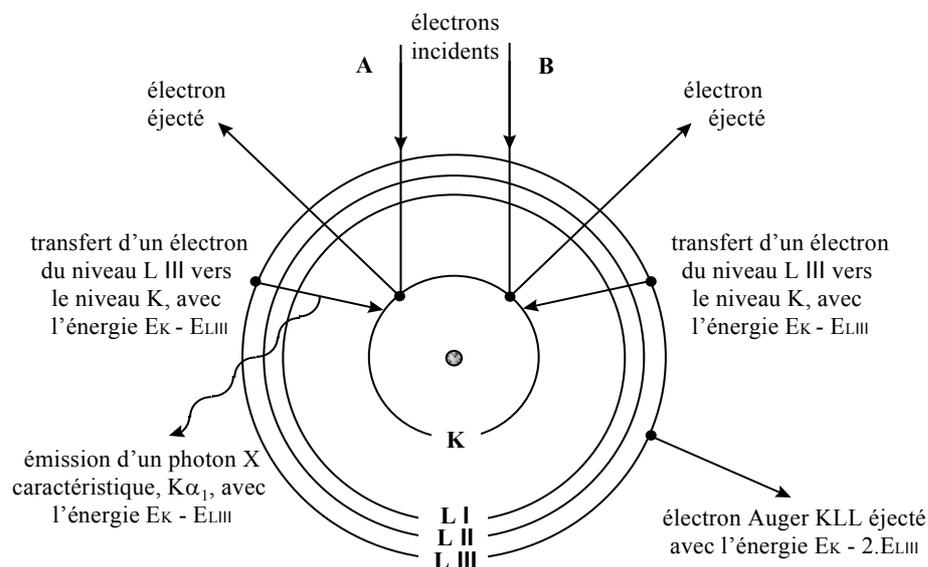
**Fig.I.11** : Déplacement de l'énergie critique  $E_{CII}^0$  à l'énergie  $E(R = s)$  sous irradiation permanente. Le point  $s$  étant la nouvelle état d'équilibre (d'après [17]).

En conclusion, l'approche conventionnelle du rendement d'émission électronique totale peut être appliquée dans les conditions d'utilisation d'une irradiation permanente mais en remplaçant l'énergie critique  $E_{CII}^0$  par  $E(R = s)$ . La prise en compte du courant de fuite conduit à une évacuation partielle de la charge négative en excès et par conséquent à une diminution du potentiel de surface négatif. Dans ce cas l'énergie effective des électrons primaires peut être supérieure à  $E(R = s)$  [17].

## I.2.4 Emission photonique

### I.2.4.1 Mécanisme de base

Nous avons vu précédemment que lorsque les électrons cheminent dans un milieu matériel, ils interagissent avec lui subissant des collisions aussi bien élastiques qu'inélastiques. Ces dernières peuvent donner naissance à des lacunes dans les couches internes des atomes qui se trouvent ainsi dans un état excité. Le retour à un état d'équilibre (désexcitation) s'effectue soit par émission radiative (émission X) soit par émission non radiative (émission Auger). Dans le premier cas la lacune créée est comblée par un électron d'une couche supérieure et la différence d'énergie entre les deux niveaux mis en jeu est transformée en un photon X (Figure.I.12).



**Fig.I.12 :** *Processus d'émission de photons X caractéristiques (A) ou d'émission d'électrons Auger (B).*

L'irradiation électronique d'un matériau s'accompagne donc de l'émission de photons X à des énergies bien définies et caractéristiques des atomes composant la cible. Ce

mécanisme constitue le principe de base de la microanalyse X. A côté de cette émission caractéristique, le bombardement électronique d'une cible solide génère un rayonnement continu lié au ralentissement des électrons incidents dans les forts champs électromagnétiques des noyaux des atomes de la cible. A cause de ce ralentissement les électrons primaires perdent continuellement de l'énergie cinétique. Cette perte d'énergie se traduit en énergie radiante par l'émission de photons X appelé rayonnement de freinage ou Bremsstrahlung. Ce rayonnement constitue en microanalyse X le fond continu sur lequel vont s'inscrire les raies caractéristiques. Notons que l'énergie maximale de ce rayonnement X continu qui ne pourra excéder l'énergie des électrons primaires constitue une limite qu'on appelle « limite de Duane-Hunt » et qu'on utilise souvent pour contrôler la tension d'accélération du microscope électronique à balayage sur des cibles métalliques ou pour mesurer le potentiel de surface quand il s'agit de cibles isolantes. Dans ce dernier cas, la mesure n'est toutefois pas très précise à cause de la distorsion du spectre X due aux effets de charge (voir ci-dessous).

### 1.2.4.2 Mesure du potentiel de surface

La spectroscopie des photons X est l'une des méthodes couramment utilisées pour mesurer le potentiel de surface [18,37-40]. En effet, le ralentissement des électrons primaires dû au champ électrique produit dans le vide par la charge piégée dans un échantillon isolant provoque le déplacement de la limite à hautes énergies du fond continu (limite de Duane-Hunt) du spectre X vers les basses énergies. La limite supérieure en énergie du fond continu  $E_{\text{Sup}}^X$  correspond à l'énergie effective des électrons incidents. Le potentiel de surface peut donc être déduit de cette dernière par la relation :

$$|V_s| = V_{ac} - \frac{E_{\text{Sup}}^X}{e} \quad \text{(E.I.5)}$$

Cependant, les valeurs du potentiel de surface obtenues par la spectroscopie des photons X sont en général systématiquement inférieures à celles obtenues par d'autres méthodes (notamment par la spectroscopie électronique (voir chapitre II)) sur des échantillons de même nature et dans des conditions d'irradiation similaires [41].

L'explication de cette divergence des résultats (valeurs du potentiel de surface) sera traitée dans le chapitre. II.

### 1.3 Interaction électron-isolant : piégeage et transport de charge

La capacité des isolants à la rétention ou à l'évacuation d'une charge électrique constitue encore un sujet de spéculations à cause du grand nombre de paramètres liés à la structure des isolants qu'il faut considérer et des mécanismes physiques complexes se

déroulant d'une manière successive ou/et compétitive suite à une irradiation électronique. L'explication de ces phénomènes est souvent basée sur plusieurs facteurs tels que : la structure de bande [42,43], la mobilité [44], le désordre [45,46], la température [47] , etc. Ainsi, dans ce paragraphe, nous nous intéressons plus particulièrement aux interactions électron-isolant et nous commençons par le cas non réaliste mais plus simple du cristal parfait ;ensuite nous considérons le cas des isolants réels en tenant compte des défauts et du désordre dans la structure atomique.

### **I.3.1 Cas des matériaux isolants parfaits**

La structure de bande d'énergie d'un isolant résulte de la combinaison de la nature ondulatoire de l'électron et de la périodicité du réseau cristallin. Les électrons du cristal (intrinsèque ou injectés) ne peuvent occuper qu'un certain nombre d'états d'énergie permis qui se répartissent en bandes séparées par des intervalles d'énergies interdits, communément désignés par le mot anglais « gap » [42,43].

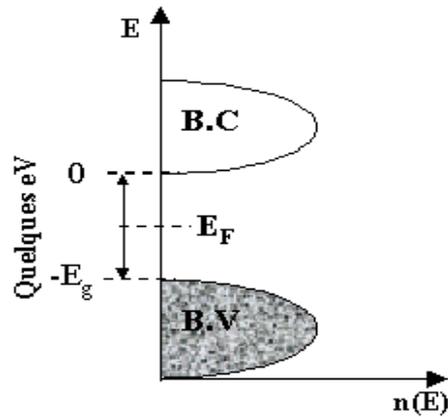
Comme l'illustre la Figure.I.13, le matériau isolant présente deux particularités :

- Le nombre d'électrons de valence est exactement égal au double du nombre de niveaux d'énergie (double du nombre de mailles) et par conséquent la bande de valence est complètement remplie.
- La bande suivante (bande de conduction) est vide et séparée de la bande de valence par un gap,  $E_g$  de l'ordre de quelques eV ( $E_g > 2$  eV).

La seule possibilité offerte à un électron pour changer d'état sous l'application (par exemple) d'un champ électrique est de transiter vers la bande vide suivante (bande de conduction). Cependant, étant donnée l'importante valeur de  $E_g$ , l'énergie fournie par le champ électrique reste insuffisante pour produire une telle transition et l'application d'un champ électrique (modéré) ne s'accompagne pas d'une circulation de charges.

Par contre si un électron excédentaire est injecté dans ce cristal parfait mis à la masse, il sera rapidement évacué et aucune localisation (ou piégeage) de charge n'est possible. Ceci constitue la définition « académique » d'un isolant.

En pratique cependant la situation est beaucoup plus complexe, car d'une part la présence de défauts et d'impuretés dans l'isolant est un fait inévitable et d'autre part le plus grand nombre des isolants qui nous entourent sont souvent des milieux polycristallins ou amorphes (ils ne présentent pas de structure cristalline parfaite). Ces « imperfections » jouent un rôle important dans le comportement des isolants soumis à une injection de charges en général et une irradiation électronique en particulier. Nous allons donc rappeler leur rôle dans le transport et la localisation de charges.



*Fig.I.13 : Représentation schématique de la variation de la densité d'états possibles, dans le cas d'un isolant cristallin parfait.  $E_F$  est le niveau de Fermi.*

### I.3.2 Cas des isolants réels

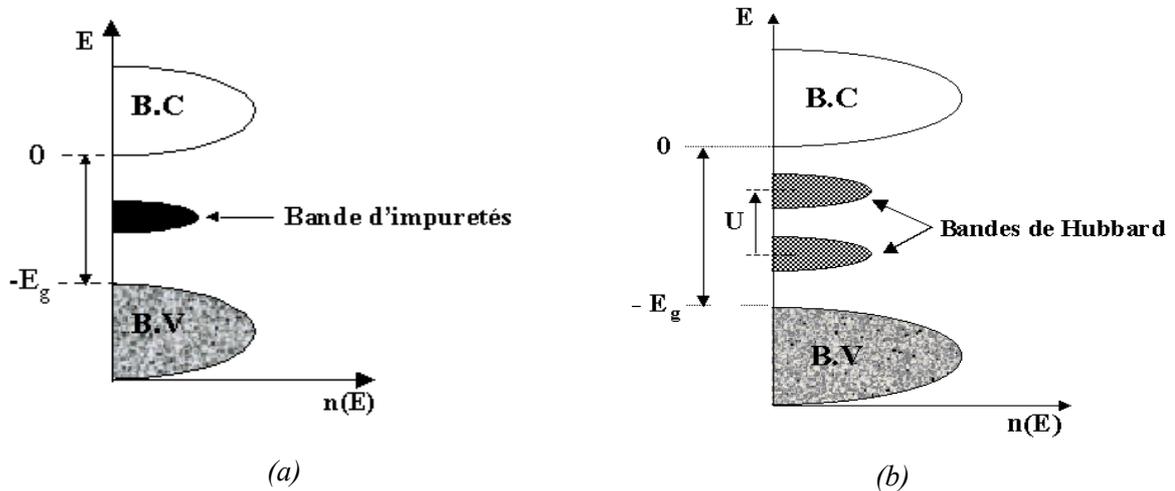
#### I.3.2.1 Défauts et impuretés

Les défauts peuvent être aussi bien des défauts ponctuels (lacune, impureté en substitution, atome en position interstitielle, défauts de Schottky et Frenkel, etc.) que des défauts linéaires et bidimensionnels (dislocations et joints de grains) ou bien encore des défauts d'empilement inhérents à la structure du matériau. La présence de ces défauts se traduit par la modification de la structure de bande de l'isolant. Les impuretés, les lacunes etc, sont capables (si les perturbations qu'elles génèrent sont assez importantes) de créer des niveaux localisés dans la bande interdite. Selon la configuration du défaut, le niveau créé est susceptible de localiser (pendant un temps plus ou moins long) un ou plusieurs électrons pour les restituer, sous l'action d'une excitation, à la bande de conduction (niveau donneur) ou bien de localiser un ou plusieurs trous pour les céder par la suite à la bande de valence (niveau accepteur).

Un isolant contient en général plusieurs types de défauts ponctuels répartis aléatoirement dans l'espace. Par conséquent l'ensemble des niveaux créés forme une ou plusieurs bandes d'énergie dans la bande interdite (voir Figure.I.14 (a)). La largeur de cette bande ou de ces bandes est d'autant plus importante que la densité des défauts ponctuels est grande. Plus la concentration en défauts est importante plus cette bande est large. A très forte concentration de défauts, cette bande peut atteindre la bande de conduction.

La description de la bande d'impuretés ne considère souvent qu'un seul électron, or les états de cette bande peuvent généralement contenir plusieurs électrons. Tout électron introduit dans le solide subit une interaction avec l'électron qui occupe le même site, il apparaît donc une énergie de répulsion  $U$  appelée énergie de Hubbard (Fig.I.14 (b)). Cette

interaction induit la séparation en deux bandes distinctes de la bande d'impureté appelées bandes Hubbard, distantes de l'énergie  $U$ . La bande inférieure contient les électrons de valence de l'atome d'impureté. La bande supérieure contient les électrons qui forment un site chargé négativement.



*Fig.1.14 : (a) : Représentation schématisée de la densité d'états possibles dans un isolant cristallin contenant un certain nombre de défauts ponctuels. (b) : représentation des bandes de Hubbard dans un schéma de bandes.*

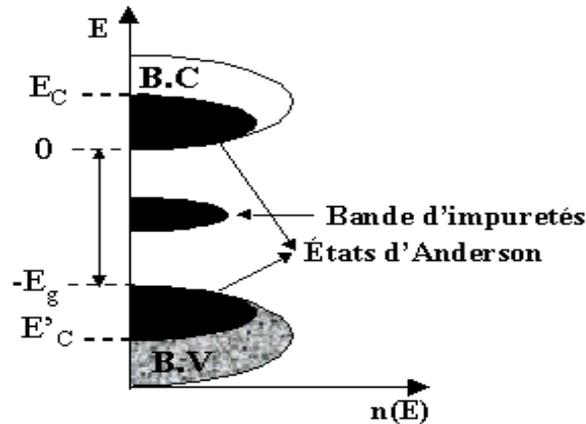
La mobilité des électrons dépend fortement de la température et de la concentration des défauts. Plus cette concentration est importante et plus la distance entre défauts est faible et plus la mobilité des électrons par sauts successifs est accrue. Notons en plus que le changement d'état (et donc la mobilité) d'un électron localisé dans ces bandes ne peut se faire sans le concours d'une énergie fournie par les phonons. La mobilité dans les bandes d'impuretés est donc activée par la température.

### 1.3.2.2 Désordre et états localisés dans la bande de conduction

Dans la théorie des bandes du cristal, l'existence d'un gap est liée aux réflexions de Bragg des ondes électroniques. Cette réflexion suppose un ordre dans l'empilement des atomes du matériau. Cependant, plusieurs raisons peuvent conduire à l'altération de cet ordre, la première est la présence d'un grand nombre de défauts qui provoque des déformations locales du réseau et la deuxième est qu'un grand nombre d'isolants ne possèdent pas naturellement une structure cristalline (les isolants amorphes). Qu'en est il alors du schéma de bandes ?

Les travaux théoriques d'Anderson [45] et Mott [46] ont montré que, bien que la notion d'ordre disparaît, la vision de l'isolant en termes d'une bande de « conduction » et d'une

bande de « valence » séparés d'un gap, reste valable. Cependant le bas de la bande de conduction qui représentait dans le cas du cristal parfait des états étendus (forte délocalisation de la fonction d'onde de l'électron), représente désormais dans le cas des milieux désordonnés des états localisés (localisation de la fonction d'onde de l'électron).



*Fig.I.15 : Représentation schématique de la densité d'états possibles pour un isolant contenant des défauts et présentant un certain degré de désordre. Les états localisés sont représentés en noir.*

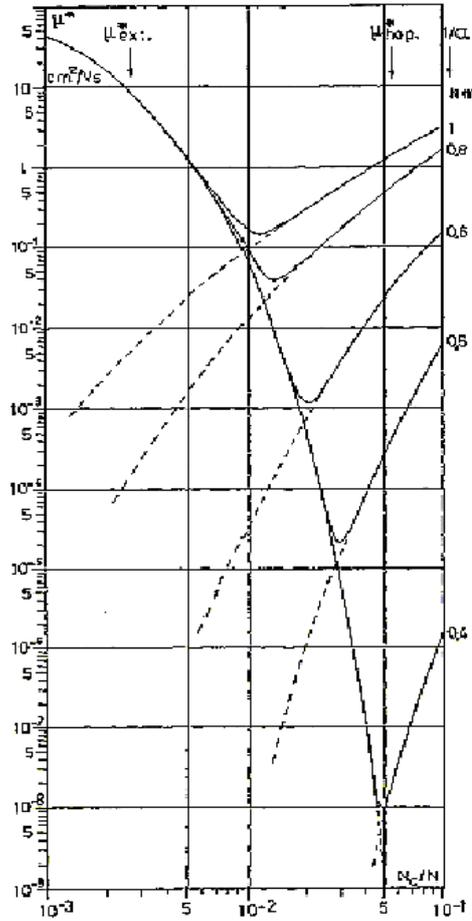
En d'autres termes, la situation s'inverse pour l'électron injecté dans le bas de la bande de conduction. En effet, si dans le cas du cristal parfait l'électron était presque libre et simplement « freiné » par les interactions avec les phonons, il ne peut maintenant (milieu désordonné) changer d'état sans l'apport de l'énergie communiquée par ces phonons. Un électron situé en bas de la bande de conduction est donc un électron piégé.

La limite,  $E_C$ , entre les états étendus et les états localisés dans la bande de conduction est appelée seuil de mobilité. Ce seuil dépend du degré de désordre de l'isolant. Ainsi la Figure.I.15, donne le schéma de bandes qui paraît le plus réaliste pour pouvoir décrire dans les chapitres suivants le comportement d'un isolant vis à vis d'une irradiation électronique.

### **1.3.2.3 défauts et mobilité**

Les effets du désordre sur la localisation et sur le transport d'électrons injectés dans un isolant ont été récemment revus par Blaise [48]. Dans ses travaux, le terme désordre englobe aussi bien le désordre dû à l'arrangement aléatoire des atomes (milieu amorphe) que le désordre lié à l'inclusion des impuretés ou aux défauts ponctuels. La Figure.I.16 montre la variation de la mobilité effective  $\mu^*$ , (somme de la mobilité effective dans les états étendus  $\mu^*_{ext}$  et dans les états localisés  $\mu^*_{hop}$ ) en fonction du degré de désordre dans le matériau,  $N_C/N$ .  $N_C$  étant la densité des états localisés en bas de la bande de conduction (les

états localisés dans la bande d'impureté ne sont pas considérés) et  $N$  la densité atomique du matériau.



**Fig.I.16:** Evolution de la mobilité effective des électrons,  $\mu^*$  en fonction du degré de désordre dans l'isolant. Figure extraite des travaux de Blaise [48].

La mobilité effective dans les états étendus, intimement liée aux interactions électron-phonon, décroît avec le désordre, alors que la mobilité dans les états localisés croît avec l'augmentation du désordre. A partir de cette figure, nous pouvons définir « qualitativement », trois domaines de mobilité selon le degré du désordre :

- ❖ A très bas degré de désordre (monocristaux très purs), la mobilité effective des électrons est extrêmement élevée. Par exemple, pour un monocristal très pur d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  elle peut atteindre  $200 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  [49]. L'isolant se caractérise alors par une grande capacité à évacuer les électrons injectés. Le transport d'électrons (injectés) vers la masse joue un rôle aussi important que l'émission électronique secondaire et permet de conserver la neutralité électrique de l'isolant irradié.
- ❖ Quant le degré de désordre croît (inclusion de quelques impuretés, lacunes, etc.), la mobilité dans les états étendus diminue (pertes d'énergie due aux interactions électron-

phonon) d'une part et d'autre part la mobilité dans les états localisés augmente (plus la densité des états localisés est grande et plus la probabilité de sauts successifs "hopping" des électrons d'un site à un autre, augmente [50]). La variation de la mobilité effective en fonction de  $N_C/N$  passe alors par un minimum. Au voisinage de ce minimum, la mobilité des électrons peut être extrêmement réduite et le courant de fuite est négligeable. L'échantillon charge alors sous irradiation électronique et seule l'augmentation de l'émission électronique secondaire peut réguler la charge piégée.

- ❖ A très haut degré de désordre, (milieux naturellement amorphes, inclusion d'un grand nombre d'impuretés ou dégradation de la structure atomique de la surface suite à la procédure de mise en forme de l'échantillon), la mobilité dans les états localisés devient prédominante. Selon le type de matériaux, la valeur de  $\mu^* \approx \mu_{hop}^*$  peut être alors assez importante pour donner naissance à un courant de fuite qui participe significativement à la régulation de la charge piégée.

Donc selon le degré de désordre il apparaît une compétition entre la conductivité due à la mobilité dans les états étendus et la conductivité due à la mobilité dans les états localisés (en bas de la bande de conduction). Pour un degré de désordre bas, la conductivité des électrons est principalement donnée par celle des électrons injectés dans les états étendus. Pour un degré de désordre haut, la conductivité est principalement donnée par celle des électrons injectés dans les états localisés. Le résultat principal est que pour un certain nombre d'isolants et à partir d'un certain degré de désordre la conduction dans les états localisés est activée à température ambiante.

Notons, que cette analyse, n'inclue pas les effets du champ électrique induit par la charge piégée elle même sur le transport des électrons. Plus brièvement on distingue deux effets, le premier concerne le dépiégeage des charges piégées et le deuxième leur transport [30,51,52].

#### **1.3.2.4 Création de défauts sous irradiation électronique**

Sous irradiation électronique des paires électron-trou sont créées dans l'isolant mais la majorité de ces paires se recombinent rapidement et seulement quelques électrons et trous se déplacent dans les bandes de conduction et de valence avant d'être piégés (de nouveau) dans les niveaux localisés dans la bande interdite représentant les impuretés et les défauts de structure produits sous irradiation électronique et/ou préexistants dans le matériau [53,54].

Concernant les défauts induits par l'irradiation, citons deux exemples de matériaux assez bien décrits dans la littérature, il s'agit de la silice et de l'alumine [55].

Dans le cas de la silice ces défauts sont essentiellement de trois types : le premier est la lacune d'oxygène (neutre notée  $\equiv \text{Si}^- \dots \text{Si}^- \equiv$ , ou positive appelé centre E' notée

$\equiv \text{Si}^- \dots \text{Si}^+ \equiv$ ) accompagné d'une relaxation des atomes voisins. Ce type de processus est favorisé si le trou est formé dans la partie de la bande de valence correspondant aux liaisons Si-O [56,57,58,59]. Le deuxième type est le radical peroxyde ( $\equiv \text{Si} - \text{O} - \text{O}^-$ ), qui peut résulter soit d'un centre E' soit d'un pont peroxyde ( $\equiv \text{Si} - \text{O} - \text{O} - \text{Si} \equiv$ ) [60,61]. Le troisième type est un oxygène ou un silicium non pontant (NBO) [60].

Ces défauts sont associés à des ruptures de liaisons dans l'enchaînement entre les atomes de silicium et d'oxygène caractéristiques d'un désordre à très courte distance. Ces ruptures peuvent être créées par irradiation ou pendant l'élaboration de la silice. Cependant le piégeage des électrons sur les deux derniers types de défauts n'a de fondement ni théorique ni expérimental [53].

Dans le cas du quartz les défauts induits sont essentiellement des défauts du réseau cristallin induits par l'irradiation qui favorisent la formation d'excitons responsables de la création de paires lacune d'oxygène- liaison peroxyde [53].

Dans le cas de l'alumine, à l'état fondamental, la configuration électronique de l'oxygène est proche de  $\text{O}^-$ . A la position d'une lacune d'oxygène, on attend donc une distribution électronique équivalente à environ un électron. Par suite de l'absence du cœur atomique, cette distribution est fortement couplée aux modes de vibration du réseau. Un tel centre est appelé centre  $\text{F}^+$ . A un centre  $\text{F}^+$  est associé un état électronique localisé dans la bande interdite, partiellement occupé par des électrons du réseau. Le piégeage d'un électron par un centre  $\text{F}^+$  donne un centre F (lacune d'oxygène occupée par deux électrons). Au centre F est associé un état électronique occupé moins fortement lié que celui du centre  $\text{F}^+$ . A chaque centre  $\text{F}^+$  et F, sont associés des niveaux excités. Le piégeage d'un électron se fait uniquement par l'intermédiaire des niveaux faiblement liés, donc situés très près du bas de la bande de conduction. Pour un centre  $\text{F}^+$  il se fait dans des états fortement excités.

D'autres mécanismes peuvent être impliqués dans la création de défauts, il s'agit de la production d'ions chargés dans les solides partiellement ioniques. La présence d'un champ électrique généré par la charge piégée provoque alors la migration de ces ions.

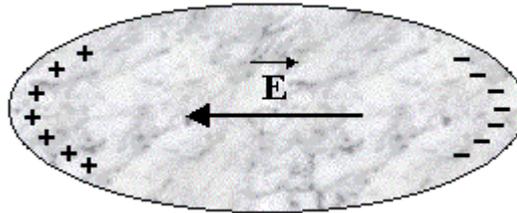
#### **I.4 Principe des charges images et du courant d'Influence**

La mesure de la charge piégée  $Q_p$  dans un isolant irradié est basée essentiellement dans cette étude sur la mesure du courant induit par l'influence électrostatique. Après une brève description du phénomène d'influence électrostatique (pour une étude approfondie, le lecteur peut consulter l'ouvrage de Durand [62] ou de Rocard [63]), nous donnerons le principe de la méthode, basée sur ce phénomène, qui a été utilisée pour mesurer la charge piégée.

## I.4.1 Généralités

### I.4.1.1 Effet d'un champ électrique sur un conducteur

L'équilibre d'un conducteur dépend généralement de toutes les charges qui l'entourent. Les modifications qu'il subit en présence de ces charges sont appelées *phénomènes d'influence*. Ces phénomènes sont particulièrement faciles à décrire et à analyser dans le cas d'un conducteur isolé et neutre que l'on considère d'abord seul dans l'espace, puis plongé dans le champ électrique,  $\vec{E}$  produit par des charges extérieures (voir Figure.I.17).



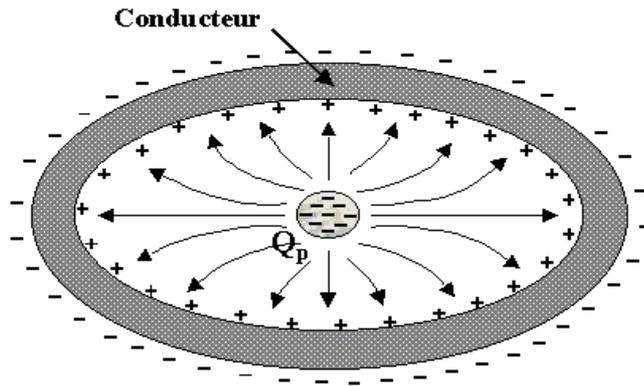
*Fig.I.17 : Comportement d'un métal face à un champ électrique  $\vec{E}$*

Sous l'influence de ce champ  $\vec{E}$ , les charges électriques mobiles du conducteur vont se déplacer ; dans le cas de la Figure.I.17, des charges électriques positives viendront s'accumuler sur la partie gauche du conducteur, des charges négatives sur la partie droite.

Les charges ainsi déplacées créeront un champ dont le sens, à l'intérieur du conducteur, sera opposé au sens du champ  $\vec{E}$  et le déplacement de "l'électricité" ne s'arrêtera que lorsque la résultante de ces deux champs sera nulle en tous les points à l'intérieur du conducteur. On dit que le conducteur s'est électrisé par *influence* ; il semble être créé sur sa surface, des charges électriques. *La somme des charges électriques positives et négatives développées par influence sur un conducteur est nulle.*

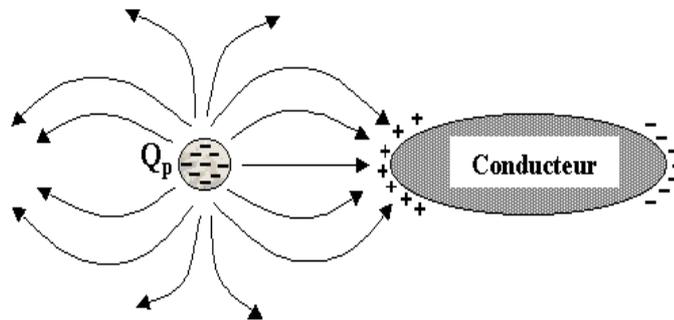
### I.4.1.2 Influence totale, influence partielle

On dit qu'il y a influence totale quand le conducteur influencé entoure complètement les charges électriques influençantes. Dans la cavité d'un conducteur creux sont placées, des charges électriques : soit  $Q_p$  la somme de ces charges, que nous supposons par exemple négative. Si le conducteur influencé est isolé (Fig.I.18) toutes les lignes de force de cette charge aboutissent sur la surface intérieure du conducteur.



*Fig.I.18 : Représentation schématique de la notion d'influence totale.*

D'après le théorème des éléments correspondants (*Les charges portées par deux éléments correspondants sont égales en valeur absolue et de signes contraires*) les charges qui apparaissent sur la face intérieure du conducteur sont donc égales à  $Q_p$  et de signes opposés. Si le conducteur est initialement neutre, il apparaît sur sa surface extérieure une charge égale à  $Q_p$ .



*Fig.I.19 : Représentation schématique de la notion d'influence partielle.*

Dans le cas où le conducteur n'enveloppe pas toute la charge  $Q_p$  (Fig.I.19) les lignes de force qui partent de cette dernière n'aboutissent pas toutes sur le conducteur et dans ce cas on a une influence partielle.

#### **I.4.2 Principe des charges images**

En électrostatique classique une distribution quelconque de charges électriques  $q_i$  dans le vide en présence d'un plan conducteur au potentiel nul (lié à la masse) est considérée (côté vide) comme un système constitué des charges initiales en présence des charges "images" symétriques des précédentes (par rapport au plan du conducteur) et de signe opposé,  $-q_i$  (dans le cas d'une influence totale). Cette équivalence permet de résoudre

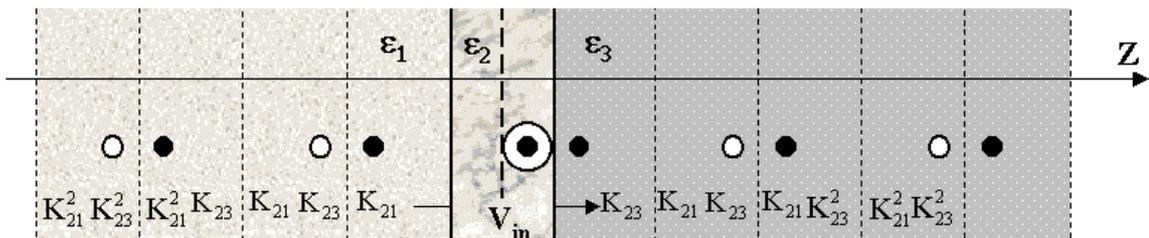
de façon élégante l'équation de Laplace dans le vide et d'avoir une solution qui satisfait à la condition aux limites sur le plan conducteur ( $V = 0$ ) tout en ayant un champ électrique (côté vide) normal à la surface du conducteur. La densité superficielle de charge  $\sigma$  qui se développe sous l'influence des charges  $q_i$  situées dans le vide à l'interface vide/ métal est :

$$Q_{\text{inf}} = \iint_{\text{Surf.conduct}} \sigma \, dS = - \sum_i q_i \quad (\text{E.I.6})$$

Si les charges images dans le conducteur ne sont pas des charges réelles, la charge totale  $Q_{\text{inf}}$  développée par influence sur le plan conducteur est néanmoins égale à la somme des charges réelles placées dans le vide (changée de signe).

En procédant en sens inverse, la solution de l'équation de Laplace permet de calculer les champs électriques puis la charge totale portée par le métal [30].

Dans le cas des isolants sous bombardement électronique, l'échantillon est souvent modélisé par un diélectrique en forme de lame à faces parallèles (constante diélectrique  $\epsilon_2$ ) déposé sur un substrat conducteur ( $\epsilon_3$ ), le tout placé dans le vide ( $\epsilon_1$ ). Si on considère une charge ponctuelle piégée, les images électriques successives de la série (des coefficients)  $K_{23} ; K_{21} K_{23} ; K_{21} K_{23}^2 ; K_{21}^2 K_{23}^2 ; \dots$  s'annulent quand  $K_{23} = -1$  à l'exclusion de la première qui sera telle que  $q_{\text{inf}} = -q$ . (voir la Fig.I.20, d'après [64]).

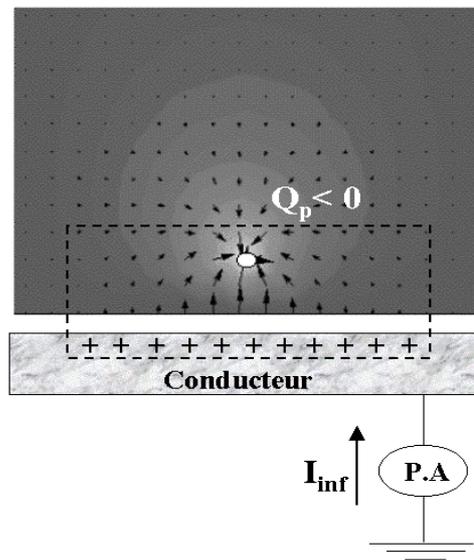


**Fig.I.20 :** Principe des charges images (d'après [64]) : La charge  $q$  réelle est dans le diélectrique  $\epsilon_2$  et les images dans le métal  $\epsilon_3$  se situent à droite alors que celles dans le vide  $\epsilon_1$  se situent à gauche. Quand  $\epsilon_3 = \infty$ ,  $K_{23} = (\epsilon_2 - \epsilon_3) / (\epsilon_2 + \epsilon_3) = -1$  (d'après [30]) et la somme des images de la série de droite se réduit à  $-q$ .

### I.4.3 Mesure de la charge piégée à partir du courant d'influence et loi de conservation du courant

#### I.4.3.1 Mesure de la charge piégée à partir du courant d'influence

Le principe de la mesure par influence électrostatique d'une charge négative  $Q_p$  contenue dans matériau quelconque est fondée sur la loi établie par Faraday, à savoir qu'une charge  $Q_p$  placée au voisinage d'un conducteur relié à la masse, induit sur la paroi en face de celle-ci une charge d'influence  $Q_{inf}$ , souvent improprement appelé charge image. Donc le conducteur relié à la masse peut être simulé par une cage de Faraday.



**Fig.I.21 :** Mesure d'une charge piégée par la méthode d'influence dans le cas expérimental (influence partielle).

Plaçons un picoampèremètre entre la masse et le conducteur, lorsque les charges d'influence de signe opposé à  $Q_p$  viennent s'accumuler sur la paroi du conducteur en face de  $Q_p$ , les charges négatives de l'autre face du conducteur sont neutralisées en partant vers la terre, c'est ainsi qu'un courant dit d'influence est généré. Dans le cas d'une influence partielle l'intégrale dans le temps de ce courant est égale à  $- Q_p$  à une constante  $K$  près. Cette constante appelée coefficient d'influence est donnée par :

$$K Q_p = \int_0^t I_{inf} dt = Q_{im} \quad \text{(E.I.7)}$$

La charge image  $Q_{im}$  étant toujours inférieure à la charge piégée  $Q_p$  puisqu' il s'agit d'un phénomène d'influence partielle (  $K$  toujours inférieur à l'unité).

Dans le cas d'une influence totale  $K = 1$  et on a :

$$Q_p = \int_0^t I_{inf} dt = Q_{im} \quad (E.I.8)$$

Ce dernier cas n'est pas réalisable expérimentalement car l'échantillon doit être complètement enveloppé par le métal et en même temps doit être dénudé pour permettre l'injection des charges.

Dans ce travail nous utilisons l'influence partielle et le facteur K sera non seulement mesuré mais aussi calculé (voir chapitres II, III et IV).

Le facteur d'influence dépend aussi bien de la nature de l'échantillon (*via* sa constante diélectrique relative) que de son épaisseur. K devrait donc être réévalué expérimentalement pour chaque échantillon qui diffère soit par sa composition chimique soit par ses dimensions.

Notons que le courant échantillon induit par l'irradiation diffère du courant d'influence parce qu'il prend une valeur significative en fin d'irradiation (quand celle-ci est prolongée) et il peut être éliminé en supprimant le contact entre échantillon et porte échantillon métallique.

Ainsi, pour l'essentiel, nous allons voir que l'intérêt majeur de la mesure de la charge piégée par la méthode d'influence électrostatique est d'avoir accès à l'évolution au cours du temps des charges piégées dans l'isolant à partir de la mesure de l'évolution du courant d'influence (voir chapitres II et III).

#### 1.4.3.2 Loi de conservation du courant

D'un point de vue macroscopique (la mesure), il est possible d'accéder à la charge totale piégée dans l'isolant. Cette charge résulte de la compétition entre l'émission électronique, la localisation et le transport de charges. Si  $I_0$  et  $I_L$  sont respectivement le courant primaire et le courant de fuite résultant du transport de quelques charges excédentaires vers la masse, la loi de conservation de courant s'écrit alors :

$$I_0 = \sigma I_0 + I_L + \frac{dQ}{dt} = I_\sigma + I_L + \frac{dQ}{dt} \quad (E.I.9)$$

avec  $\sigma$  et  $dQ/dt$  le coefficient d'émission électronique total et la variation au cours du temps de la charge piégée respectivement.

La charge piégée négative induit une charge image positive  $Q_{im}$  sur la plaque destinée à la mesure du courant d'influence  $I_{inf}$  de sorte que :

$$Q_{im} = K Q \quad (E.I.10)$$

Où K est le facteur d'influence électrostatique qui dépend de l'épaisseur de l'échantillon, de sa constante diélectrique et des caractéristiques électriques de l'environnement de l'échantillon.

La charge piégée dans l'échantillon ne dépend pas uniquement de l'émission électronique totale mais aussi du courant de fuite dont nous proposons une méthode de mesure dans le chapitre suivant.

$$\frac{dQ}{dt} = I_0 (1 - \sigma) - I_L \quad \text{(E.I.11)}$$

Le courant d'influence  $I_{inf}$  est alors le résultat de la variation au cours du temps de la charge piégée.

$$I_{inf} = K \frac{dQ}{dt} \quad \text{(E.I.12)}$$

L'allure de ce courant ainsi que celle du courant de fuite seront présentées et analysées au cours et après l'irradiation dans le chapitre III de cette étude.

### Références Bibliographiques chapitre I

- [1] H. Seiler, Electron Beam Interaction With Solids ( SEM, Inc., Chicago, IL, 1984). Edité par D.F. Kyser, H. Niedrig, D.E. Newbury and R. Shimizu, p. 33.
- [2] K. Kanaya and S. Okayama, J. Phys. D **5** (1972) 43.
- [3] J.I. Goldstein, D.E. Newbury, P. Echlin, D.C. Joy, A.D. Romig, C.E. Lyman, C. Fiori and E. Lifshin, Scanning Electron Microscopy and X-Ray Microanalysis (Plenum, New York, 1992), Chap.3.
- [4] H. Seiler, J. Appl. Phys. **54**, 11 (1983).
- [5] H. Niedrig, E.I. Rau, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res B. **142**, 523 (1998).
- [6] H. Niedrig, J. Appl. Phys. **53**, 4 (1982).
- [7] M.M. El-Gomati and A.M.D. Assa'd, Mikrochim. Acta [Suppl.] **15**, 325 (1998).
- [8] D.C. Joy, Scanning **17**, 270 (1995).
- [9] G.F. Dionne, J. Appl. Phys. **46**, 3347 (1975).
- [10] A. Shih, J. Yater, C. Hor and R. Abrams, Appl. Surf. Sci., **111**, 251 (1997)
- [11] S.A. Schwarz, J. Appl. Phys. **68**, 2382 (1990).
- [12] J. Cazaux, K.H. Kim, O. Jbara and G. Salace, J. Appl. Phys. **70**, 960 (1991).
- [13] J. Cazaux, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res B **192**, 381 (2003).
- [14] Ding-Ze-Junet and Wu Zquin, J. Phys. D: Appl. Phys. **26**, 556 (1996).
- [15] H. Seiler, Z. Angew , Phys. **22**, 249 (1967).
- [16] R.C. Alig and S. Bloom, J. Appl. Phys. **49**, 3476 (1978).
- [17] J. Cazaux, Eur. Phys. J. A.P. **15**, 167 (2001).
- [18] D.C. Joy and C.S. Joy, Micron **27**, 247 (1996).
- [19] K. Kanaya, S. Ono and F. Ishigaki, J. Phys. D: Appl. Phys. **11**, 2425 (1978).
- [20] N.R.. Whetten, J. Appl. Phys. **35**, 3279 (1964).
- [21] H. Seiler, Proceeding of the Asilomar Conference ....(1982).
- [22] R. F. Willis and D.K. Skinner, Solid State Commun. **13**, 685 (1973).
- [23] A. Shih, J. yater, P. Pehrsson, J. Butler, C. Hor and R. Abrams, J. Appl. Phys. **82**, 1860 (1997).
- [24] J. Schou, Scanning Microscopy **2**, 607 (1988).
- [25] K. L. Grais and A. M. Bastawros, J. Appl. Phys. **53**, 5239 (1982).
- [26] A. Akkerman, T. Boutboul, A. Breskin, R. Check, and A. Gibbreehtman, J. Appl. Phys. **76**, 4656 (1994).
- [27] J. Cazaux, in Ionization of solids by heavy Particles, NATO ASI Series B 306 Physics, edited by R. A. Baragiola (Plenum, New York, 1993), p.325.
- [28] H. Bruining, in Physics and applications of secondary Electron Emission (McGraw-Hill, New York, 1954), p.1.

- [29] D. C. Joy, Scanning **11**, 1 (1989).
- [30] J. Cazaux, J.Appl. Phys. **85**, 1137 (1999).
- [31] H. J. Loi, M. D. Whitfield and J. C. Foord, Thin Solid Films 343-344, 623 (1999).
- [32] J. Cazaux, J.Appl. Phys. **89**, 8265 (2001).
- [33] K. Ura, J. Electron Microscopy **47**, 143 (1999).
- [34] P. Ascarelli, E. Cappelli, F. Pinzari, M. C. Rossi, S. Salvatiri, J.Appl. Phys. **89**, 689 (2001).
- [35] L. Reimer, V. Golla, R. Bongeler, M. Kassens, M. Schindler and R. Senkel, Optik **92**, 14 (1992).
- [36] J. Cazaux, J. Appl. Phys. **59**, 1418 (1986).
- [37] G. F. Bastin and H. J. M. Heijligers, in Electron Probe Quantification, Edited by K. F. J. Heinrich and D. E. Newbury ( Plenum, New York, 1991), p. 193.
- [38] J.J. Hwu and D. C. Joy, Proceeding of Electron Microscopy 1998, Edited by H. A Calderon Benavides and M José Yacaman, Mexico, Vol 1, p. 467.
- [39] H. Gong, C. Le Gressus, K.H. Oh, X. Z. Ong and B. T. G. Tan, J. Appl. Phys, **74**, 1944 (1993).
- [40] M. Toth, S. O. Kucheyev, J. S. Williams, C. Jagadish, M. R. Phillips et G. Li, Appl. Phys. Let, **77**, 1342 (2000).
- [41] M. Belhaj, O. Jbara, M.N. Filippov E.I. Rau and M.V. Andrianov, Appl. Surf. Sci., **177**, 58 (2001).
- [42] A. Guinier et R. Julien, La matière à l'état solide. Edité par Hachette-CNRS : Liaisons Scientifiques pp. 107-129
- [43] C. Kittel, Physique de l'état solide, 5<sup>e</sup> édition. Edité par Dunod Université pp 179-202.
- [44] G. Will Fritz, G. Horst De Lorenzi and H. Janora Kevin, J. Am. Ceram; Soc, **75**, 295 (1992).
- [45] P. W. Anderson, Phys. Rev, **109**, 1492 (1958).
- [46] N. Mott, Metal Insulator Transitions, Edité par Taylor-Francis, London (1974).
- [47] D. Moya-Sciesse, A. Sami, G. Moya, Proceeding CEIDP; IEEE annual report 1993, p104-109 and p146-149.
- [48] G. Blaise, Journal of Electrostatics, **50**, 69 (2001).
- [49] F.G. Will, H. G. de Lorenzi, K. H. Janora, J. Am. Ceram. Soc. **75**, 295 (1992).
- [50] J. Taniguchi, I. Miyamoto, N. Ohno, S. Honda, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res B **121**, 507 (1997).
- [51] H.J. Wintle, J. Appl. Phys. **81**, 2682 (1997).
- [52] M. P. Pépin and J. Appl. Phys. **83**, 5870 (1998).
- [53] J. P. Vigouroux, J. P. Durad, A. Le Moel, C. Le Gressus and D. L. Griscom, J. Appl. Phys. **57**, 5139 (1985).

- [54] D. L. Griscom, Rev. Solid State Sci. **4**, 565 (1990).
- [55] P. Jonnard.C. Bonnelle, G. Blaise, G. Rémond and C. Roques-Carnes, J. Appl. Phys. **88**, 6413 (2000).
- [56] R. A. Weeks, J. Appl. Phys. **27**, 1376 (1956).
- [57] D. L. Griscom, Phys. Rev. B. **22**, 4192 (1980).
- [58] F. J. Feigl, W. B. Fowler and K. L. Yip, Solid State Commun. **14**, 225 (1974).
- [59] A. H. Edwards, W. B. Fowler, Phys. Rev. B. **26**, 1649 (1982).
- [60] M. Stapelbroek, D. L. Griscom, E. J. Friebele and G. H. Sigel, J.Non-Cryst. Solids. **31**, 241 (1978).
- [61] D. L. Griscom and E. J. Friebele, Phys. Rev. B, **24**. 4896 (1981).
- [62] E. Durand, Electrostatique et Magnétostatique, Masson et C<sup>ie</sup> Editeurs, France (1953).
- [63] Y. Rocard, Electricité, Masson et C<sup>ie</sup> Editeurs, France (1956).
- [64] J. Cazaux, Semicond. Sci. Technol. **13**, 827 (1998).
- [65] QuickField Finite Element Analysis System, Tera Analysis, Svendborg (2001).

## **CHAPITRE II**

### **MISE AU POINT DE METHODES DE MESURE DE LA CHARGE PIEGEE**

" L'homme est savant tant qu'il cherche à savoir, c'est quand il croit savoir qu'il est ignorant."

" Quand un savant cesse de dire : «je ne sais pas», il cesse d'être savant."

" l'homme n'est vraiment savant qu'à trois conditions : s'il ne méprise pas celui qui en sait moins que lui, s'il n'envie pas celui qui en sait plus que lui et s'il n'accepte rien pour prix de son savoir."

OMAR BEN ABDEL AZI Z (717-790)

## II.1 Introduction

Dans ce chapitre il s'agit de mesurer la charge piégée (ou le potentiel de surface résultant) dans un isolant soumis à une irradiation électronique à l'aide de techniques que nous avons mises au point au laboratoire. Après une brève description de l'ensemble des paramètres expérimentaux qui peuvent conditionner le comportement électrique d'un isolant irradié, nous présenterons les principes de ces techniques, leurs capacités ainsi que leurs limites.

L'ensemble des techniques proposées peut être divisé en deux catégories. La première catégorie consiste à mesurer directement le potentiel de surface, soit par spectroscopie électronique à l'aide d'un spectromètre électrostatique toroïdal spécialement adapté pour l'utilisation dans un MEB, soit par spectroscopie d'émission X à l'aide de la limite de Duane-Hunt. La seconde catégorie permet de déterminer la charge piégée au cours du temps soit à l'aide de la déflexion du faisceau électronique provoquée par cette charge, soit en mesurant la charge correspondante induite par influence électrostatique. Ce dernier cas offre la possibilité non seulement de déterminer l'évolution de la charge piégée au cours de l'irradiation mais également d'observer l'évolution de cette charge après interruption du faisceau primaire.

Dans ce chapitre nous évoquerons les problèmes liés à la mesure du courant résultant du phénomène d'influence électrostatique dit « courant d'influence » lorsqu'un dispositif expérimental classique est mis en œuvre. Des modifications adéquates seront alors apportées pour remédier à ces problèmes. Ainsi, par l'utilisation d'un nouveau dispositif, il est possible de mesurer non seulement le courant d'influence, mais aussi le courant de fuite de manière simultanée.

Enfin, le facteur d'influence permettant d'accéder à la charge piégée ainsi que sa cinétique pendant et après l'irradiation seront déterminés et discutés.

## **II.2 Techniques et méthodes de mesure du potentiel de surface et/ou de la charge piégée**

Après une présentation succincte des conditions expérimentales adoptées au cours de l'irradiation de l'isolant ainsi que des caractéristiques physiques de ce dernier, les méthodes que nous avons utilisées et qui sont mises en œuvre dans un microscope électronique à balayage seront décrites. Bien que la mesure du potentiel de surface à l'aide de la limite de Duane-Hunt ne fasse pas partie des méthodes élaborées au laboratoire (méthode datant depuis plusieurs années [1]), cette méthode sera mentionnée, non seulement pour analyser ses limites dans certaines conditions mais aussi à titre de comparaison avec la spectroscopie électronique telle que nous la pratiquons dans un MEB. A travers les applications nous démontrerons la faisabilité de chaque technique et nous préciserons par ailleurs leurs possibilités ainsi que leurs limites. Notre contribution principale à l'étude du comportement d'un isolant sous irradiation électronique reste notoirement la mise au point de la méthode d'influence. Cette méthode qui vient renforcer la panoplie des autres méthodes, présente un avantage indéniable lié à sa simplicité de mise en œuvre et à son caractère dynamique de mesure de la charge piégée pendant et après l'irradiation électronique.

### **II.2.1 Conditions expérimentales**

#### **II.2.1.1 Vide, champs électriques et sources d'électrons perturbateurs**

Outre l'influence des propriétés intrinsèques de l'isolant sur son comportement électrique, l'environnement immédiat de ce dernier (atmosphère résiduelle, chambre objet du MEB et polarisation des détecteurs) joue un rôle important.

Nous dénombrons au moins trois phénomènes attachés à la nature des gaz résiduels présents dans la chambre objet et à la qualité du vide qui sont susceptibles d'influencer le comportement électrique de l'isolant sous irradiation électronique:

- Contamination : l'adsorption de molécules d'hydrocarbures, provenant souvent de l'huile des pompes, par la surface irradiée [2,3] réduit fortement le taux d'émission secondaire de l'isolant et modifie ainsi son aptitude à accumuler une charge piégée [4]. L'épaisseur de la couche de contamination dépend aussi bien de la nature de la surface de l'échantillon que de la dose reçue par la zone irradiée et de la pression résiduelle.
- Neutralisation par des espèces ioniques : un certain nombre d'espèces ioniques (atomes ou molécules) chargés positivement peuvent être attirés par l'échantillon chargé négativement (quand l'échantillon est dénudé) et ainsi compenser une fraction de la charge piégée [5,6].

- Réoxydation : une réduction par l'oxygène de l'atmosphère résiduelle du MEB (assistée par l'irradiation électronique), des lacunes d'oxygène présentes à la surface du matériau peuvent se présenter dans le cas spécifique des oxydes comme  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Ce mécanisme mis en évidence notamment par Guo [7] peut réduire, voire annihiler, l'aptitude de la surface de l'oxyde à se charger (à basse tension d'accélération).

Afin de limiter autant que possible la variation de l'ensemble de ces paramètres additionnels, nous nous sommes efforcés de maintenir à peu près la même qualité de vide (1 à  $5 \cdot 10^{-6}$  Torr) pour l'ensemble des expériences réalisées.

Concernant les phénomènes parasites, la présence d'une polarisation électrique au voisinage de l'échantillon peut avoir une influence importante sur son comportement électrique [8,9]. Pour cette raison la grille du détecteur d'électrons Torneley-Everhart ainsi que la jauge à vide sont systématiquement mises hors tension lors de la procédure d'injection et de mesure de la charge piégée dans un MEB.

Pour minimiser les perturbations induites par les parois de la chambre objet, nous avons opéré, chaque fois que cela a été possible, avec des distances de travail supérieures à 10 mm (souvent entre 20 et 30 mm). Ce choix nous permet de minimiser les effets de sources électroniques additionnelles (autres que le faisceau électronique primaire) provenant des parois de la chambre objet du MEB.

### **II.2.1.2 Choix du mode d'injection électronique et pré-irradiation**

Nous avons préféré le mode d'injection électronique par balayage d'une zone relativement large de l'échantillon à l'utilisation du mode en sonde fixe (mode d'injection usuel). Néanmoins pour éviter un éventuel effet lié au changement de fréquence de balayage sur la cinétique de la charge piégée et sur sa quantité, nous avons toujours utilisé le mode TV du MEB qui correspond à une fréquence de 50 images par seconde.

Les raisons de ce choix sont :

- ❖ Ralentissement de la cinétique de charge : le temps caractéristique de l'établissement de la charge piégée dépend de la densité de courant d'injection (qui est inversement proportionnelle à la surface irradiée). Pour un courant primaire donné, ce temps sera d'autant plus faible que la surface irradiée est grande. Par conséquent pour pouvoir suivre plus facilement l'évolution au cours de l'irradiation de la quantité de charges piégées, il est nécessaire de réduire au maximum la densité de courant d'injection.
- ❖ Réduction de la contamination : le phénomène de contamination de la surface de l'échantillon sous irradiation électronique dépend en partie de la dose (qui est inversement proportionnelle à la surface irradiée). Par conséquent, pour un courant

primaire donné, l'épaisseur de la couche de contamination est d'autant plus réduite que la surface irradiée est grande.

- ❖ Observation des images : la visualisation de l'évolution de l'image électronique (déformation, changement du contraste, etc.) pendant la procédure d'injection nous renseigne sur la stabilité de la charge lors de la mesure.

Concernant la pré-irradiation, il est évident qu'un isolant pré-irradié diffère du même isolant vierge de toute irradiation électronique, d'une part par les défauts supplémentaires que peut induire l'irradiation et, d'autre part, par la charge résiduelle qu'il peut contenir suite à cette irradiation. Pour s'affranchir de ce paramètre additionnel, chaque nouvelle mesure est conduite sur un nouvel exemplaire d'échantillon, identique en sa composition, son élaboration, son traitement ainsi que ses dimensions. Une étude expérimentale qui illustre l'influence de la pré-irradiation sur le comportement des isolants a été conduite au laboratoire par M. Belhaj dans sa thèse [10].

### II.2.1.3 Echantillons

Les caractéristiques aussi bien géométriques que physiques des échantillons utilisés sont regroupées dans le Tableau.I. Avant d'être soumis à l'irradiation électronique au sein du MEB, les échantillons subissent un nettoyage dans une cuve à ultrasons successivement dans l'alcool (ou l'acétone) puis dans de l'eau distillée.

	NATURE	GEOMETRIE ET DIMENSIONS	ORIGINE	PURETE	$\epsilon_r$	$\sigma(\Omega^{-1}m^{-1})$
<b>ECH.1</b>	Verre	Plaque : 10 X 10 X 1 mm	Goodfellow	(Voir texte)	4.5	$2.5 \cdot 10^{-11}$
<b>ECH.2</b>	SiO <sub>2</sub> (Quartz)	Plaque : 10X10X1 mm	Goodfellow	99.9 %	3.8	$1.5 \cdot 10^{-12}$
<b>ECH.3</b>	PMMA	Plaque : 10 X 10 X 1 mm	Goodfellow	(Voir texte)	2.6	$2 \cdot 10^{-15}$
<b>ECH.4</b>	SiO <sub>2</sub> (Silice)	Cylindre de diamètre 1mm et de hauteur 1 mm	Goodfellow	96 %	3.9	$10^{-12}$
<b>ECH.5</b>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (Saphir) Monocristallin	Cylindre de diamètre 9.5 mm et de hauteur 1 mm	Goodfellow	99.9 %	9	$10^{-14}$
<b>ECH.6</b>	Verre (CS77) (Haut - strain-point)	Cylindre de diamètre 10 mm et de hauteur 1 mm.	Saint-Gobain Recherche	(Voir texte)	4.4	$0.67 \cdot 10^{-12}$
<b>ECH.7</b>	Verre Sodocalcique (Planilux)	Cylindre de diamètre 10 mm et de hauteur 1 mm.	Saint-Gobain Recherche	(Voir texte)	6.47	$1.02 \cdot 10^{-11}$
<b>ECH.8</b>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Plaque : 5 X 5 X 1 mm	Goodfellow	96 %	10	$10^{-14}$

*Tableau.II.1: Description des différents échantillons utilisés dans cette étude.*

La majorité des échantillons nous a été fournie par la société Goodfellow qui, pour des raisons liées aux secrets de fabrication, ne nous a pas communiqué certaines informations, notamment sur les procédures d'élaboration et de conditionnement de ces matériaux. Certaines grandeurs notamment la constante diélectrique et la conductivité électrique ont été mesurées (ECH.1, ECH.2, ECH.6, ECH.7) au laboratoire à l'aide de la méthode de polarisation de l'échantillon métallisé sur ses deux faces opposées. La conductivité mesurée dans ce cas englobe la conductivité surfacique et celle du volume.

## II.2.2 Mesure du potentiel de surface

### II.2.2.1 Spectroscopie d'émission X

A chaque instant, le champ électrique crée, par la charge piégée dans l'isolant dans le vide de la chambre objet du MEB, influence les nouveaux électrons arrivant à la surface de l'échantillon en les déviant en dehors de la zone irradiée. Ces électrons subissent une décélération et pénètrent dans l'isolant avec l'énergie cinétique (ou énergie effective) :

$$E_{\text{eff}} = E_0 + e V_s \quad (\text{E.II.1})$$

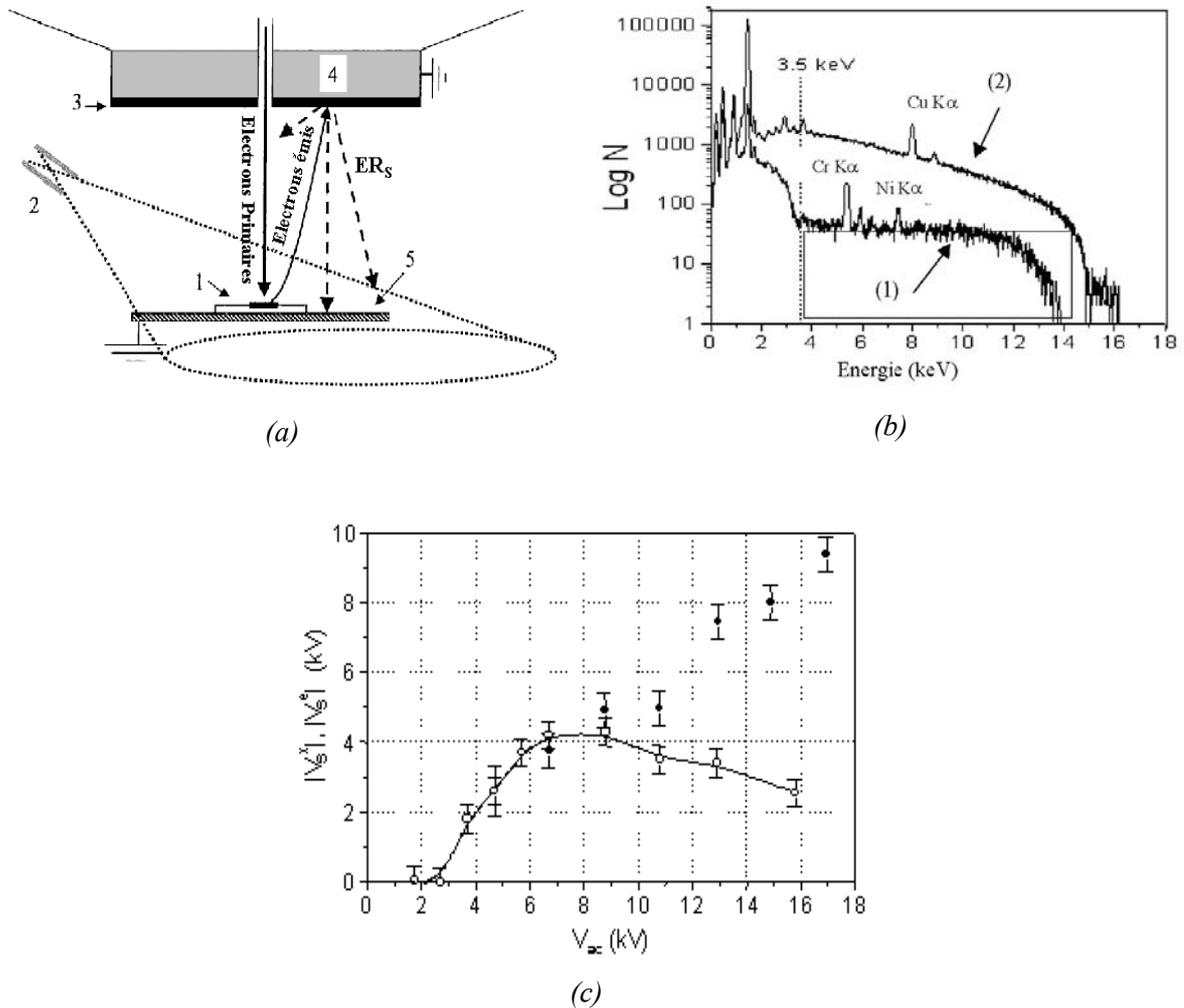
avec  $E_0$  énergie des électrons primaires,  $e$  charge élémentaire de l'électron et  $V_s$  potentiel de surface à l'état d'équilibre.

Cette décélération externe provoque le déplacement de la limite à hautes énergies du fond continu (limite de Duane-Hunt) du spectre X vers les basses énergies. Ce déplacement est souvent utilisé pour mesurer le potentiel de surface [11-14], mais cette mesure est souvent erronée car lorsqu'un isolant se charge sous irradiation électronique les électrons d'une source additionnelle parasite provenant des pièces polaires sont susceptibles de percuter les zones non chargées de l'échantillon ou du porte échantillon et par conséquent génèrent des photons X qui sont responsables de la distorsion du spectre X. Cette source est produite par les électrons secondaires ( $ES_s$ ) et rétrodiffusés ( $ER_s$ ) émis par l'échantillon, qui sont tout d'abord accélérés et focalisés sous l'effet du champ électrique externe (voir Fig.II.3 (a)) et ensuite rétrodiffusés par les pièces polaires. Ainsi, le rayonnement de freinage détecté sera composé de deux contributions, celle due au faisceau d'électrons primaires et celle due aux électrons de la source parasite. L'existence d'une telle source a été vérifiée expérimentalement par Belhaj *et al* [15]. Cette vérification consiste à utiliser deux échantillons présentant la même composition chimique mais radicalement différents par leur comportement électrique sous irradiation électronique. Les deux échantillons sont métallisés mais lors de l'irradiation le revêtement de l'un des échantillons est mis à la masse alors que celui de l'autre échantillon reste flottant. La valeur du potentiel de surface de l'échantillon avec le film métallique non connecté à la masse est  $V_s = -11,5$  kV (mesuré avec le

Spectromètre Electrostatique Toroïdal (SET), voir ci-dessous). Les spectres de photons X détectés lors de l'irradiation des deux échantillons sont représentés sur la Figure.II.1 (b). L'absence de la raie caractéristique  $\text{CuK}_\alpha$  sur le spectre de photons X (1) émis par la surface non mise à la masse indique que les électrons primaires ont été suffisamment ralentis pour avoir une énergie effective inférieure au seuil d'excitation du niveau K du cuivre, soit 8.994 keV. Par conséquent, la valeur du potentiel de surface doit être au moins égal à  $(16 - 8,994)$ , soit 7 kV, alors que celle déduite à partir de la position énergétique de la limite supérieure du rayonnement de freinage (autour de 13,7 kV) est égale à  $(16 - 13,7)$  kV soit 2,3 kV. En plus notons aussi la présence des raies  $\text{CrK}_\alpha$  et  $\text{NiK}_\alpha$  sur le spectre (1), alors que cette surface a la même composition chimique que la surface connectée à la masse dont le spectre des photons X indique qu'elle ne contient aucune trace de nickel ou de chrome. En raison de la position du collimateur du spectromètre X (Fig.II.1 (a)) qui ne lui permet pas de détecter les photons X émis par les pièces polaires, les deux raies  $\text{CrK}_\alpha$  et  $\text{NiK}_\alpha$  ne peuvent donc probablement provenir que du porte échantillon constitué essentiellement d'un acier contenant ces deux éléments. Ces raies ne peuvent en aucun cas être excitées par les électrons primaires, car les zones du porte échantillon susceptibles d'émettre ces rayons X sont largement distantes de la surface du cuivre mise à la masse.

L'ensemble de toutes ces constatations implique par conséquent l'existence d'une autre source électronique fortement délocalisée et conditionnée par l'existence d'un potentiel électrique négatif à la surface de l'échantillon (Fig.II.1 (b)). La partie du spectre (1) encadrée sur la figure II.1 (b) est vraisemblablement générée par cette source et non pas par le faisceau primaire.

Finalement la conséquence de la distorsion du spectre X est que la position de la limite supérieure en énergie du fond continu est supérieure à  $q(V_{ac} - |V_s|)$  et le potentiel de surface déduit de la spectroscopie d'émission X est alors sous-estimé (voir Fig.II.1 (c)). L'erreur  $|V_s^e| - |V_s^X|$  commise sur la mesure de ce dernier est d'autant plus grande que la valeur de la charge piégée (ou le potentiel de surface résultant) est grande. Par conséquent l'intensité de la source parasite est importante.



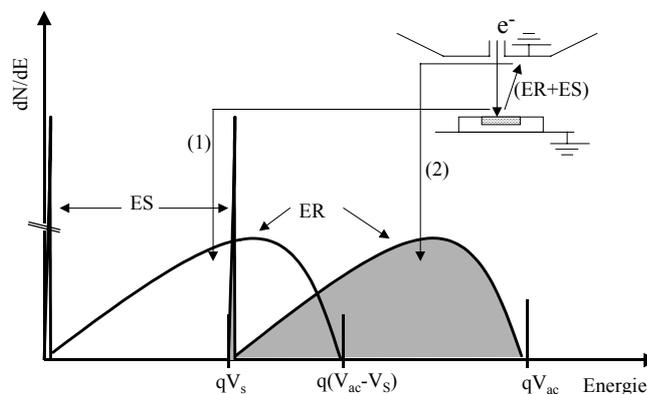
**Fig.II.1 :** (a): Illustration schématique du dispositif expérimental: (1) échantillon, (2) collimateur du spectromètre X, (3) disque (en carbone ou en bronze) en dessous des pièces polaires, (4) Spectromètre électronique toroïdal (ETS), (5) porte échantillon. Notons que la source d'électrons parasites (lignes en pointillés) irradie des zones éloignées de l'échantillon. (b): Spectres de photons X (en échelle logarithmique) détectés à une tension d'accélération  $V_{ac} = 16$  kV, un courant primaire  $I_0 = 10$  nA et surface irradiée  $250 \mu\text{m}^2$ : (1) pour la surface de cuivre couvrant  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (ECH.8) non connecté à la masse; (2) pour la surface de cuivre couvrant  $\text{Al}_2\text{O}_3$  connecté à la masse. Le temps d'acquisition est 100 s. (c): Mesure du potentiel de surface par spectroscopie d'émission de photons X ( $V_s^x$ ) (o) et par spectroscopie électronique ( $V_s^e$ ) (●) pour différentes tensions d'accélération. L'échantillon est le saphir (ECH.5). Le courant primaire est de 0,5 nA.

Les résultats (Fig.II.1 (c)) montrent clairement que les deux méthodes sont en bon accord pour des valeurs de tensions d'accélération relativement faibles ( $V_{ac} < 8$  kV), alors qu'une nette divergence apparaît entre les deux méthodes pour des valeurs de  $V_{ac} > 8$  kV.

## II.2.2.2 Spectroscopie électronique

### II.2.2.2.1 Principe

La spectroscopie électronique offre un moyen simple et direct pour mesurer le potentiel de surface d'un isolant sous irradiation électronique. Le principe de la mesure est illustré sur la figure.II.2. Si,  $V_s$ , est la valeur du potentiel induit à la surface de l'isolant par une charge piégée négative  $Q$ , les électrons primaires subissent une décélération dans le champ électrique  $E$  induit dans le vide par cette charge. Ainsi leur énergie d'atterrissage sur la surface de l'isolant se trouve diminuée de la quantité  $e|V_s|$ . Nous avons vu au chapitre.I (paragraphe. I.2.2) que la distribution énergétique des électrons émis était composée essentiellement d'électrons secondaires (ES) d'énergies inférieures à quelques dizaines eV ( $< 50$  eV) et d'électrons rétrodiffusés (ER) dont les énergies sont inférieures ou égales à l'énergie effective des électrons excitateurs ( soit ici  $e(|V_{ac}| - |V_s|)$ , où  $V_{ac}$  est la tension d'accélération des électrons primaires). Dès leur sortie dans le vide, les électrons émis subissent une accélération et gagnent progressivement l'énergie  $e|V_s|$ . Par conséquent, l'ensemble du spectre électronique subit un glissement de la quantité  $e|V_s|$  vers les hautes énergies. La mesure du déplacement en énergie du maximum de la distribution des électrons secondaires [16,17] ou éventuellement la mesure du déplacement des raies Auger caractéristiques [7,18,19] est couramment effectuée dans des appareils spécifiques, en général, à la spectroscopie électronique et en particulier, à la spectroscopie d'électrons Auger (AES). L'avantage majeur de cette méthode est la possibilité de mesurer de façon directe le potentiel de surface  $V_s$  sans avoir recours à la moindre hypothèse sur la distribution spatiale de la charge piégée. Dès lors, puisque la caractérisation des isolants est de plus en plus développée dans un MEB, nous avons pensé mettre en œuvre la spectroscopie électronique dans ce type d'appareil.



**Fig.II.2** : Illustration du principe de la mesure du potentiel de surface par spectroscopie électronique. Représentation schématique du spectre des électrons émis, (1) à leur sortie dans le vide (avant accélération), (2) après leur accélération électrique dans le vide.

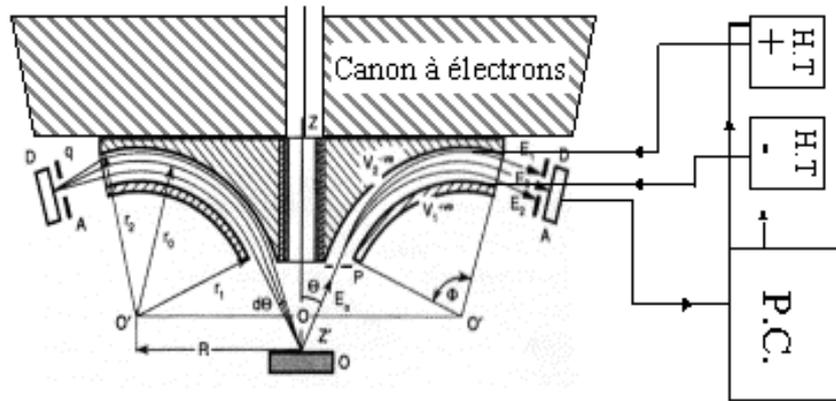
### **II.2.2.2 Choix du spectromètre**

Les difficultés pour mettre en œuvre cette méthode dans un MEB sont liées en grande partie au type de spectromètre généralement utilisé: Analyseur cylindrique (CMA). En effet, ce dernier présente d'une part, un fort encombrement rendant son adaptation à un MEB classique difficile voire impossible et d'autre part, une limite supérieure en énergie des électrons que ce dernier peut analyser n'excédant guère les 2 ou 3 keV. Par conséquent la mesure du potentiel de surface devient impossible dès que sa valeur dépasse cette limite (2 ou 3 kV). Ces valeurs du potentiel de surface sont bien en dessous de celles généralement observées pour certains isolants irradiés par des électrons dans les conditions habituelles d'utilisation d'un MEB. Une des alternatives au CMA est l'utilisation de grilles retardatrices disposées au-dessus de l'échantillon [20-22]. Cependant cette technique est elle aussi limitée à la mesure de potentiels de surface relativement faibles, car dès que les valeurs de  $V_s$  atteignent quelques kV, la forte polarisation de la grille est susceptible de modifier significativement le comportement électrique de l'isolant sous irradiation électronique. Pour s'affranchir de ces contraintes nous suggérons une troisième possibilité basée sur l'utilisation d'un spectromètre électrostatique toroïdal (SET) spécifiquement conçu pour s'adapter à un microscope électronique à balayage [23-25].

### **II.2.2.3 Description du spectromètre**

Le spectromètre utilisé est un prototype construit par l'équipe du professeur E.Rau de l'université de Moscou avec laquelle nous entretenons une collaboration scientifique. Ce spectromètre présente deux avantages majeurs par rapport au CMA. Le premier réside dans ses dimensions relativement réduites qui le rendent facilement adaptable à un MEB et le second dans la grande gamme d'énergie des électrons analysés entre 2 et 40 keV. Un schéma descriptif du spectromètre est représenté sur la figure.II.3.

Le spectromètre est monté sur les pièces polaires de telle sorte que son axe de révolution coïncide avec l'axe de la colonne du MEB. Les électrons primaires passent ainsi le long de cet axe sans subir aucune perturbation liée à la présence du spectromètre dont les faces externes sont mises à la masse. Seule une petite partie des électrons émis par l'échantillon (ES et ER) dans la fraction de cône délimité par les angles  $19^\circ$  et  $21^\circ$  par rapport à l'axe optique pénètrent dans le spectromètre par l'ouverture annulaire (P).



**Fig.II.3 :** Schéma en coupe (AA) du spectromètre électrostatique toroïdal (ETS) d'après [23] : Diaphragme annulaire d'entrée (P), diaphragme annulaire de sortie (A), détecteurs (D), (OZ) axe du spectromètre et axe du canon à électrons du MEB. L'alimentation des électrodes toroïdales en tension (H.T) est contrôlée par un PC.

Les électrodes toroïdales inférieures et supérieures du spectromètre sont portées respectivement à un potentiel positif  $V_1 = U$  et négatif  $V_2 = -U$  de façon que seuls les électrons d'énergie spécifique  $E$  donnée par l'expression (E.II.2) peuvent sortir par le diaphragme annulaire de sortie (A) du spectromètre pour atteindre ensuite le détecteur (D) et générer ainsi un signal.

$$E \approx e \frac{(r_1 + r_2)}{2(r_2 - r_1)} U \quad \text{(E.II.2)}$$

Les différents paramètres géométriques ( $r_1, r_2$ , etc.) du spectromètre sont donnés dans la tableau.II.2.

Paramètre	Valeur
Angle $\Phi$ (°)	90
Rayon intérieur des électrodes $r_1$ (mm)	16
Rayon extérieur des électrodes $r_2$ (mm)	18
Rayon du tore (mm)	20
Distance entre la surface de l'échantillon et le diaphragme d'entrée (mm)	8
Angle moyen d'entrée du spectromètre $\theta$ (°)	20
Résolution en énergie (%)	1
Dimensions du spectromètre (mm)	$\varnothing$ 100 x 25

**Tableau.II.2:** Paramètres du spectromètre électrostatique toroïdal

Le détecteur est une couronne formée de vingt cristaux de silicium associés en jonctions p-n, qui assurent une conversion et une pré-amplification des électrons détectés en courant avec une très bonne linéarité dans une gamme d'énergies allant de 2 à 40 keV.

Une étude expérimentale des fonctions réponses du détecteur et du spectromètre a été menée antérieurement par Berger et al [26] et montre que la première est proportionnelle à  $E - E_{\text{seuil}}$  et la deuxième est proportionnelle à  $E$  ( $E_{\text{seuil}}$  est l'énergie seuil du semi-conducteur).

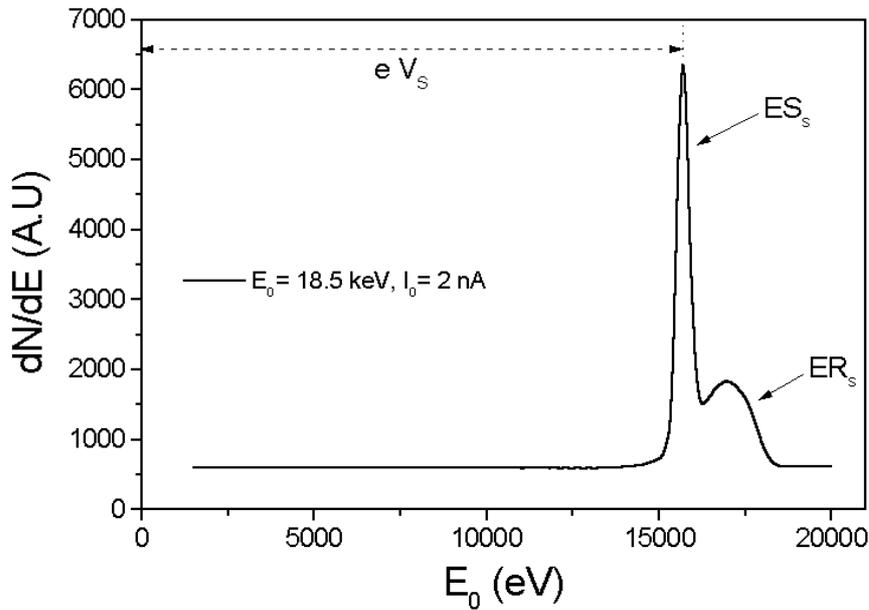
Afin que le signal  $S(E)$  enregistré à la sortie des détecteurs soit effectivement proportionnel au spectre des électrons émis dans la fraction d'angle solide  $[19^\circ, 21^\circ]$ , il convient donc de le diviser par  $(E - E_{\text{seuil}}).E$ .

Le spectromètre électrostatique toroïdal a été initialement conçu pour l'étude de matériaux conducteurs ou semi-conducteurs. Son application la plus importante est sans doute la microtomographie électronique des circuits intégrés [23,27]. L'extension de son domaine d'application à l'étude du comportement des isolants soumis à une irradiation électronique est prometteuse mais encore très récente. Sa meilleure utilisation dans ce dernier domaine passe inconditionnellement par la compréhension de divers aspects expérimentaux liées à son emploi en présence d'une charge piégée. En effet, les travaux récents du laboratoire [25] ont montré que le champ électrique externe développé dans le vide de la chambre objet du MEB, est notamment responsable de la modification des trajectoires des électrons émis et par conséquent de l'efficacité de collection du spectromètre.

#### II.2.2.2.4 Exemple de spectre acquis avec le SET

La figure.II.4 donne un exemple de spectre acquis pour le saphir (ECH.5) sous une tension d'accélération de 18.5 kV et un courant primaire de 2 nA. Ce spectre présente deux pics, le premier est associé au maximum de la distribution des électrons secondaires, la valeur du potentiel de surface est simplement déduite de la position du maximum de cette distribution. Le deuxième pic est associé au maximum de la distribution des électrons rétrodiffusés dont la limite supérieure en énergie correspond à l'énergie des électrons primaires.

L'ensemble des mesures du potentiel de surface effectuées par le SET sera exploité dans le prochain chapitre pour mettre en évidence la divergence systématique entre nos résultats expérimentaux et les prévisions de l'approche conventionnelle et pour déterminer l'énergie critique  $E_{\text{CII}}$ .



*Fig.II.4 : Spectre des électrons émis par un échantillon de Saphir sous une tension d'accélération de 18.5 kV et un courant primaire de 2 nA, surface irradiée  $1600 \mu m^2$ .*

#### II.2.2.2.5 Limites de la méthode

Cette technique présente plusieurs limites. La première concerne la sensibilité de la méthode, en effet la valeur minimale du potentiel de surface négatif mesurable par le spectromètre toroïdal est de 2 kV. Cette valeur limite est principalement due comme nous l'avons auparavant indiqué (Paragraphe.II.2.2.2.3) au type de détecteur utilisé. La deuxième limite est liée à la dynamique de formation d'une charge piégée dans un isolant. Dans la gamme d'énergies et des courants utilisées le temps d'acquisition d'un spectre électronique est de l'ordre de 20 s, ce temps est relativement lent devant la cinétique de charge. La dernière limite concerne l'incertitude sur la détermination du potentiel de surface  $V_s$  qui liée à l'élargissement de la distribution des électrons secondaires. La valeur de  $V_s$  est déterminée à 0.5 kV près.

### II.2.3 Mesure de la charge piégée

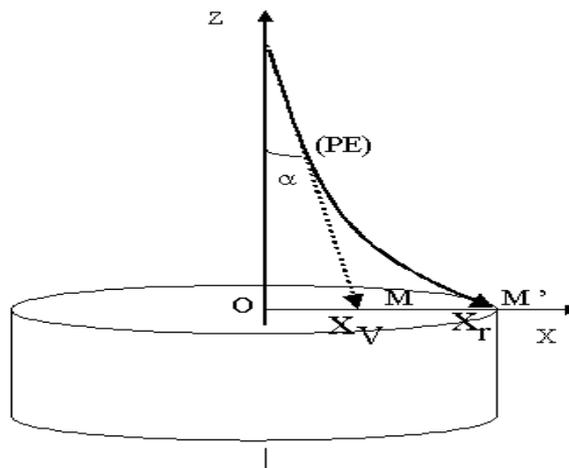
#### II.2.3.1 Méthode basée sur la déflexion du faisceau primaire

Notre travail porte essentiellement sur la mise au point de la méthode d'influence et son utilisation pour étudier le comportement d'un isolant sous irradiation électronique. Les autres méthodes décrites dans ce chapitre et en particulier la méthode basée sur la déflexion du faisceau primaire sont mentionnées à titre de comparaison d'une part et pour calibrer notre méthode d'autre part. Ainsi la méthode basée sur la déflexion du faisceau primaire qui

nous sert également pour corriger l'effet de la déflexion du faisceau primaire sur le courant d'influence sera amplement décrite ci-dessous.

### II.2.3.1.1 Principe

Dans le cas des matériaux isolants irradiés, le champ électrique perturbateur est une conséquence directe de la charge piégée dans ces matériaux. La déflexion du faisceau primaire qui en résulte est schématiquement représentée sur la figure II.5. Cette déflexion est responsable de la distorsion de l'image électronique qui porte donc des informations quantitatives et qualitatives sur l'état de charge de l'isolant. Ainsi, à partir de cette distorsion, il est possible de déterminer la quantité de charges piégées ainsi que le potentiel de surface  $V_s$ , correspondant. Dans le cas extrême de la déflexion totale du faisceau primaire, la méthode la plus courante est incontestablement la méthode miroir [28,29,30,31,32]. Cette méthode consiste à appairer les deux étapes (injection puis mesure) par contre la méthode de déflexion du faisceau électronique nous offre la possibilité d'opérer en une seule et unique étape (injection et mesure). Ainsi nous pouvons suivre l'évolution de la charge piégée à tout instant de l'irradiation suite à la déformation de l'image produite sous l'effet de la formation d'une charge piégée. La détermination de la quantité de charge piégée est basée sur une procédure de comparaison de la déflexion expérimentale avec la déflexion simulée en adoptant comme paramètre ajustable la valeur de la charge piégée. Cette procédure est basée sur le calcul de trajectoires électroniques en utilisant une distribution de charge uniforme.



**Fig.II.5** : Déflexion du faisceau primaire induite par une distribution de charge uniforme à la surface de l'échantillon.

### II.2.3.1.2 Calcul de trajectoires électroniques

Pour une distance de travail donnée, une tension d'accélération quelconque, le calcul du champ électrique E créé par la charge piégée requiert non seulement la valeur de la charge piégée, Q, mais aussi la connaissance de sa distribution spatiale. Q est supposée uniformément distribuée à la surface de l'échantillon de forme cylindrique. La distribution spatiale de charge est assimilée à un disque plan uniformément chargé et situé juste en dessous de la surface de l'échantillon.

L'expression du potentiel électrostatique développé dans le vide au dessus d'une distribution de charge uniformément répartie sur un disque [30,33] est :

$$V(x) = \frac{Q}{\pi\epsilon_0(\epsilon_r + 1)a^2} \left[ \sqrt{a^2 + z^2} - z \right] - \frac{Q \cdot x^2 (a^2 + z^2)^{-3/2}}{4\pi\epsilon_0(\epsilon_r + 1)} \quad (\text{E.II.3})$$

où a est le rayon du disque chargé,  $\epsilon_0$  la permittivité électrique du vide et  $\epsilon_r$  la constante diélectrique de l'échantillon. x est la distance d'un point P par rapport à l'axe z (voir Figure.II.6).

Les composantes selon les axes (ox) et (oz) du champ électrique sont données par :

$$E_x = - \frac{\partial V(x, z)}{\partial x} \quad (\text{E.II.4})$$

$$E_z = - \frac{\partial V(x, z)}{\partial z} \quad (\text{E.II.5})$$

Etant donné l'invariance du champ électrique autour de l'axe de symétrie (oz), le calcul des trajectoires électroniques est effectué dans le plan (x,z). Le calcul dans tout autre plan perpendiculaire à la surface du porte échantillon se déduit du premier par simple rotation autour de l'axe (oz).

Si M de coordonnées  $(x_v, 0)$  est la position du point visé sur le porte échantillon par le faisceau primaire à sa sortie du diaphragme objectif, l'angle de balayage  $\alpha$  est donné par l'expression suivante :

$$\alpha = \text{ArcTan}\left(\frac{x_v}{L}\right) \quad (\text{E.II.6})$$

Où L est la distance qui sépare le dernier diaphragme objectif de la surface du porte échantillon.

Les composantes de la vitesse initiale des électrons primaires (au niveau du diaphragme objectif) selon respectivement les axes (ox) et (oz) sont données par les expressions suivantes :

$$V_x^0 = \sqrt{\frac{2eV_{ac}}{m_e}} \sin \alpha \quad (\text{E.II.7})$$

$$V_z^0 = -\sqrt{\frac{2eV_{ac}}{m_e}} \cos \alpha \quad (\text{E.II.8})$$

Où  $m_e$  représente la masse de l'électron ( $9.1 \cdot 10^{-31}$  kg),  $V_{ac}$  la tension d'accélération et  $e$ , la charge élémentaire ( $e = 1.6 \cdot 10^{-19}$  C).

En s'appuyant sur la relation fondamentale de la dynamique, il est possible, connaissant les composantes  $V_x^0$  et  $V_z^0$ , de déduire par itérations successives les composantes  $V_x^i$  et  $V_z^i$  à tout instant,  $t = i \Delta t$  où  $i$  est l'indice de l'itération, et  $\Delta t$  le temps écoulé entre deux itérations. La relation qui lie les composantes de la vitesses entre deux étapes successives est donnée par l'expression suivante :

$$\begin{pmatrix} V_x^{i+1} \\ V_z^{i+1} \end{pmatrix} = \frac{-e \Delta t}{m_e} \begin{pmatrix} E_x(x^i, z^i) \\ E_z(x^i, z^i) \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} V_x^i \\ V_z^i \end{pmatrix} \quad (\text{E.II.9})$$

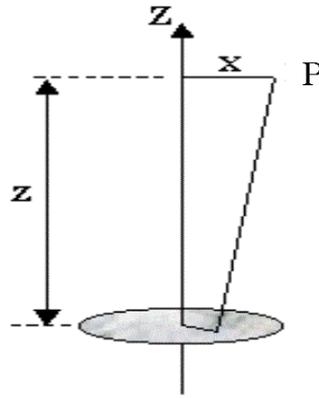
Où,  $E_x(x^i, z^i)$  et  $E_z(x^i, z^i)$  sont les composantes du champ électrique selon respectivement les axes (ox) et (oz) (voir les équations E.II.4 et E.II.5).

Les coordonnées  $(x^{i+1}, z^{i+1})$  des électrons primaires sont alors données par:

$$\begin{pmatrix} x^{i+1} \\ z^{i+1} \end{pmatrix} = \Delta t \begin{pmatrix} V_x^{i+1} \\ V_z^{i+1} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x^i \\ z^i \end{pmatrix} \quad (\text{E.II.10})$$

Ces dernières valeurs sont réintroduites dans l'expression (E.II.9) la procédure d'itérations est poursuivie jusqu'au moment où les électrons primaires arrivent à  $z = 0$ .

Ainsi nous pouvons associer à tout point de coordonnée  $x_v$  initialement visé par le faisceau primaire (position apparente sur l'image), un point d'impact réel  $M'$  de coordonnées  $(x_r, 0)$ . Le signal correspondant à ce dernier est alors affecté au point visé de coordonnée  $x_v$  et par conséquent les dimensions apparentes de l'échantillon sont réduites.

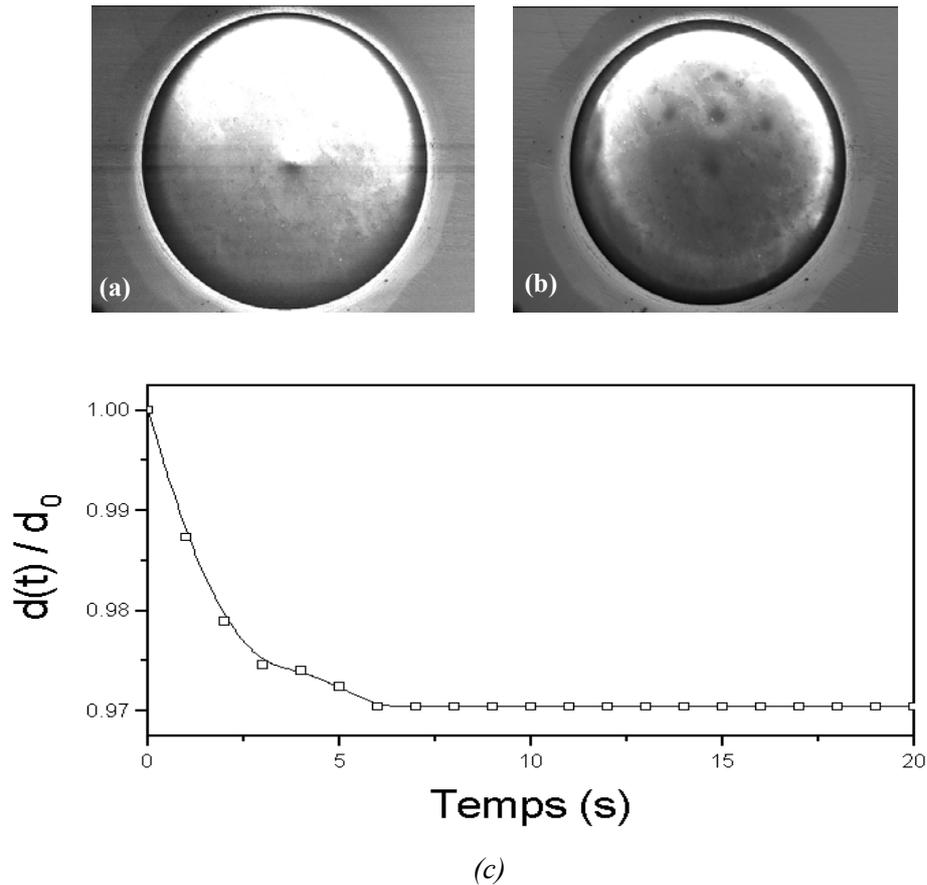


*Fig.II.6 : Champ électrique créée en un point P à une distance x de l'axe z.*

### II.2.3.1.3 Application : cas du Verre amorphe (ECH.1)

Pour pouvoir mesurer facilement la déformation de l'image électronique de l'échantillon associée à la déflexion du faisceau primaire, la surface de l'échantillon irradiée a été choisie sous forme de disque (déformation uniforme). Les images sont acquises au cours de l'irradiation à l'aide d'une carte d'acquisition (MIRO PC-TV) permettant la capture d'images au format  $340 \times 320$  pixels au rythme de 25 images par seconde. Les deux images (a) et (b) de la figure.II.7 ont été acquises respectivement au début de l'irradiation et à la saturation de la charge dans le cas du verre. Notons que les détails observés au milieu de l'image (b) sont dus à ce qu'on a appelé l'effet pseudo-miroir [34]. On constate une diminution du diamètre apparent de l'échantillon en fonction de l'augmentation de la quantité de charge piégée, avec un facteur de réduction  $R = d(t)/d_0$ . Plus la quantité de charge piégée est grande plus le facteur R est petit comme le montre clairement la figure.II.7 donnant l'allure de ce facteur au cours de l'irradiation. L'aberration visuelle correspondant aux images obtenues s'explique en tenant compte du champ électrique induit dans le vide de la chambre objet du MEB par la charge piégée. Ce champ est suffisamment grand pour provoquer la déflexion du faisceau primaire, par conséquent pour un angle de balayage  $\alpha$  donné, le signal des électrons secondaires et rétrodiffusés émis par un « point » M' situé au bord de l'échantillon qui diffère du point M initialement visé par le faisceau primaire (voir Fig.II.5) sera affecté au pixel associé au point M sur l'écran de visualisation du MEB.

Le facteur de réduction R obtenu à l'état de saturation (pour une tension d'accélération de 13.7 kV et un courant primaire de 2 nA) est égal à 0.97, la quantité de charge piégée correspondante est déduite en utilisant un programme de simulation des trajectoires électroniques dont la procédure est décrite ci-dessus. Cette quantité de charge  $Q_s$  est de 2.07 nC. Ainsi le phénomène de déflexion associé à la procédure de calcul de trajectoires électroniques constitue un outil intéressant capable non seulement de déterminer la quantité de charges piégées mais également son évolution au cours de l'irradiation.



**Fig.II.7 :** (a) : Image de l'échantillon au début de l'irradiation ; (b) : image de l'échantillon à la saturation. Notons que les détails observés au milieu de (b) sont le résultat de l'effet pseudo-miroir [34]. La variation du rapport  $d(t)/d_0$  est aussi représentée sur (c). L'état d'équilibre est atteint à l'instant  $t = 7s$ .

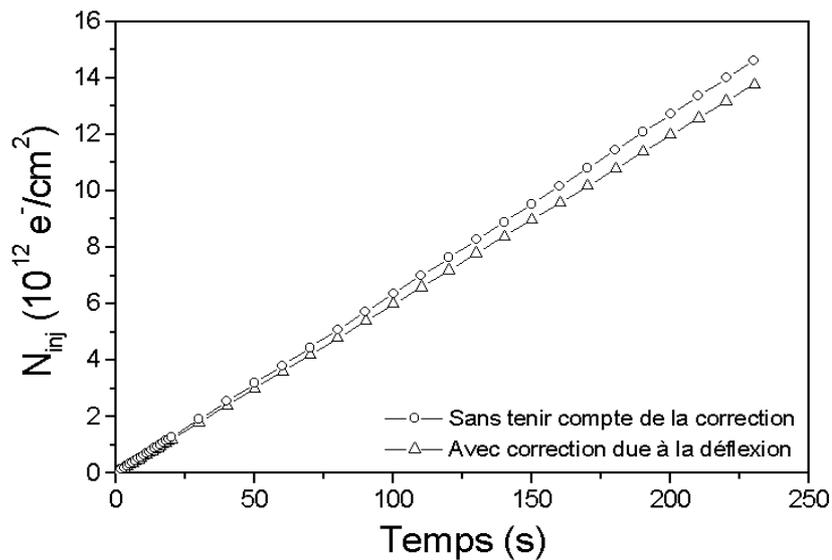
#### II.2.3.1.4 Effet de la déflexion sur la densité surfacique des électrons injectés

Afin d'étudier la cinétique de charge pendant la phase de l'irradiation, le flux des électrons injectés dans l'échantillon doit être évalué en tenant compte de la déflexion du faisceau électronique primaire durant cette phase. En effet, la charge piégée sous l'effet de l'irradiation électronique induit une force Coulombienne répulsive (charge négative) qui est responsable de la déflexion du faisceau électronique primaire produisant une distorsion dynamique de l'image électronique secondaire (voir Fig.II.7). Cette distorsion provoque un changement de la densité surfacique instantanée des électrons injectés dans l'échantillon irradié. En supposant que l'aire irradiée soit uniformément balayée par le faisceau électronique, la densité surfacique instantanée des électrons injectés,  $N_{inj}(t)$  en fonction du temps est donnée par:

$$N_{inj}(t) = \frac{I_0}{eSd_0^2} \int_0^t d^2(t)dt \quad (\text{E.II.11})$$

où S est la surface totale balayée ( voir Figure.II.7 (a), échantillon (blanc) et pièce métallique (noir)),  $I_0$  est le courant primaire,  $d_0$  est le diamètre de l'échantillon à l'instant  $t = 0$  (charge négligeable) et  $d(t)$  est le diamètre instantané (apparent) de l'échantillon.

La Figure.II.8 représente la comparaison entre la densité surfacique donnée par l'équation (E.II.11) et celle ne prenant pas en compte la correction due à la déflexion (pour  $R = 1$  ;  $N_{inj} = I_0.t/eS$ ). Cette figure montre clairement qu'à cause de la déflexion du faisceau électronique, la densité surfacique des électrons injectés dans l'échantillon est moindre. Par conséquent l'établissement de l'état d'équilibre de la charge nécessite un temps plus important en présence de la déflexion. L'influence de la correction de l'effet de la déflexion sur la cinétique de la charge piégée sera discutée dans le chapitre III.



**Fig.II.8 :** Densité surfacique des électrons injectés au cours du temps de l'irradiation à une tension d'accélération de 13.7 kV et un courant primaire de 2nA.

### II.2.3.1.5 Limite de la méthode de déflexion du faisceau primaire

La mesure de la charge piégée basée sur l'observation de la distorsion de l'image électronique due à la déflexion du faisceau électronique primaire présente certaines limites qui concernent la distribution de charge d'une part et l'impossibilité de suivre la décharge d'autre part. En effet les trajectoires des électrons primaires ont été simulées en supposant que la charge piégée est uniformément distribuée à la surface de l'échantillon, cependant la distribution réelle peut s'écarter de celle supposée et peut subir même une modification sous l'effet de la charge elle même. Concernant le processus de décharge, le principe même de la

méthode qui nécessite un faisceau primaire ne permet pas d'avoir des informations au cours de ce processus pendant lequel le faisceau est interrompu.

### II.2.3.2 Méthode basée sur la mesure du courant d'influence

#### II.2.3.2.1 Principe

Quand on place une charge électrique,  $Q$ , au voisinage d'un conducteur dont le potentiel est nul (mis à la masse), une charge  $Q_{im}$  proportionnelle à  $Q$  et de signe opposé se développe sur la surface de ce conducteur (voir chapitre.I, section.I.4), tout en gardant un potentiel électrique nul. L'établissement de  $Q_{im}$ , s'accompagne d'une circulation d'électrons du conducteur vers la masse dans le cas où  $Q$  est négative et dans le sens opposé dans le cas où  $Q$  est positive. La variation de la charge dans le temps induit donc un courant,  $I_{inf}$ , appelé courant d'influence proportionnel à  $dQ/dt$  entre le conducteur et la masse. Le coefficient de proportionnalité,  $K$ , est communément appelé le coefficient d'influence.

En s'appuyant sur les considérations électrostatiques, Song [35,36] et ultérieurement différents auteurs [37,38,39] ont proposé l'utilisation du courant d'influence pour mesurer la charge piégée. En effet dans le contexte d'un MEB,  $Q$  est la charge piégée dans l'isolant et le porte échantillon joue le rôle du conducteur mis à la masse. Par conséquent, si la variation au cours du temps de  $I_{inf}$  et le coefficient  $K$  sont connus, la charge piégée peut être déduite à tout instant  $t$  à partir de la relation suivante :

$$Q = \frac{1}{K} \int_0^t I_{inf} dt + Q_0 \quad (\text{E.II.12})$$

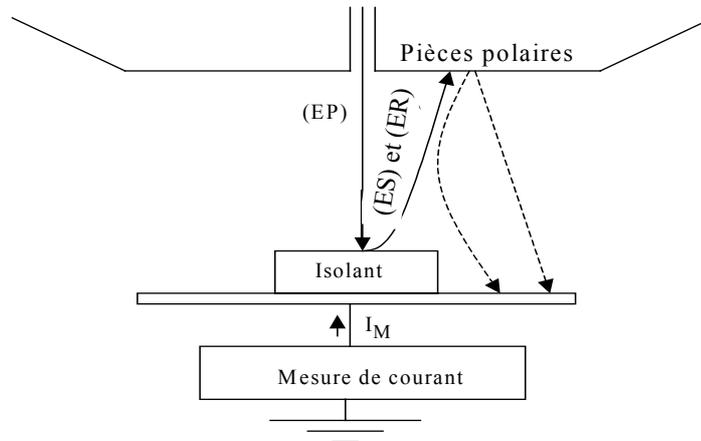
où  $Q_0$  est une éventuelle charge présente dans l'isolant avant l'irradiation. Cette charge résiduelle est considérée comme nulle car à chaque irradiation correspond un échantillon sans charge initiale (non préirradié).

#### II.2.3.2.2 Dispositif expérimental classique

##### II.2.3.2.2.1 Principe

Le dispositif expérimental classique présenté sur la figure.II.9 consiste à fixer l'isolant étudié directement sur le porte échantillon métallique du MEB relié à la masse à travers un pico-ampèremètre. Lors de l'irradiation électronique de cet isolant un courant,  $I_M$ , circule entre le porte échantillon et la masse. L'hypothèse adoptée lors de la détermination de la charge piégée  $Q$  assimile le courant de masse  $I_M$  au courant d'influence  $I_{inf}$ . Dans ce cas, on considère que l'épaisseur de l'échantillon est largement supérieure à la profondeur de pénétration des électrons primaires de telle sorte que tout phénomène de transport de charge entre le conducteur et l'isolant soit négligeable. Ainsi il s'avère nécessaire de discuter

la validité de la substitution de  $I_M$  à  $I_{inf}$  dans l'expression (E.II.12) dans le cas de l'utilisation du dispositif expérimental classique.



**Fig.II.9 :** *Mesure de la charge piégée par le courant d'influence : dispositif expérimental usuel.*

#### II.2.3.2.2 Effets perturbateurs et conséquences

Nous avons souligné l'importance du courant électronique total, émis par les pièces polaires dans le cas du spectre d'émission X notamment (voir paragraphe.II.2.2.1). En effet dès que le potentiel de surface induit par l'irradiation dépasse quelques keV, les électrons émis par l'échantillon subissent d'une part une accélération et une focalisation (focalisation d'autant plus importante que l'énergie des électrons émis est faible) sur les pièces polaires de la chambre objet du MEB et d'autre part une rétrodiffusion sur ces mêmes pièces.

Les électrons rétrodiffusés par les pièces polaires constituant la source additionnelle peuvent tomber sur le porte échantillon métallique et contribuent faussement aux mesures du courant d'influence. L'intensité de cette source peut atteindre une valeur de plus de 30% de l'intensité du courant primaire [10,15].

Le deuxième effet qui perturbe la mesure du courant d'influence dans le cas d'un dispositif de mesure classique est le courant de fuite. En plus du courant de fuite volumique éventuel, il n'est pas possible d'exclure systématiquement le fait qu'un certain nombre d'électrons injectés à la surface de l'isolant puissent être évacués vers la masse (porte échantillon) le long sa surface puisque que la conductivité de la surface est naturellement élevée par rapport à celle du volume [40]. Ce fait peut s'expliquer d'une part par le désordre provoqué par la procédure de polissage et d'autre part par la prédominance des défauts ponctuels induits notamment par la diffusion des impuretés lors des étapes d'élaboration du matériaux. De plus, dans les conditions du vide d'un MEB classique (Pression variant de  $10^{-4}$  à  $10^{-6}$  Torr), l'inévitable formation d'une couche de contamination qui peut produire une conduction significative [41].

En tenant compte de l'ensemble des problèmes liés à l'utilisation du dispositif classique (Figure.II.9) le courant de masse  $I_M$  est le résultat non seulement du courant d'influence  $I_{inf}$  mais aussi de deux composantes  $I_L$  (courant de fuite) et  $I_{\sigma}'$  (courant induit par la source additionnelle) également dépendantes comme  $I_{inf}$  de la charge piégée (et par conséquent du temps). L'assimilation du courant de masse au courant d'influence, puis son utilisation directe dans l'expression (E.II.12) peut conduire non seulement à une surestimation importante de la quantité de charge piégée mais aussi à altérer les informations relatives à la cinétique de la charge piégée. Nous devons donc chercher à isoler la composante  $I_{inf}$  des autres composantes  $I_L$  et  $I_{\sigma}'$  formant le courant de masse.

Pour remédier aux problèmes liés à l'utilisation du dispositif expérimental classique, des modifications ont été apportés lors du travail de thèse de Belhaj [10]. Néanmoins le dispositif modifié n'était pas optimisé pour éliminer de façon significative la contribution de la source additionnelle d'une part et ne permettait pas de mesurer en plus du courant d'influence, le courant de fuite d'autre part. Nous allons présenter dans le paragraphe suivant ce dispositif qui tient compte de l'ensemble de ces considérations.

### **II.2.3.2.3 Nouveau dispositif expérimental**

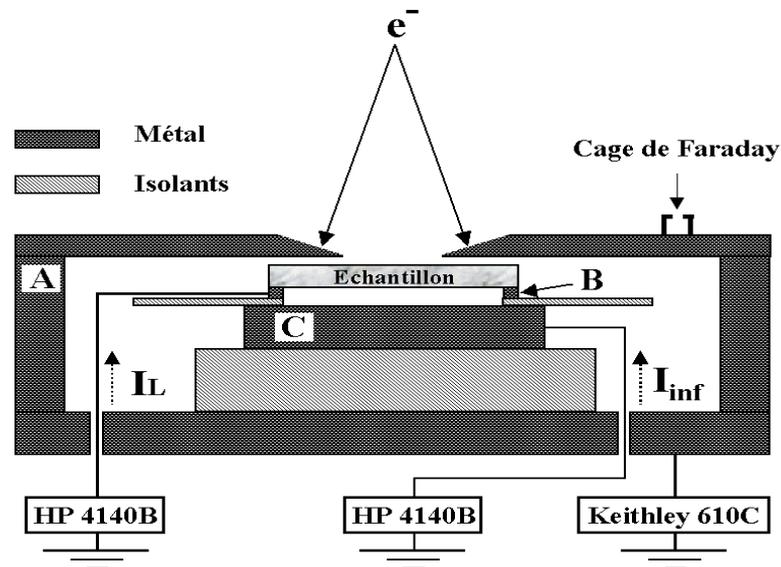
#### **II.2.3.2.3.1 Description**

Le dispositif expérimental proposé est représenté sur la Fig.II.10. Ce dispositif n'est pas fondamentalement différent de celui proposé par Belhaj [10]. Les modifications importantes résident essentiellement dans l'addition d'une électrode (plaque métallique) destinée à la mesure du courant de fuite,  $I_L$ , et dans le fait que l'échantillon étudié soit placé à l'intérieur du dispositif pour éviter de recevoir les électrons provenant de la source additionnelle. Ce dispositif, installé dans le MEB, consiste en une enceinte cylindrique en métal (fabriquée en laiton) munie d'un trou circulaire de diamètre 3.8 mm sur sa surface supérieure. Cette enceinte liée à la masse à travers un pico-ampermètre (Keithley 610 C) a pour rôle d'éliminer toute source d'électrons parasites (électrons secondaires et rétrodiffusés émis par les parois de la chambre objet du MEB) qui peuvent être collectés par les électrodes ((B) et (C)) et entraînent par conséquent une perturbation de la mesure des courants.

La plaque en cuivre (C), jouant le rôle d'une électrode destinée à la mesure de la charge image  $Q_{im}$  (mesure du courant d'influence  $I_{inf}$ ), est placée au milieu de l'enceinte métallique (A) sur un disque isolant en téflon permettant d'éviter tout contact électrique entre (C) et (A).

L'électrode (B), destinée à la mesure du courant de fuite  $I_L$ , est une plaque également en cuivre d'épaisseur 0.5 mm, de dimensions latérales (1cm x1cm) et d'une ouverture carrée de 0.9 cm x 0.9 cm (ou circulaire de diamètre 0.9 cm). Cette plaque (B) est placée au-dessus

de (C) sur une feuille de Téflon d'épaisseur 0.3 mm possédant la même ouverture carrée que celle de (B) (voir figure II.10). La feuille de téflon assure l'isolation électrique entre (B) et (C).



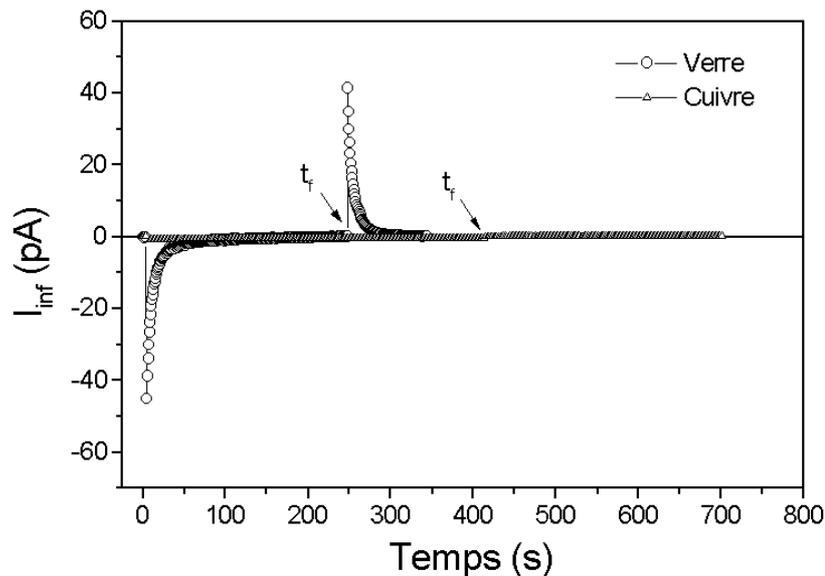
*Fig.II.10 : Schéma descriptif du dispositif expérimental pour la mesure des courants d'influence et de fuite. Notons que les flèches en discontinu définissent le sens positif du courant.*

L'échantillon qui repose sur la plaque (B) avec un contact électrique intime assuré par la métallisation de la périphérie de sa surface inférieure (film d'Or de 0.5 mm de large et d'épaisseur 15 nm) est placé en dessous de l'ouverture circulaire de l'enceinte métallique (A). La surface de l'échantillon n'est pas en contact avec l'enceinte métallique (A), une distance de 0.5 mm les sépare. La surface de contact (métallisée) de l'échantillon correspond exactement à la surface de l'électrode (B) (voir Figure.II.10). La partie non métallisée de la surface inférieure de l'échantillon est séparée de la plaque (C) par un espace vide de 0.8 mm. Les électrodes (B) et (C) connectées chacune à un pico-ampère (HP 4140 B) interfacé à un micro-ordinateur (P.C) permettent de mesurer respectivement le courant de fuite  $I_L$  et le courant d'influence  $I_{inf}$ .

Les avantages du dispositif expérimental réalisé par rapport aux dispositifs utilisés par ailleurs [35,42] résident d'une part dans le fait que l'électrode de mesure (C) ne soit pas en contact avec l'échantillon, ce qui permet de mesurer uniquement le courant électrostatique d'influence (on évite la superposition des courants de conduction induit par irradiation électronique et d'influence comme c'est le cas dans les dispositifs classiques). D'autre part, l'adjonction d'une deuxième électrode (B) qui est en contact avec l'échantillon et qui permet de mesurer le courant de fuite résultant du processus de conduction à travers le volume ou/et la surface de l'échantillon parmi d'autres processus.

### II.2.3.2.3.2 Tests préliminaires

Les tests préliminaires concernent la mesure du courant d'influence. Le test consiste à vérifier que le courant mesuré est bien un courant d'influence et non un courant transitoire dû tout simplement à la mise en route de l'irradiation. Cette vérification a été réalisée en comparant les courants mesurés sur un échantillon conducteur (cuivre) et sur un échantillon isolant (verre).



**Fig.II.11** : Variation du courant d'influence en fonction du temps à une tension d'accélération de 13.7 kV et un courant primaire de 2nA pour un échantillon de verre et un échantillon de cuivre.  $t_f$  est l'instant où l'irradiation est arrêtée.

Les résultats obtenus sont représentés sur la figure.II.11. Ces résultats montrent que le courant mesuré dans le cas d'un métal reste nul alors que dans le cas d'un isolant le courant est non nul et est transitoire pendant et après l'irradiation. Notons que dans les dispositifs où l'échantillon métallique est en contact avec l'électrode de mesure, le courant mesuré correspond à  $I = I_0 (1 - \sigma)$  alors que dans notre cas il est nul (à cause de l'absence de charges piégées).

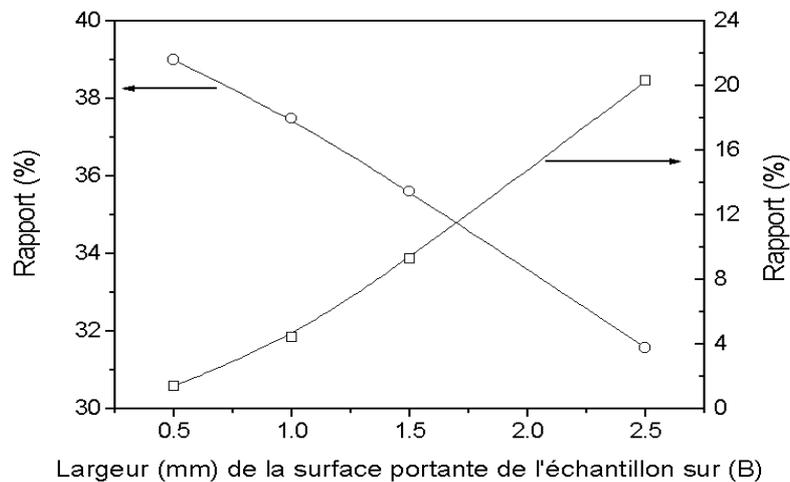
### II.2.3.2.3.3 Optimisation du dispositif

L'optimisation consiste d'une part à réduire le plus possible toutes les sources parasites et d'autre part de définir la géométrie qui donne des signaux utiles (courant d'influence mesuré par (C) et le courant de fuite mesuré par (B)) les plus significatifs possibles. En effet, pour réduire l'influence des électrons parasites provenant des parois de la chambre objet du MEB, il est nécessaire d'utiliser des distances de travail de l'ordre de 20 à 30 mm. La jauge à vide qui peut être considérée comme une source de particules

chargées pouvant interférer avec la mesure de la charge, doit être systématiquement mise hors tension lors de l'expérience.

Par ailleurs, le dispositif est muni de deux électrodes, l'une (C) ne doit mesurer que le courant d'influence et l'autre (B) ne doit mesurer que le courant de fuite. Cependant l'électrode (B) peut subir également l'influence de la charge piégée et recueillir par conséquent un courant d'influence. Il est donc nécessaire de minimiser ce dernier. Le courant d'influence mesuré par (C) doit être quand à lui le plus important possible. Ainsi pour satisfaire ces deux conditions la surface irradiée ainsi que la surface de contact de l'échantillon avec (B) doivent être optimisées.

Pour ce faire, des calculs électrostatiques utilisant le programme Quikfield [43] basé sur la méthode des éléments finis ont été effectués pour déterminer la charge image développée sur l'électrode (B) en fonction des dimensions de cette électrode. Les résultats obtenus sont représentés sur la Figure.II.12. Ces résultats montrent clairement que la charge image induite sur la plaque (B) décroît quand la surface de contact de l'échantillon décroît tandis que la charge mesurée induite sur (C) augmente puisque l'ouverture de la plaque (B) augmente. Ainsi, la meilleure géométrie correspond à une plaque (B) munie d'une ouverture de dimension 0.9 cm x 0.9 cm avec une surface de contact avec l'échantillon de 0.5 mm de largeur. Cette géométrie conduit à une charge image développée sur la plaque (B) inférieure à 2% de la charge injectée.

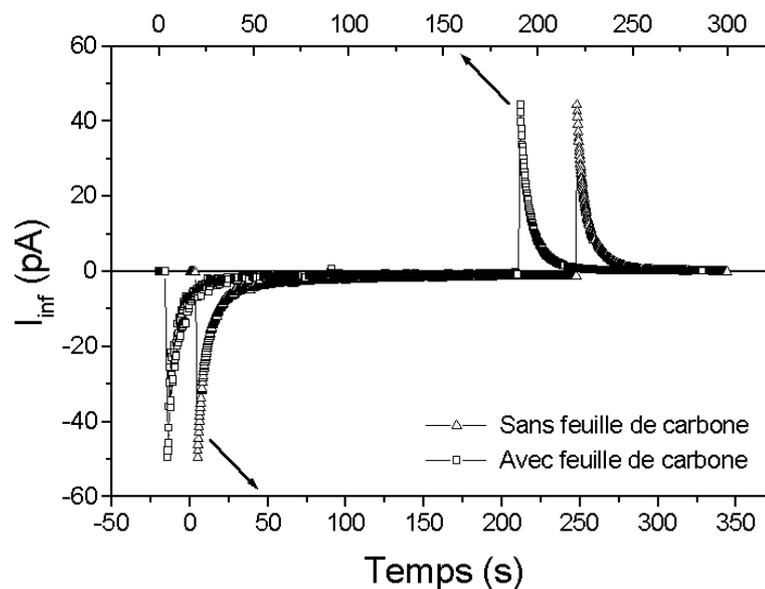


**Fig.II.12 :** Rapport entre la charge image et la charge injectée dans l'échantillon en fonction des dimensions de la surface de contact de l'échantillon avec l'électrode (B). Cas de la charge image induite sur la plaque (B) (carrés). Cas de la charge image induite sur la plaque (C) (cercles).

Cette optimisation de la géométrie tient compte également de l'influence de l'irradiation de l'échantillon par les électrons doublement rétrodiffusés (par l'échantillon puis par les

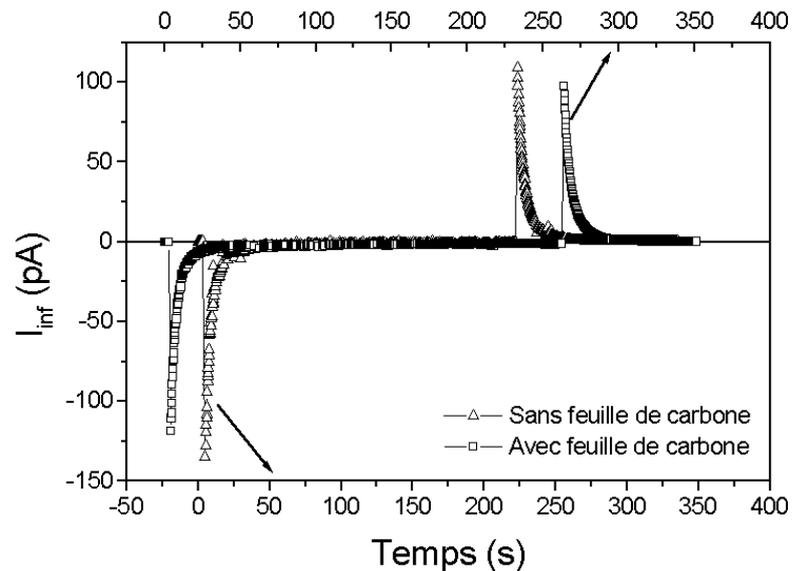
parois de la chambre objet du MEB) [15,25,44] sur les courants mesurés. Pour déterminer le poids de cette influence le courant d'influence a été mesuré en considérant deux configurations différentes. La première correspond au cas où les pièces polaires de la chambre objet du MEB sont couvertes avec une feuille de carbone et la seconde au cas où les pièces polaires sont non couvertes de carbone. Pour chaque configuration la surface totale de l'échantillon ou seulement une partie de cette surface a été irradiée.

Dans le cas d'une irradiation totale, les résultats obtenus sont représentés sur la Figure.II.13. Bien que le coefficient de rétrodiffusion des pièces polaires recouvertes de carbone ( $\eta = 0.1$ ) soit bien plus faible que celui de l'acier des pièces polaires ( $\eta = 0.35$ ), on constate d'une part que la différence entre les courants mesurés correspondant aux deux configurations est mineure (inférieure à 1%). D'autre part ces résultats montrent que la majeure partie des électrons doublement rétrodiffusés n'atteignent pas la surface de l'échantillon. En effet, la distribution de charge plane résultant de l'irradiation de la surface totale de l'échantillon produit un potentiel électrique qui est maximal au milieu de la zone chargée et qui décroît en  $1/r^3$  à l'extérieur de cette zone. Le champ électrique correspondant défléchit les électrons doublement rétrodiffusés en dehors de la surface chargée qui percutent l'enceinte (A) liée à la masse.



**Fig.II.13 :** Evolution temporelle du courant d'influence pendant et après l'irradiation totale de l'échantillon à une tension d'accélération de 13.7 kV et un courant primaire de 2nA. Pièces polaires couvertes de carbone (carrés). Pièces polaires non couvertes (triangles). Pour pouvoir comparer les courants correspondant à chaque configuration, les origines des axes de temps sont décalées.

Dans le cas d'une irradiation partielle (le tiers de la surface). Les résultats sont représentés sur la Figure II.14. On constate que la différence entre les deux courants est bien plus importante par rapport au cas précédent (de l'ordre de 10 %). Ainsi les meilleures conditions expérimentales consistent à irradier totalement la surface.



**Fig.II.14 :** Evolution temporelle du courant d'influence pendant et après l'irradiation partielle de l'échantillon à une tension d'accélération de 13.7 kV et un courant primaire de 2nA. Pièces polaires couvertes de carbone (carrés). Pièces polaires non couvertes (triangles). Pour pouvoir comparer les courants correspondant à chaque configuration, les origines des axes de temps sont décalées.

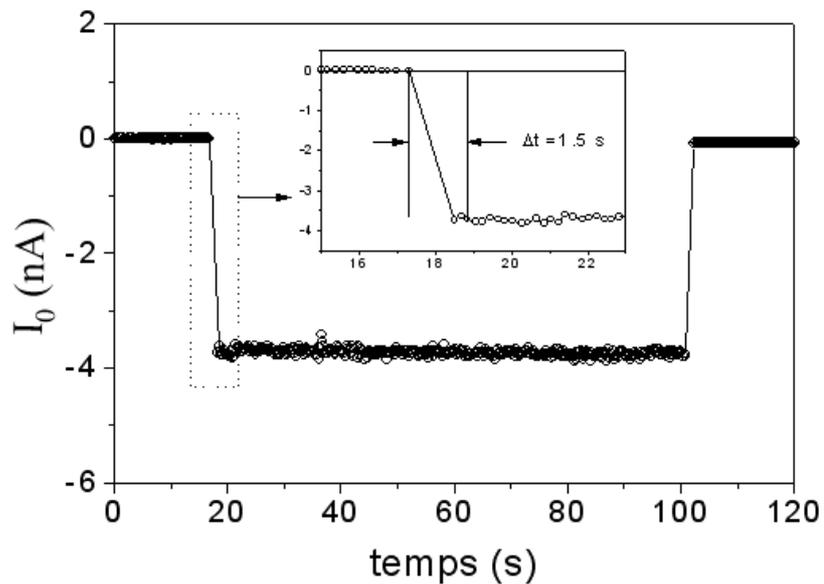
#### II.2.3.2.3.4 Limite de la méthode sensibilité, dynamique et incertitudes

Le pico-ampèremètre (HP 4140B) que nous avons utilisé a un temps d'échantillonnage,  $\Delta t$ , de l'ordre de 0.2 s dans la gamme des courants utilisés ( $10^{-14}$  -  $10^{-11}$  A). Cependant, nous attirons l'attention sur le fait que ce temps peut augmenter de façon significative lors d'une variation rapide, sur quelques décades du courant mesuré. La figure.II.15, montre la réponse de ce pico-ampèremètre à un créneau de courant primaire de 3.7 nA.

Nous notons, une interruption de l'acquisition au début et à la fin de l'irradiation d'une durée approximative de 1.5 s. Nous montrons dans la suite de ce paragraphe que l'effet de ce temps mort sur la mesure de la charge piégée reste relativement faible (au maximum 10% d'erreur).

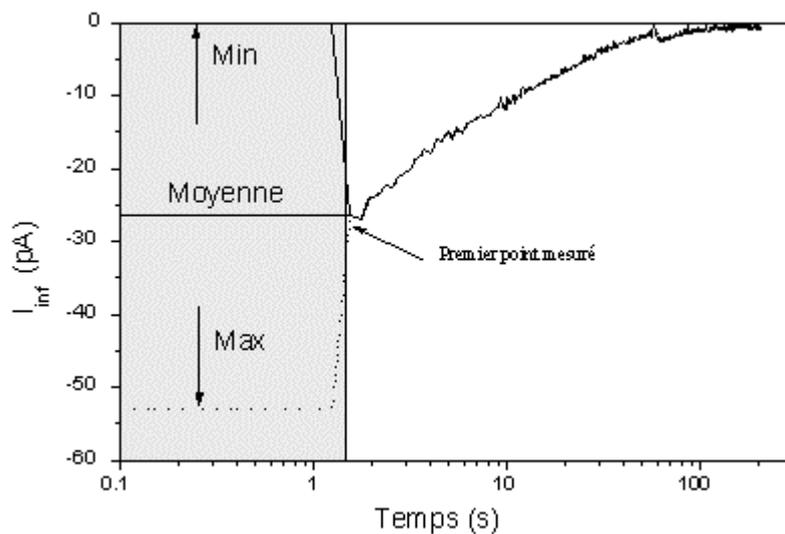
La variation du courant d'influence au cours de l'irradiation d'un verre avec une tension d'accélération de 14.3 kV et un courant primaire de 0.5 nA est représentée sur la

Figure.II.16. La variation rapide du courant mesuré ( $I_{inf}$ ), s'accompagne d'une augmentation de la constante du temps du pico-ampèremètre (de 0.2 s à environ 1.5 s).



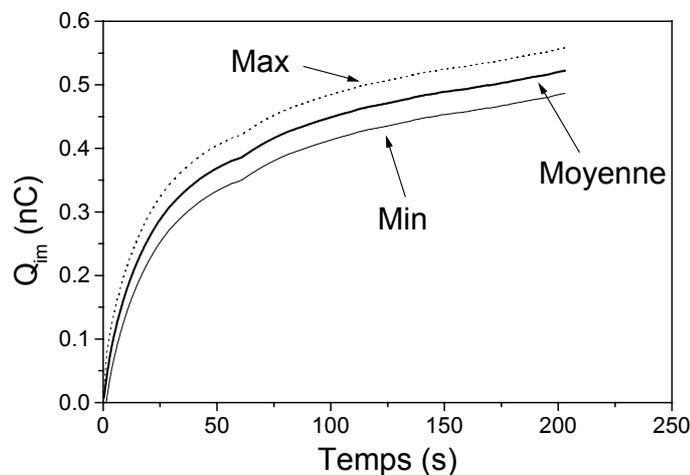
**Fig. II.15 :** Réponse du pico-ampèremètre (HP 4140B) à un créneau de courant primaire de 3.7 nA. Le faisceau primaire est mesuré à l'aide d'une cage de Faraday connectée au pico-ampèremètre.

Nous ne pouvons donc pas mesurer le courant d'influence aux premiers instants de l'irradiation (zone grisée sur la figure.II.16).



**Fig.II.16 :** Variation du courant d'influence au cours de l'irradiation d'un verre avec une tension d'accélération de 14.3 kV et un courant primaire de 0.5 nA. (échelle logarithmique).

Etant donné que la charge image et par conséquent la charge piégée sont obtenues par intégration de  $I_{inf}$  par rapport au temps, l'interruption d'acquisition induit une erreur sur leurs mesures. Soit  $\Delta t$  la durée de cette interruption et considérons les deux cas « extrêmes » correspondant respectivement à un courant d'influence nul (Min), et à un courant d'influence deux fois supérieur à celui correspondant au premier point (Max) de la mesure pendant cette durée  $\Delta t$ . Les deux courbes donnant la variation de la charge au cours de l'irradiation et correspondant à ces deux situations extrêmes sont données sur la Figure.II.17. Nous, constatons, que cette interruption de l'acquisition peut induire une erreur relative sur la mesure de la charge de l'ordre de 10%.



**Fig.II.17** : Variation de la charge image au cours de l'irradiation d'un verre avec une tension d'accélération de 14.3 kV et un courant primaire de 0.5 nA. Les trois courbes correspondant respectivement aux deux cas extrêmes et leur moyenne sont représentées.

### Remarques

Tout au long de ce mémoire nous avons représenté et considéré la valeur moyenne de la charge image. Ainsi une autre source d'erreurs possible peut provenir du fait que le courant d'influence,  $I_{inf}$ , traduit une variation de la charge piégée. En effet, si la zone irradiée contient une charge résiduelle due notamment à une pré-irradiation ou autre cause, l'intégration du courant  $I_{inf}$  ne fournira qu'une mesure de la charge additionnée. Cette possibilité ne figure pas dans cette étude car nous utilisons systématiquement pour chaque irradiation un échantillon vierge non préirradié.

## **II.3 Facteur d'influence électrostatique**

### **II.3.1 Etalonnage**

La méthode d'influence donne accès à la charge image reliée à la charge piégée par une relation qui implique un coefficient K (voir chapitre I, section.I.5) appelé coefficient d'influence. Ainsi la détermination de la charge piégée nécessite la connaissance de ce coefficient. Pour déterminer K deux approches sont possibles, l'une expérimentale et l'autre théorique. Dans le premier cas nous associons au dispositif de mesure des courants soit le spectromètre toroïdal soit une carte vidéo permettant d'acquérir les images électroniques. Dans le second cas nous utilisons un programme permettant de calculer les trajectoires électroniques.

### **II.3.2 Approche expérimentale**

Le facteur K peut être déterminé expérimentalement soit en utilisant la méthode basée sur la déflexion du faisceau primaire (voir section II.2.3.1) soit en utilisant le spectromètre toroïdal (voir section II.2.2.2) ou encore en corrélant les mesures simultanées des courants d'influence et de fuite.

#### **II.3.2.1 Déflexion du faisceau primaire**

La méthode consiste à mesurer le courant d'influence lors de l'irradiation de l'échantillon et d'enregistrer simultanément les images électroniques. Ces images permettent de déterminer le facteur de réduction  $R = d(t)/d_0$  (voir paragraphe II.2.3.1.3) qui traduit la variation du diamètre apparent de l'échantillon au cours de l'irradiation et par conséquent la valeur de la charge piégée correspondante en utilisant la démarche décrite dans le paragraphe II.2.3.1.2.

Le rapport de cette charge et de la charge image déduite de la mesure du courant d'influence nous permet de déterminer le facteur K en fonction du temps (ce facteur reste constant : voir plus loin). Dans le cas d'un verre irradié à une énergie de 13.7 keV et un courant de 2 nA le facteur K a été estimé à 0.29.

#### **II.3.2.2 Spectroscopie électronique**

Il existe un autre moyen pour déterminer le facteur K qui consiste à utiliser le spectromètre toroïdal en parallèle avec la mesure du courant d'influence. Cette méthode fournit la valeur du potentiel de surface  $V_s$  ainsi que la charge image au cours de l'irradiation. Moyennant, une hypothèse sur la distribution spatiale de la charge piégée il est possible de déduire l'évolution temporelle de cette charge. Comme pour la méthode précédente,

l'évolution du facteur K au cours de l'irradiation correspond au rapport de la charge image et de la charge piégée.

### II.3.2.3 Mesure simultanée des courants d'influence et de fuite.

Cette méthode est basée sur l'utilisation de l'équation de conservation du courant (E.I.9). En effet, quand l'irradiation est arrêtée,  $I_0$  et  $I_\sigma$  étant nuls, la neutralisation de la charge est due uniquement au courant de fuite  $I_L$  soit :

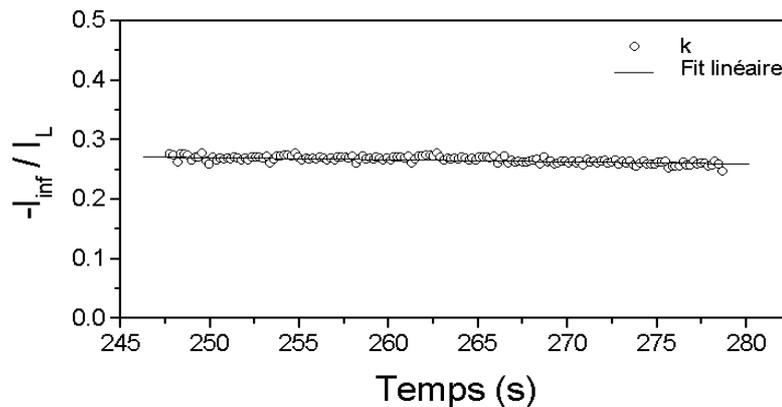
$$I_L = -\frac{dQ}{dt} \quad (\text{E.II.13})$$

avec  $\frac{dQ}{dt}$  la variation de la charge piégée après l'interruption du faisceau primaire.

Cette équation combinée avec l'équation (E.I.12) donne le facteur d'influence électrostatique:

$$K = -\frac{I_{\text{inf}}}{I_L} \quad (\text{E.II.14})$$

L'évolution de ce facteur au cours du temps lors de l'irradiation d'un verre avec une énergie primaire de 13.7 keV et un courant de 2 nA est représentée sur la figure.II.18. On constate que ce facteur reste constant au cours de l'irradiation et vaut 0.27.



*Fig.II.18 : Evolution temporelle du facteur d'influence électrostatique K.*

La précision du facteur K qui dépend uniquement des erreurs expérimentales a été estimée à une valeur inférieure à 2%.

### II.3.3 Discussion du facteur K

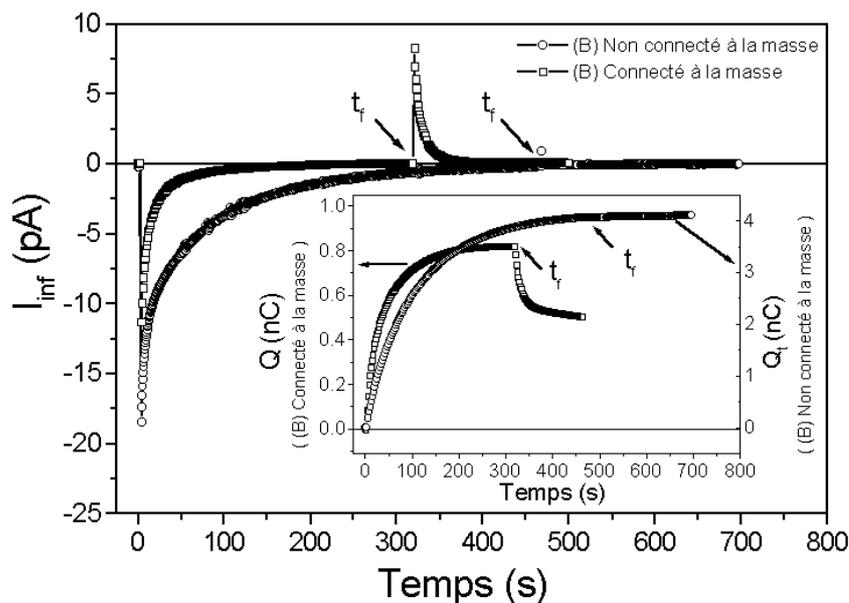
A cause du ralentissement des électrons primaires par le champ électrique externe induit par la charge progressivement piégée lors de l'irradiation de l'échantillon, il se produit un raccourcissement de la profondeur de pénétration des électrons incidents qui peut provoquer par conséquent une variation du coefficient K. Pendant l'irradiation ce coefficient subit une diminution alors qu'il augmente lors du processus de décharge qui débute au

moment de l'interruption du faisceau primaire. Cette dernière tendance est le résultat d'un élargissement de l'étendue de la charge suite à l'évacuation des charges piégées à travers le volume ou/et la surface. Cependant les résultats expérimentaux obtenus pendant la période de décharge (voir Fig.II.18) montrent que  $K$  reste constant au cours du temps et par conséquent indépendant du volume englobant la charge.

Un certain nombre de travaux [45,46], invoquent un changement de la constante diélectrique du volume englobant la charge piégée, alors que d'autres l'infirmement [32]. Cependant, il a été vérifié par un calcul numérique [10] que dans le cas où la profondeur de pénétration des électrons primaires est largement inférieure à l'épaisseur de l'échantillon, une éventuelle variation de  $\epsilon_r$  (si elle existe) n'a pas d'incidence significative sur la valeur de  $K$ .

Finalement, le coefficient d'influence peut être considéré comme constant pendant toute la durée de l'irradiation et après l'irradiation.

Le facteur  $K$  a été déterminé en utilisant l'équation (E.II.14) pendant la période de décharge qui suppose que la décharge se produit uniquement par l'évacuation des charges piégées vers la masse et non par d'autres mécanismes de décharge notamment par la neutralisation de la charge par les espèces ioniques de l'atmosphère résiduelle de la chambre objet du MEB. Pour vérifier cette hypothèse une expérience supplémentaire qui consiste à mesurer le courant d'influence d'un échantillon (verre) selon deux configurations différentes a été réalisée.



**Fig.II.19 :** Variation au cours du temps du courant d'influence pendant et après l'irradiation à une tension d'accélération de 4.5 kV et un courant primaire de 1nA.

L'électrode (B) est : maintenue flottante (cercles) ; reliée à la masse (carrés). La variation de la charge piégée en fonction du temps est représentée dans l'encart de figure.

Dans la première configuration l'électrode (B) est reliée à la masse via le pico-ampmètre (fonctionnement normal de notre dispositif). Dans la deuxième, l'électrode (B) est non connectée à la masse (flottante). Les résultats obtenus sont représentés sur la figure.II.19. La variation de la charge piégée au cours du temps correspondant aux périodes de charge et de décharge est donnée en encart. Concernant la deuxième configuration, on constate que pendant la période de décharge le courant d'influence reste nul (garde la même valeur qu'à l'état stationnaire de la période de charge), ce comportement montre clairement d'une part que l'atmosphère résiduelle ne joue aucun rôle dans la neutralisation de la charge et d'autre part que l'évacuation de cette charge après l'arrêt du faisceau ne se fait qu'à travers le volume et/ou le long de la surface pour être collectée ensuite par le pico-ampmètre.

Il importe de souligner que la détermination du facteur K en utilisant les courants mesurés pendant la période de décharge n'est valable que lorsque le phénomène de décharge est significatif. Pour des matériaux ayant une durée de décharge extrêmement longue l'étalonnage peut se faire soit à l'aide de la méthode de déflexion soit à l'aide de la mesure du potentiel de surface comme nous l'avons explicité précédemment (sections II.2.3.1 et II.2.2.2). Néanmoins, la décharge de ces matériaux reste possible par une procédure de chauffage, notamment, qui permet de faciliter le phénomène de dépiégeage.

## II.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté un ensemble de techniques mises au point dans notre laboratoire et destinées à l'étude du comportement des matériaux isolants sous irradiation électronique. Ces techniques sont mises en œuvre dans un MEB et permettent de déterminer les paramètres caractérisant la charge piégée dans l'isolant et son évolution au cours et après l'irradiation. Ainsi la spectroscopie électronique nous offre la possibilité de déterminer directement le potentiel de surface et de s'affranchir des difficultés liées à la mesure de ce potentiel à l'aide de la limite de Duane-Hunt de la spectroscopie d'émission X. La méthode de déflexion du faisceau électronique primaire basée sur l'observation de la distorsion de l'image électronique permet de mesurer de façon dynamique la charge piégée. Dans cette étude la méthode basée sur la mesure simultanée des courants d'influence et de fuite a été privilégiée. En effet, cette dernière permet non seulement d'étudier la cinétique de la charge piégée au cours de l'irradiation mais également d'avoir l'évolution de cette charge au cours de la décharge après l'arrêt du faisceau primaire. La mesure du courant de fuite apparaît comme un élément important qui contribue à une meilleure compréhension des mécanismes de charge et de décharge. Une des raisons également qui justifie le choix de cette méthode est le fait que l'étalonnage est « interne » et ne nécessite pas le recours à d'autres méthodes expérimentales.

Cependant, la complémentarité des méthodes décrites dans ce chapitre permettra en corrélant leurs informations respectives de mieux comprendre et interpréter les phénomènes de charges ainsi que leurs mécanismes physiques.

## Références Bibliographique chapitre II

- [1] G. F. Bastin and H. J. M. Heijligers, in *Electron Probe Quantification*, Edited by K. F. J. Heinrich and D. E. Newbury ( Plenum, New York, 1991), p. 193.
- [2] L. Reimer. *Transmission electron microscopy*, Springer (1997).
- [3] P. Hirsch, M. Kaessens, M. Puttman, L. Reimer, *Scanning*, **16**, 101 (1994).
- [4] J. Cazaux, K. H. Kim, O. Jbara and G. Salace, *J. Appl. Phys.* **70**, 960 (1991).
- [5] G. D. Dalnilatos, *Adv. Electron. Electron Phys.* **71**, 109 (1988).
- [6] D. J. Stokes, B. L. Thiel, and A. M. Donald, *Langmuir*. **14**, 4402 (1998).
- [7] H. Guo, W. Maus-Friedrichs and V. Kempfer, *Surf. Interf Anal.* **25**, 390 (1997).
- [8] J. Cazaux *Electron Spectrosc. Rel. Phen.* **105**, 155 (1999).
- [9] J. Cazaux *Electron Spectrosc. Rel. Phen.* **113**, 15 (2000).
- [10] M. Belhaj, Thèse, Faculté des Sciences de Reims (2001).
- [11] J.J. Hwu and D. C. Joy, *Proceeding of Electron Microscopy*, Edited by H. A Calderon Benavides and M José Yacaman, Mexico. **1**, 467 (1998).
- [12] D.C Joy and C.S Joy, *Micron* **27**, 247 (1996).
- [13] H. Gong, C. Le Gressus, K.H. Oh, X. Z. Ong and B. T. G. Tan, *J. Appl. Phys.* **74**, 1944 (1993).
- [14] M. Toth, S. O. Kucheyev, J. S. Williams, C. Jagadish, M. R. Phillips et G. Li, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 1342 (2000).
- [15] M. Belhaj, O. Jbara, M.N. Filippov E.I. Rau and M.V. Andrianov, *Appl. Surf. Sci.* **177**, 58 (2001).
- [16] A. Melchinger and S. Hofmann, *J. Appl. Phys.* **78**, 6224 (1995).
- [17] D. C. Joy, *SPIE Microlitography Conf.* (1999) p . 123.
- [18] M.P. Seah, S.J. Spencer, *Electron Spectrosc. Rel. Phen.* **109**, 291(2000).
- [19] C. H. Seager, W. L. Warren, and D. R. Tallent, *J. Appl. Phys.* **81**, 7994 (1997).
- [20] *Dubeldam Electron Beam Testing*, edited by John T. L. Thong (Plenum,New York, 1993), p. 213.
- [21] M. E. Rud, *Low Energy Electron Spectrometry*, edited by K. D. Sevier-Wiley, Interscience, New York. **3**, 17 (1972).
- [22] H. Niedrig *J. Appl. Phys.* **53**, 15 (1982).
- [23] E. Rau et V. N. E. Robinson, *Scanning* **18**, 556 (1996).
- [24] H. Niedrig et E. Rau, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **142**, 523 (1998).
- [25] O. Jbara, M. Belhaj, S. Odof, K. Msellak, E. Rau and M. Andrianov. *Rev. Sci. Instrum.* **72**, 1788 (2001).
- [26] D. Berger, M. Filippov, H. Niedrig, E. I. Rau, and F. Schlichting, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **105**, 119 (1999).

- [27] E. I. Rau et L. Reimer, *Scanning*, **23**, 235 (2001).
- [28] J. P. Vigouroux, J. P. Duraud, A. Le moel and C. Le Gressus and D.L. Griscom, *J. Appl. Phys.* **57**, 5139 (1985).
- [29] B. Vallayer, G. Blaise et D. Treheux, *Rev Scien Instrum.* **70**, 3102 (1999).
- [30] R. Coelho, B. Aladeniz, B. Garros, *IEEE Trans. Electr. Insul.* **6**, 202 (1999).
- [31] J. Bigarré and P. Hourquebie, *J. Appl. Phys.* **85**, 7443 (1999).
- [32] H. J. Wintel, *J. Appl. Phys.* **86**, 5691 (1999).
- [33] J. Cazaux, *J. Appl. Phys.* **59**, 1418 (1986).
- [34] M. Belhaj, O. Jbara, S. Odof, K. Msellak, E.I. Rau and M.V. Andrianov, *Scanning*. **22**, 352 (2000).
- [35] Z.G. Song, C.K. Ong et H. Gong, *J. Appl. Phys.* **79**, 7123 (1996).
- [36] Z.G. Song, H. Gong et C. K. Ong, *Material Science and Engineering*, **B52**, 12 (1998)
- [37] J. Bigarré, S. Fayeule, O. Paulhe, D. Tréheux, *IEEE Tran. Dielectr. Electr. Insul. Annual Report-Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena*, 101 (1997).
- [38] A. Berroug, J. Bigarré, S. Fayeule, D. Tréheux, *IEEE Tran. Dielectr. Electr. Annual Report-Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena*, 97 (1997).
- [39] J. Liebault, J. Vallayer, D. Goeuriot, D. Tréheux and F. Thevenot, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **21**, 389 (2001).
- [40] H. J. Wintel, *J. Appl. Phys.*, **81**, 2682 (1997).
- [41] J. Taniguchi, I. Miyamoto, N. Ohno, S. Honda, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res, B* **121**, 507 (1997).
- [42] D.L. Chinaglia, R. Hessel and O.N. Oliviera Jr, *Polymer Degradation and Stability*. **74**, 97 (2001).
- [43] QuickField Finite Element Analysis System, Tera Analysis, Svendborg (2001).
- [44] M.V. Andrianov, E.I. Rau, J. Cazaux, O. Jbara, M. Belhaj, *Surface Investigation*. **12**, 9 (2000).
- [45] N. Damak, A. Kallel and Z. Fakhfakh, *Ann. Chim. Sci. Mat*, **23**, 255 (1998).
- [46] C. K. Ong, Z. G. Song, K.H. Oh, H. Gong and C. Le Gressus, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 317 (1998).

### CHAPITRE III

## **Applications : Etude du comportement des isolants sous irradiation électronique et détermination de la deuxième énergie critique**

"La raison demande à voir la chance mais la chance refuse. «Pourquoi ne veux-tu pas me recevoir ?

- Parce que tu as besoin de moi, je n'ai pas besoin de toi ! »

Même dans le bien-être, sa raison rend malheureux celui qui pense, et même dans le malheur, la brute insouciante est heureuse ! "

AL-MOUTANABBI (915-965)

### III.1 Introduction

Dans ce chapitre il s'agira d'appliquer l'ensemble des méthodes décrites précédemment dans le chapitre II pour étudier le comportement des matériaux isolants sous irradiation électronique. Il s'agit de comprendre les mécanismes physiques de charge et de décharge de ces matériaux qui mettent en jeu plusieurs processus dynamiques complexes et interconnectés. Ces processus impliquent de nombreux paramètres notamment, le rendement d'émission électronique secondaire et le courant de fuite. Dans cette étude une attention particulière sera accordée au courant de fuite. Deux matériaux ayant des comportements sous irradiation électronique complètement différents ont été étudiés. Il s'agit du verre dont la composition chimique peut être modifiée à cause de la présence d'espèces mobiles (i.e. sodium) et du quartz plus stable sous bombardement électronique. Dans le premier cas le courant de fuite est la somme de deux contributions l'une d'origine électronique et l'autre d'origine ionique. Le courant de fuite dans le second cas est uniquement électronique. L'influence de l'énergie primaire sur les phénomènes de charge et de décharge ainsi que le rôle crucial joué par le courant de fuite dans les mécanismes de régulation de charge seront analysés. Les constantes de temps de ces phénomènes seront également déterminées et discutées. Dans la deuxième partie de ce chapitre l'influence du courant de fuite sur le potentiel de surface et sur la deuxième énergie critique  $E_{CII}$  sera abordée. Pour mesurer la valeur réelle de l'énergie critique  $E_{CII}$  tenant compte de la correction due à la présence du courant de fuite, une méthode basée sur l'approche conventionnelle du rendement d'émission électronique total a été proposée. Cette méthode sera appliquée à une large gamme de matériaux isolants présentant des comportements différents vis à vis de l'irradiation électronique.

## III.2 Mesure des courants d'influence et de fuite

### III.2.1 Conditions expérimentales

Les courants d'influence et de fuite ont été simultanément mesurés à l'aide du dispositif expérimental décrit au chapitre II (paragraphe.2.3.2.3). Ces mesures ont porté sur les deux types d'échantillons, le verre (ECH.1) et le quartz (ECH.2). Les caractéristiques physiques de ces matériaux ainsi que la procédure de nettoyage utilisée avant leur irradiation avec les électrons sont données au chapitre II (paragraphe.II.2.1.3). La composition chimique du verre est donnée dans le tableau III.1. Le quartz utilisé est un monocristal contenant des impuretés de l'ordre du ppm tel que des ions ( $Al^{3+}$ ) et des ions alcalins ( $Li^+$  et  $Na^+$ ).

SiO <sub>2</sub>	Na <sub>2</sub> O	CaO	MgO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	K <sub>2</sub> O	(SO <sub>3</sub> , TiO <sub>2</sub> , Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )
72.2%	14.2%	6.4%	4.3 %	1.2%	1.2%	0.05%

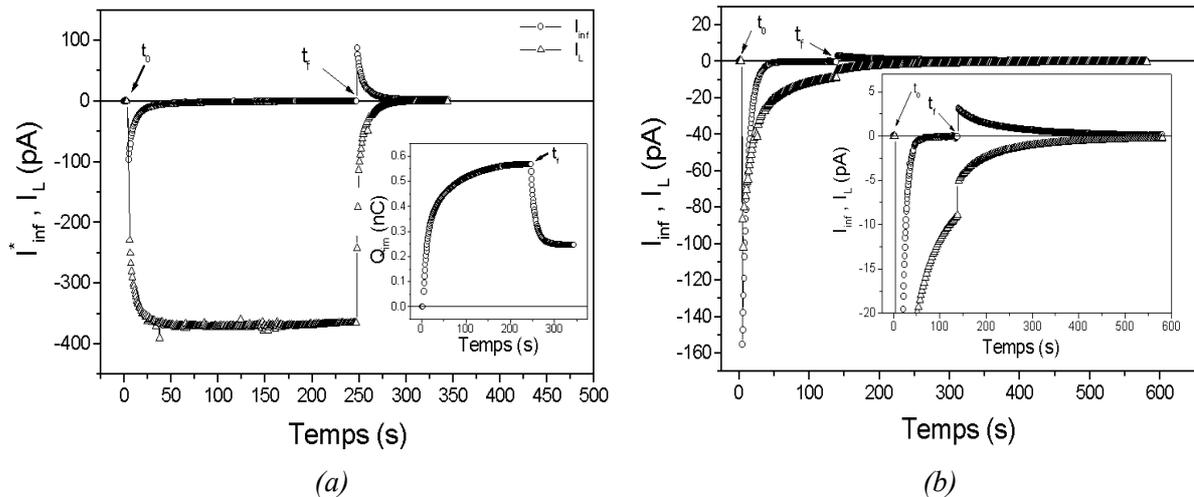
*Tableau III.1 : Composition du Verre*

Les expériences sont effectuées dans un MEB (Philips 505) à la température ambiante et à une pression de  $10^{-6}$  torr. La distance de travail (distance entre le dernier diaphragme de la sortie du faisceau primaire et la surface de l'échantillon) est de 27.9 mm. Le courant primaire est mesuré à l'aide d'une cage de Faraday placée sur l'enceinte (A) qui est connectée à un Keithley 610C (voir Figure.II.2.3.2.3). Ce courant est maintenu constant durant la manipulation.

Les échantillons sont irradiés en mode de balayage rapide (50 images par seconde : mode TV) sur une surface de 11.34 mm<sup>2</sup> et chaque échantillon est irradié une seule fois.

### III.2.2 Allure typique

Les Figures III.1 (a) et (b) représentent l'évolution au cours du temps des courants d'influence et de fuite mesurés simultanément pendant et après l'irradiation à une tension d'accélération  $V_{ac} = 13.7$  kV et un courant primaire fixe  $I_0 = 2$  nA pour le verre et le quartz respectivement. La variation au cours du temps (pendant et après irradiation) de la charge image dans le cas du verre est représentée dans l'encart de la figure III.1 (a). Cette charge est déduite du courant d'influence  $I_{inf}$  par une intégration numérique.



**Fig.III.1 :** (a) Evolution temporelle des courants d'influence et de fuite pendant et après l'irradiation à une tension d'accélération de 13.7 kV et un courant primaire de 2nA dans le cas du verre. L'encart de cette figure donne la variation de la charge image.  $I_L$  (de l'ordre du nA) étant plus intense que  $I_{inf}$  (de l'ordre du pA), pour une meilleure représentation de ces courants, nous multiplions  $I_{inf}$  par un facteur 2 ( $I_{inf}^* = 2 I_{inf}$ ). (b) : Evolution temporelle des courants d'influence et de fuite pendant et après l'irradiation à une tension d'accélération de 13.7 kV et un courant primaire de 2nA dans le cas du quartz.

### III.2.2.1 Etape d'irradiation

Au cours de l'irradiation, les courants d'influence et de fuite ont le même signe (négatifs). Pour les deux échantillons les courants d'influence ont la même allure et varient rapidement pour atteindre une valeur très faible voire nulle tandis que les allures des courants de fuite sont totalement différentes. Le courant de fuite dans le cas du verre augmente d'une manière continue pour atteindre une valeur constante non nulle à l'équilibre alors que dans le cas du quartz, il a la même allure que le courant d'influence.

Le signe négatif du courant d'influence est dû au fait qu'au cours de l'irradiation, la charge négative  $Q$  qui se développe à la surface de l'échantillon induit une charge image positive sur l'électrode (C) qui s'accompagne d'une évacuation d'électrons de cette dernière vers la masse. La valeur absolue du courant d'influence est maximale au début de l'irradiation (le taux de piégeage est maximal) et décroît ensuite progressivement pour atteindre une valeur de saturation nulle. En effet, l'augmentation du potentiel de surface négatif  $V_s$  à l'interface isolant/vide [1,2] induite par l'augmentation de la charge piégée (négative) au cours de l'irradiation, s'accompagne d'une diminution de l'énergie effective  $E_{eff}$  ( $E_{eff} = E_0 + eV_s$ ) des électrons primaires qui entraîne l'accroissement du rendement total de l'émission électronique  $\sigma$  [3,4,5] (voir Chapitre I). Cet accroissement se traduit par un ralentissement progressif de la charge piégée et par conséquent par une diminution

progressive du courant d'influence. Lorsque le flux constitué des électrons émis par l'échantillon et de ceux évacués vers la masse équilibre celui des électrons incidents la charge piégée atteint son état d'équilibre et le courant d'influence s'annule.

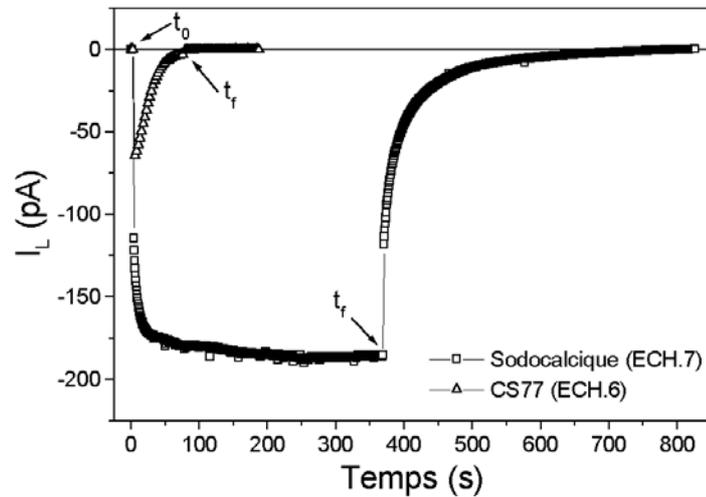
Concernant le courant de fuite sa valeur au début de l'irradiation est de l'ordre de 11.5 % du courant primaire, et il est plus important que le courant d'influence dans le cas du verre. Dans le cas du quartz on observe un comportement inverse, le courant d'influence  $I_{inf}$  est plus important que le courant de fuite  $I_L$ .

Dans le cas du verre l'augmentation du courant de fuite est probablement due au fait que sous irradiation électronique une conduction ionique peut avoir lieu suite au mouvement des défauts (ions ou lacunes) sous l'influence du champ électrique générés par la charge piégée. Dans ce cas, le courant de fuite est la somme de deux courants l'un ionique et l'autre électronique. Pour vérifier qualitativement l'existence du courant ionique, une expérience supplémentaire a été réalisée. Cette expérience consiste à mesurer le courant de fuite dans le cas de deux verre différents. Dans le premier (verre Sodocalcique, (ECH.7)) la migration électrique des ions sodium est possible tandis que dans le second (Verre CS77 (ECH.6)) cette migration est bloquée par la présence d'éléments alcalins lourds (voir Tableau.III.2).

Composition (% molaire d'oxyde)	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Na <sub>2</sub> O	CaO	ZrO <sub>2</sub>
Sodocalcique (Planilux) (ECH.7)	72	0.3	13	15	---
Haut strain point (CS77) (ECH.6)	73	0.4	9	16	2

**Tableau.III.2** : Composition des verres (ECH.7) et (ECH.6)

Les résultats obtenus et illustrés sur la Figure.III.2 montrent clairement que l'allure descendante du courant de fuite est due essentiellement à la conduction ionique due aux ions sodium mobiles sous l'action du champ.



**Fig.III.2 :** Variation au cours du temps du courant de fuite pendant et après l'irradiation sous une tension d'accélération de 13.7 kV et un courant primaire de 1.1 nA pour deux verres différents.

### III.2.2.2 Etape après l'arrêt d'irradiation

Lorsque le faisceau primaire est interrompu à l'instant  $t_f$  le courant d'influence change subitement de signe par rapport à la période d'irradiation et continue à diminuer jusqu'à la valeur zéro. Ce changement de signe est dû au fait que l'évacuation vers la masse d'une fraction de la charge préalablement piégée provoque une diminution de la charge image  $Q_{im}$  qui s'accompagne d'une circulation d'électrons de la masse vers (C).

Concernant le courant de fuite on constate qu'il garde son signe initial (négatif) et diminue pour atteindre également la valeur zéro. L'ordre de grandeur de ce courant après l'interruption du faisceau dépend de la nature de l'isolant irradié, il est plus important dans le verre que dans le quartz.

## III.3 Détermination de la charge piégée

### III.3.1 Facteur d'influence électrostatique

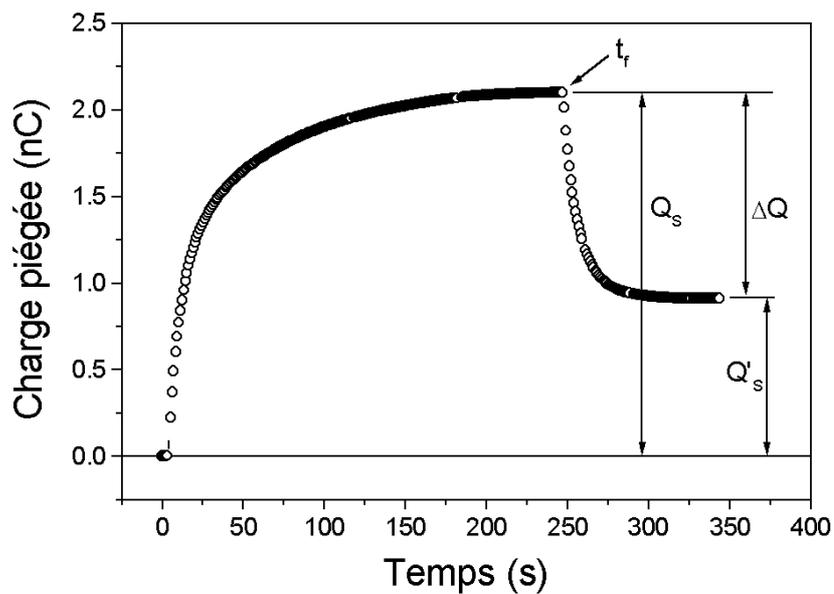
Pour déterminer le facteur d'influence électrostatique, K, nous disposons de deux méthodes (voir chapitre.II, section.II.3). La première est basée sur la mesure simultanée des courants d'influence et de fuite et la seconde est basée sur la distorsion des images électroniques sous irradiation électronique associés à un programme de simulation de la déflexion des électrons primaires. Le tableau.III.3 présente les valeurs de K obtenues à l'aide des deux méthodes dans le cas des deux matériaux étudiés. L'accord entre les deux méthodes est satisfaisant.

Matériau	verre	quartz
K (à partir de période de décharge)	0.27	0.58
K (à partir de la simulation )	0.29	0.59

**Tableau.III.3 :** Facteur d'influence électrostatique  
à une énergie primaire de 13.7 kV et un courant primaire de  $I_0 = 2 \text{ nA}$ .

### III.3.2 Cinétique et correction de l'effet de la déflexion

Désormais, connaissant le facteur d'influence électrostatique K, il est possible de déterminer la variation de la charge piégée Q au cours du temps à partir de la charge image (voir Fig.III.1(a)) selon l'équation (E.I.10). La figure.III.3 montre l'évolution temporelle de la charge piégée pendant et après l'irradiation dans le cas du verre.



**Fig.III.3 :** Variation au cours du temps de la charge piégée pendant et après l'irradiation du verre à une tension d'accélération de 13.7 kV et un courant primaire de 2 nA.

Pendant la période d'irradiation, la charge piégée obéit à une cinétique de premier ordre [6,7,8,9] telle que:

$$Q = Q_s (1 - e^{-t/\tau}) \quad (\text{E.III.1})$$

$Q_s$  est la quantité de charge piégée à l'état d'équilibre et  $\tau$  la constante de temps de charge. Leur valeurs respectives sont 2.07 nC et 26.51 s.

Après l'arrêt du faisceau primaire la variation de la charge au cours du temps obéit à la loi suivante:

$$Q = Q'_s + \Delta Q e^{-(t-t_f)/\tau'} \quad (\text{E.III.2})$$

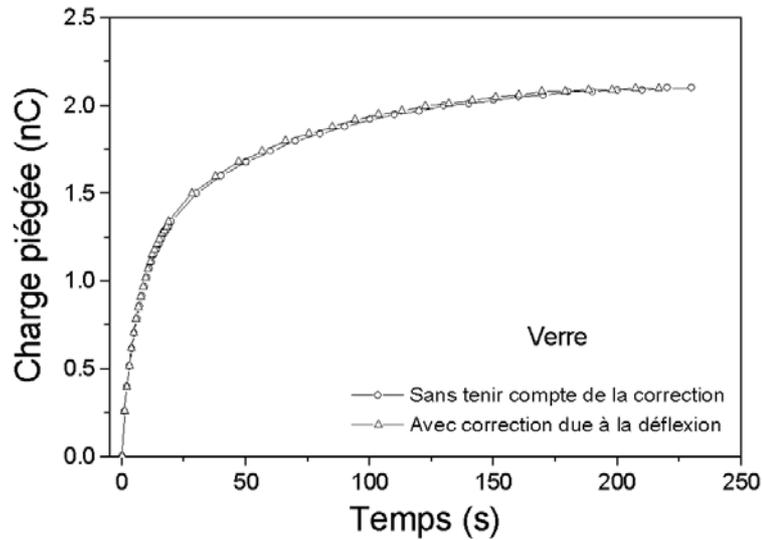
$\Delta Q$  est la charge totale évacuée après l'arrêt du faisceau primaire,  $Q'_s$  la charge qui reste piégée dans le matériau ( $Q'_s = Q_s - \Delta Q$ ).  $\tau'$  et  $t_f$  représentent respectivement la constante de temps de la décharge partielle et l'instant de l'interruption du bombardement électronique. Les valeurs de  $Q'_s$  et  $\tau'$  déduites en utilisant l'expression E.III.2 sont respectivement 0.92 nC et 9.69 s.

Nous savons (voir chapitre II, paragraphe II.2.3.1.4) qu'à cause de la déflexion du faisceau primaire induite par le développement d'une charge piégée à la surface de l'échantillon, la densité surfacique des électrons injectés dans ce dernier diminue. Cette diminution est responsable de la modification de la cinétique de charge et par conséquent l'établissement de l'état d'équilibre nécessite un temps plus important. Ainsi pour établir la cinétique réelle de la charge piégée  $Q$ , il est nécessaire de corriger l'effet de la déflexion du faisceau primaire. Cette correction consiste à déterminer le temps fictif d'irradiation,  $t^*$ , mis pour atteindre l'équilibre en absence de déflexion. Ce temps est donné par la relation suivante:

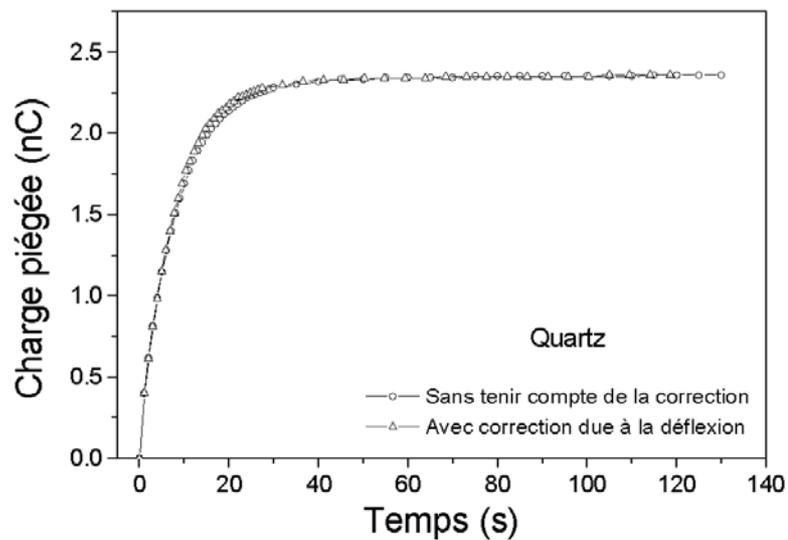
$$t^* = \frac{N_{inj}^{corr}(t)}{N_{inj}(t)} t \quad (\text{E.III.3})$$

Le terme  $N_{inj}^{corr}(t)$  correspond à la densité surfacique des électrons injectés en tenant compte de la correction due à la déflexion des électrons primaires (E.II.11).  $t$  est le temps réel de la manipulation en présence de la déflexion des électrons primaires.

Les figures III.4 et 5 comparent l'évolution temporelle de la charge piégée obtenue en absence de la déflexion des électrons primaires et celle obtenue en présence de cette déflexion dans le cas du verre et du quartz respectivement. On constate que l'état d'équilibre est atteint plus rapidement en absence de déflexion alors que la charge piégée correspondante reste inchangée dans les deux situations. Ces résultats montrent que dans les conditions expérimentales utilisées (dispositif de mesure optimisé (chapitre II)), la cinétique de charge n'est pas très affectée par la déflexion des électrons primaires (modification inférieure à 2 %).



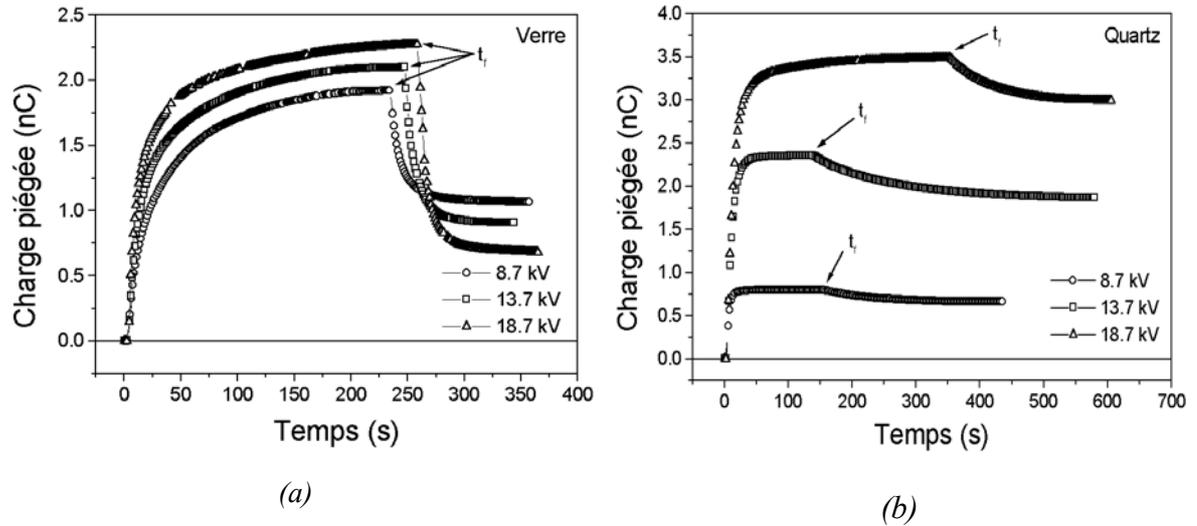
**Fig.III.4 :** Comparaison des variations temporelles de la charge piégée avec et sans correction de l'effet de la déflexion des électrons primaires. La tension d'accélération est 13.7 kV et le courant primaire est 2 nA.



**Fig.III.5 :** Comparaison des variations temporelles de la charge piégée avec et sans correction de l'effet de la déflexion des électrons primaires. La tension d'accélération est 13.7 kV et le courant primaire est 2 nA.

### III.4 Résultats et discussion

Les charges piégées mesurées au cours et après l'irradiation à différentes énergies primaires et à courant primaire fixe pour des échantillons de verre et de quartz sont représentées respectivement sur les figures.III.6 (a) et (b).



**Fig.III.6 :** Variation de la charge piégée en fonction du temps pendant et après l'irradiation sous une tension d'accélération variant de 8.7 à 18.7 kV et un courant primaire fixe à 2 nA.

On constate indépendamment du matériau étudié que la charge piégée augmente avec le temps au début de l'irradiation pour atteindre ensuite une valeur de saturation  $Q_s$  suivie d'une décharge partielle jusqu'à une valeur de saturation  $Q'_s$  quand le faisceau primaire est arrêté. Ce comportement de la charge piégée au cours du temps est indépendant de la tension d'accélération.

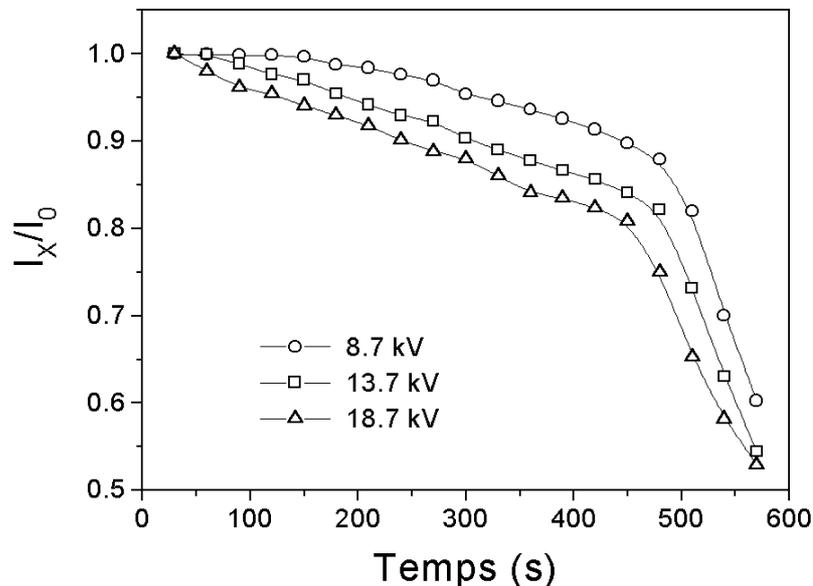
Les différents paramètres gouvernant la cinétique de la charge piégée (voir les équations (E.III.1) et (E.III.2) du paragraphe III.3.2) sont donnés dans le tableau.III.4:

	$V_{ac}$ (kV)	$Q_s$ (nC)	$\tau$ (s)	$Q'_s$ (nC)	$\tau'$ (s)
Verre	8.7	1.9	34.6	1.08	10.4
	13.7	2.07	26.5	0.92	9.7
	18.7	2.2	21.5	0.7	7.9
Quartz	8.7	0.79	8	0.65	72.9
	13.7	2.45	12.6	1.9	125.7
	18.7	3.17	16.26	2.57	149.8

**Tableau.III.4 :** Valeurs des différentes quantités  $Q_s$ ,  $Q'_s$ ,  $\tau$  et  $\tau'$  pour différentes valeurs de  $V_{ac}$  et pour un courant primaire fixe à 2 nA.

### III.4.1 Période de charge et section efficace effective

Ces résultats montrent clairement que le temps nécessaire pour que l'échantillon se charge (constante de temps de charge  $\tau$ ) dépend de la tension d'accélération. Ce temps diminue pour le verre et augmente pour le quartz quand la tension d'accélération augmente. La charge à la saturation subit une légère augmentation dans le cas du verre et une augmentation très significative dans le cas du quartz quand la tension d'accélération augmente. Dans le cas du verre, ce comportement peut être associé à la structure du verre et à sa modification chimique sous irradiation électronique. En effet, le verre sodocalcique étudié est un verre amorphe formé d'un réseau de tétraèdres  $\text{SiO}_4$  liés entre eux par des atomes d'oxygène dits pontants. L'oxygène dit non-pontant [10] qui n'est lié que d'un seul côté au silicium est un défaut fréquent du réseau qui est créé lors de l'adjonction d'oxydes d'éléments modificateurs du réseau dont les principaux sont les métaux alcalins. La place la plus probable pour un ion de sodium est au voisinage de l'oxygène non-pontant (NBO) qui porte une charge négative (chargé négativement). Sous bombardement électronique la composition chimique du verre est modifiée suite à la migration des ions alcalins sous l'action du champ électrique induit [8,11] par les charges piégées. Cette modification est illustrée par la décroissance de l'intensité de la raie  $K_\alpha$  du sodium au cours de l'irradiation. Cette décroissance représentée sur la figure.III.7 est d'autant plus accentuée que l'énergie primaire est élevée.

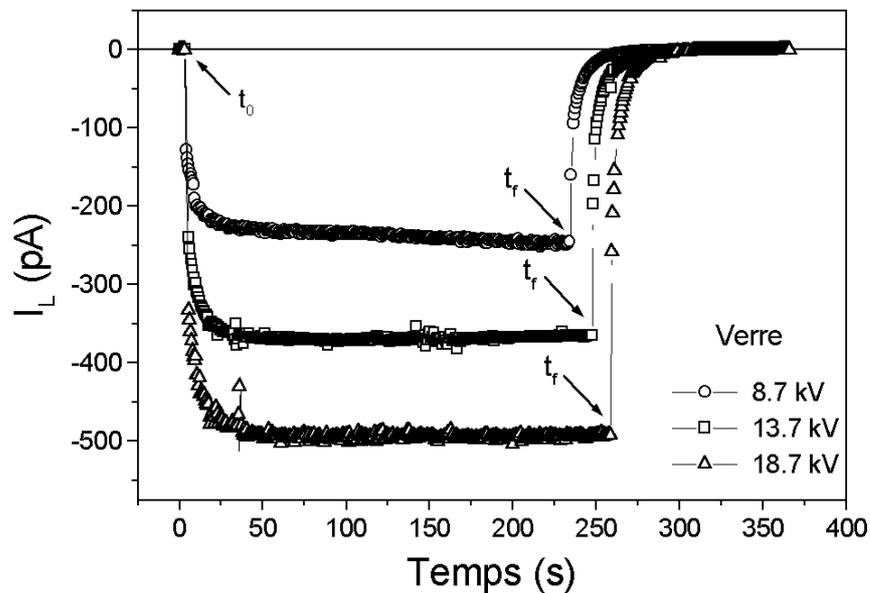


**Fig.III.7 :** Décroissance au cours du temps de l'intensité de la raie  $\text{NaK}_\alpha$  normalisée (par rapport à l'intensité au début de l'irradiation) sous différentes tensions d'accélération et un courant primaire fixe à  $2\text{nA}$ .

Ainsi, l'augmentation de la quantité d'ions mobiles impliquée dans la migration conduira à une augmentation de la conductivité de l'échantillon qui contribuera à une compensation supplémentaire de charges piégées et par conséquent à des constantes de temps du phénomène de charge qui diminueront.

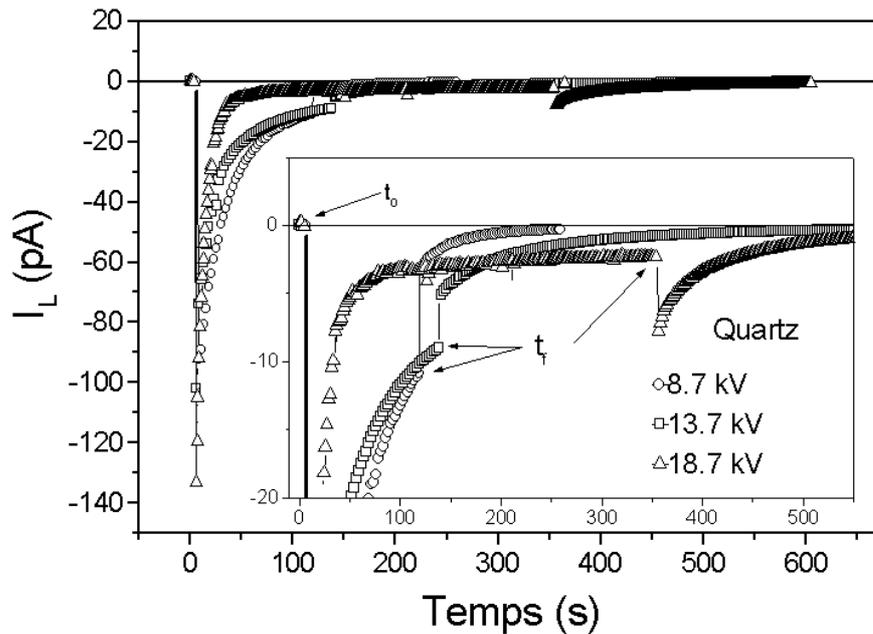
L'augmentation de la conductivité quand l'énergie primaire augmente est confirmée par l'augmentation résultante du courant de fuite illustrée sur la figure.III.8.

Concernant la charge à la saturation, deux effets concomitants sont responsables de sa légère augmentation dans le cas du verre quand l'énergie primaire augmente. Il s'agit de l'augmentation de la conductivité ionique et de la diminution de l'émission électronique secondaire [12]. La compensation de la charge piégée par le biais de ce dernier phénomène l'emporte légèrement sur la compensation dû au premier.



**Fig.III.8 :** Variation au cours du temps du courant de fuite pendant et après l'irradiation pour différentes tensions d'accélération et un courant primaire à 2nA.

Dans le cas du quartz la situation est totalement différente. L'augmentation de la constante de temps du phénomène de charge,  $\tau$ , avec l'énergie primaire est associée à l'augmentation du volume d'interaction et par conséquent à l'augmentation du nombre de pièges préexistants et induits par l'irradiation. Sachant que la charge à la saturation est le résultat des mécanismes de régulation à savoir les phénomènes de piégeage-dépiégeage et l'émission secondaire, son augmentation significative quand l'énergie augmente, est due d'une part à la diminution de l'émission secondaire et à celle du courant de fuite (voir Fig.III.9) et d'autre part à l'augmentation du nombre de pièges impliqués.



**Fig.III.9 :** Variation au cours du temps du courant de fuite pendant et après l'irradiation pour différentes tensions d'accélération et un courant primaire à 2nA.

Un des points importants de cette étude est la possibilité d'accéder à la section efficace effective de « création » de la charge négative, observée à l'aide de l'évolution de la densité surfacique des électrons piégés, en fonction de la densité surfacique des électrons injectés. La valeur de cette dernière ( $N_{inj}$ ) est déterminée à tout instant  $t$  de l'irradiation en utilisant l'équation (E.II.11) (voir chapitre II, paragraphe II.2.3.1.4). La densité surfacique des électrons piégés ( $N_p$ ) est donnée par la relation suivante :

$$N_p = Q/e S \quad (\text{E.III.4})$$

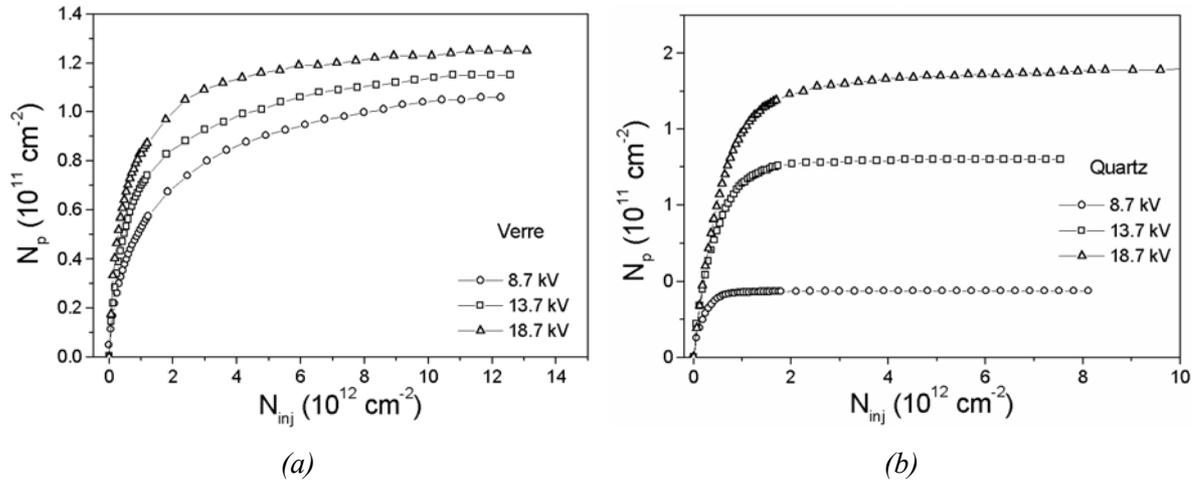
$S$  est la surface irradiée de l'échantillon ( $S = 11.34 \text{ mm}^2$ ),  $Q$  est la charge piégée et  $e$  est la charge élémentaire de l'électron ( $1.6 \cdot 10^{-19} \text{ C}$ ).

La figure.III.10 (a) et (b) donne l'évolution de la densité surfacique des électrons piégés en fonction de celle des électrons incidents pour différentes tensions d'accélération dans le cas du verre et du quartz respectivement. Indépendamment de la tension d'accélération cette évolution suit une cinétique de premier ordre [13] donnée par :

$$N_p = N_p^S (1 - e^{-\Sigma N_i}) \quad (\text{E.III.5})$$

$N_p^S$  est la densité des électrons piégés à l'état stationnaire et  $\Sigma$  la section efficace effective de création de la charge négative. Nous utilisons le terme « effective » pour mettre l'accent sur le fait que cette section efficace ne reflète pas le phénomène de

capture des électrons au sens absolu, mais uniquement celui de la création d'un excès d'électrons piégés par rapport à la création de trous.



**Fig.III.10 :** Variation de la densité surfacique des électrons piégés en fonction de la densité surfacique des électrons injectés pour  $V_{ac}$  de 8.7 à 18.7 kV et  $I_0 = 2 \text{ nA}$ .

Les valeurs de  $N_p^S$  et de  $\Sigma$  obtenues pour différentes tensions d'accélération sont données dans le tableau.III.5 :

		$V_{ac}$ (kV)	8.7	13.7	18.7
Verre	$N_p^S$ ( $10^{11} \text{ cm}^{-2}$ )		0.98	1.09	1.18
	$\Sigma$ ( $10^{-13} \text{ cm}^2$ )		$7.9 \pm 0.41$	$11.2 \pm 0.41$	$14.5 \pm 0.41$
Quartz	$N_p^S$ ( $10^{11} \text{ cm}^{-2}$ )		0.43	1.29	1.86
	$\Sigma$ ( $10^{-13} \text{ cm}^2$ )		$45.1 \pm 0.45$	$21.5 \pm 0.17$	$15.5 \pm 0.18$

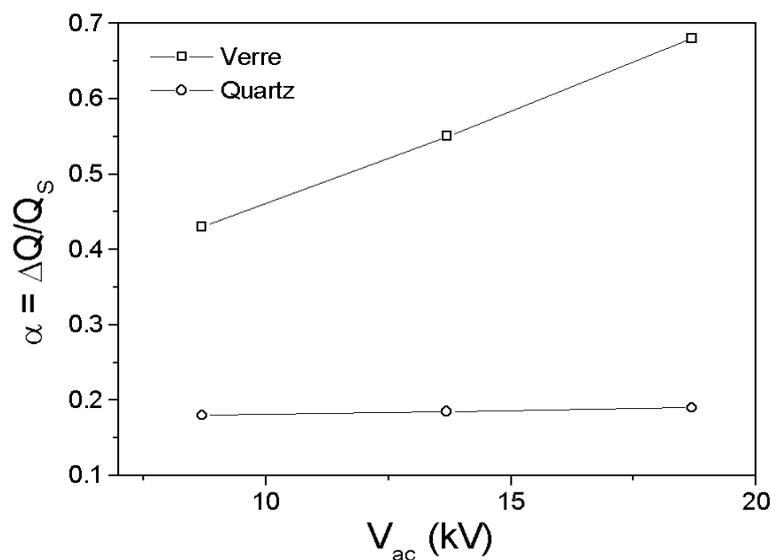
**Tableau.III.5 :** Valeurs de la densité des électrons piégés,  $N_p^S$  et de la section efficace effective de création de la charge négative,  $\Sigma$ .

Quand la tension d'accélération augmente on constate que la section efficace effective de piégeage  $\Sigma$  augmente dans le cas du verre tandis qu'elle diminue dans le cas du Quartz. Ce comportement est en accord avec celui des constantes de temps de charge quand l'énergie primaire augmente (voir tableau.III.4). Les ordres de grandeur concernant la section efficace effective indiquent que les principaux défauts responsables du piégeage des

électrons sont des centres d'attraction coulombiens pour lesquels la section efficace effective de piégeage se situe entre  $10^{-11}$  et  $10^{-14}$  cm<sup>2</sup> [14].

### III.4.2 Période de décharge

Les résultats de la figure.III.6 montrent clairement que la décharge débute immédiatement après l'arrêt du faisceau des électrons primaires et que cette dernière est partielle. Pour discuter l'influence de l'énergie primaire sur le phénomène de décharge, la notion de fraction de charge dépiégée,  $\alpha$  ( $\alpha = \Delta Q/Q_s$ ) [15], a été utilisée. L'évolution de cette grandeur en fonction de la tension d'accélération pour les deux isolants étudiés (verre et quartz) est représentée sur la figure.III.11.



**Fig.III.11** : Evolution de la fraction de charge dépiégée,  $\alpha$  ( $\alpha = \Delta Q / Q_s$ ) en fonction de la tension d'accélération (obtenu à partir de la Fig.III.6).

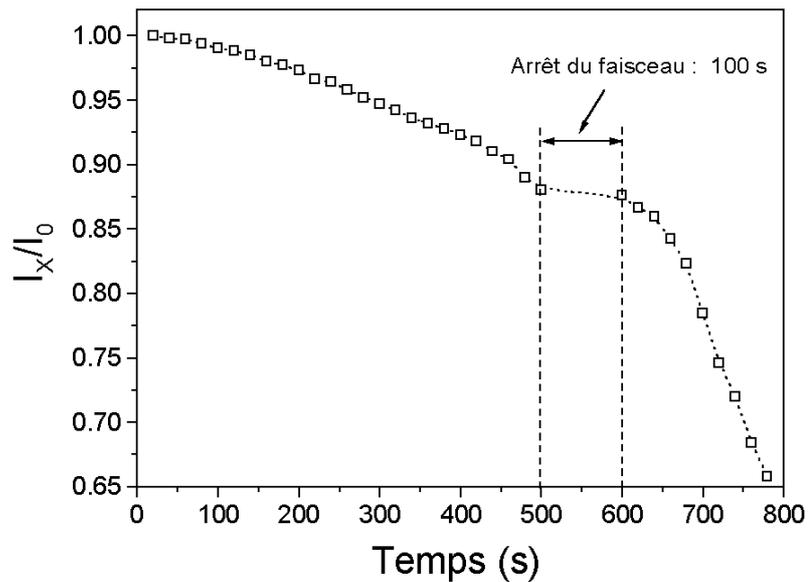
Quand la tension d'accélération augmente (augmentation de la charge piégée à la saturation), on constate que la fraction  $\alpha$  du verre augmente de façon significative alors que celle du quartz reste constante (en tenant compte des erreurs des mesures expérimentales et d'ajustement des courbes). L'augmentation de  $\alpha$  quand l'énergie primaire augmente résulte principalement de l'augmentation de la profondeur de pénétration des électrons primaires qui conduit à une augmentation de l'évacuation volumique de la charge. Dans le cas du quartz la valeur constante de  $\alpha$  indique que l'évacuation de la charge est essentiellement superficielle.

Les valeurs obtenues pour la constante de temps de décharge (voir Tableau.III.4) montrent que cette constante diminue pour le verre et augmente pour le quartz quand la tension d'accélération augmente.

Pour expliquer ces tendances on distingue trois types de constantes de temps [16], la première est la constante de temps de dépiégeage qui est très grande pour les isolants ayant une résistivité élevée; la seconde celle qui correspond au transport à partir d'un site de piégeage vers la surface (gouvernée par la conductivité DC et la constante diélectrique du matériau) et la troisième qui correspond à l'évacuation de la charge vers la masse (à travers la surface). La décharge par le mécanisme de conduction volumique doit avoir une constante de temps plus importante dans le cas du quartz (plusieurs heures [8]) que dans le cas du verre (quelques dizaines de secondes). Dans le cas du verre pendant la période de décharge la migration du sodium ne contribue pas à la conductivité car dès que le faisceau primaire est interrompu on constate que cette migration s'arrête également.

La vérification expérimentale de l'arrêt de la migration est illustrée sur la figure.III.12 qui représente l'évolution au cours du temps du signal X ( $\text{NaK}_\alpha$ ) émis par le sodium (espèce mobile dans le verre étudié) pendant deux phases d'irradiation séparées par une interruption du faisceau primaire d'une durée de 100 s. Au cours de la première phase d'irradiation, on constate que l'intensité du signal X diminue car les ions sodium migrent sous l'action du champ électrique généré. Au cours de la seconde phase d'irradiation, on constate que l'intensité de ce signal débute à la même valeur correspondant à la fin de la première phase. Cette dernière constatation montre clairement que le champ électrique interne résiduel n'est pas assez intense pour provoquer la migration des ions sodium.

Dans le cas du verre, la diminution de la constante de temps avec l'énergie primaire s'explique par le fait que le transport de la charge dépiégée à partir d'un site de piégeage à travers le volume devient plus facile. Cette explication est vérifiée par l'augmentation du courant de fuite (voir Fig.III.8) quand l'énergie primaire augmente. Dans le cas du quartz la conductivité étant uniquement superficielle, quand l'énergie primaire augmente la charge piégée est de plus en plus localisée en profondeur, la constante de temps correspondant au transport de la charge dépiégée à partir d'un site de piégeage vers la surface est de plus en plus grande, ce qui explique l'augmentation de la constante de temps de décharge avec l'augmentation de l'énergie primaire.



**Fig.III.12 :** Décroissance au cours du temps de l'intensité de la raie  $NaK_{\alpha}$  normalisée (par rapport à l'intensité au tout début de l'irradiation). tension d'accélération  $V_{ac} = 13.7$  kV, courant primaire  $I_0 = 2$  nA.

### III.5 Potentiel de surface

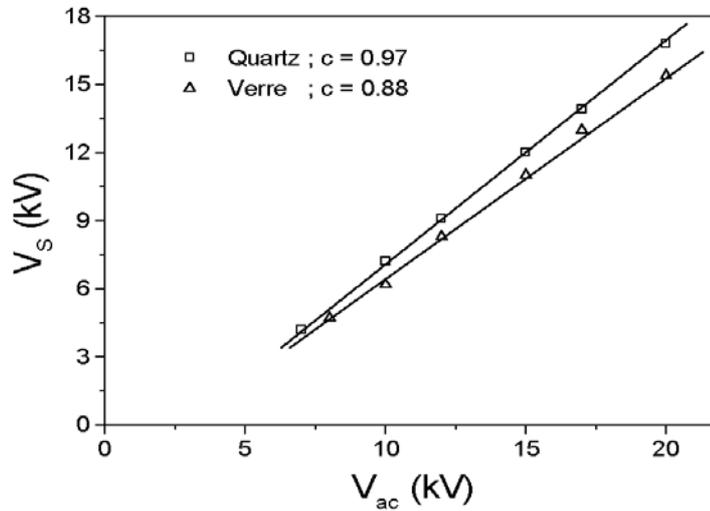
Pour atteindre l'état d'équilibre ( $\sigma = 1$ ) lors du bombardement électronique d'un isolant avec une tension d'accélération  $V_{ac}$  supérieure à l'énergie critique  $E_{CII}$  de l'approche conventionnelle, les électrons primaires doivent être assez ralentis dans le vide pour que leur énergie effective  $E_{eff}$  soit égale à  $E_{CII}$ . L'accroissement de  $V_{ac}$  devrait logiquement s'accompagner d'une augmentation du potentiel de surface. Ce potentiel est donné par l'expression suivante :

$$V_S = V_{ac} - (E_{CII} / e) = (E_0 - E_{CII}) / e \quad \text{(E.III.6)}$$

La représentation du potentiel de surface mesuré à l'état d'équilibre à l'aide du spectromètre toroïdal en fonction de la tension d'accélération (Fig.III.13) pour le verre et le quartz montre que ce potentiel croît de façon linéaire, cependant les pentes sont différentes de la pente prévue par l'approche conventionnelle (pente unité). Les pentes obtenues sont systématiquement inférieures à l'unité et valent dans le cas du verre et du quartz 0.88 et 0.97 respectivement.

Pour expliquer l'écart entre les pentes obtenues expérimentalement et celle de l'approche conventionnelle, il faut tenir compte du courant de fuite non considéré dans l'approche conventionnelle. En effet, l'intervention du courant de fuite dans les mécanismes de régulation de la charge est responsable d'une diminution du potentiel de surface à l'état

d'équilibre. Cette diminution est d'autant plus importante que la tension d'accélération est grande.



**Fig.III.13 :** Variation du potentiel de surface à l'équilibre en fonction de la tension d'accélération. Le courant primaire est de 2 nA et la surface irradiée est de 1600  $\mu\text{m}^2$ .

Notons que dans le cas du quartz la pente est très proche de l'unité car le poids de la contribution du courant de fuite dans l'équation de conservation du courant est faible alors que dans le cas du verre cette contribution est importante et provoque un écart de la pente par rapport à l'unité plus grand. En d'autres termes le désaccord entre l'approche conventionnelle et l'expérience est d'autant plus marqué que l'aptitude de l'isolant à évacuer la charge est grande.

### III.6 Rendement d'émission électronique total

Les mesures simultanées du courant d'influence et de fuite nous permettent non seulement d'étudier les phénomènes de charge et de décharge mais également de déterminer l'évolution du rendement d'émission électronique total  $\sigma$  au cours de l'irradiation. La méthode consiste à corréliser les deux courants simultanément mesurés pendant la période d'irradiation.

En utilisant l'équation de conservation du courant (E.I.9), l'évolution temporelle du rendement d'émission électronique total  $\sigma$  est donnée par :

$$\sigma(t) = 1 - \frac{I_L}{I_0} - \frac{1}{K} \frac{I_{inf}}{I_0} \quad (\text{E.III.7})$$

$I_L$  et  $I_{inf}$  sont respectivement les valeurs absolues des courants de fuite et d'influence mesurés au cours de l'irradiation.

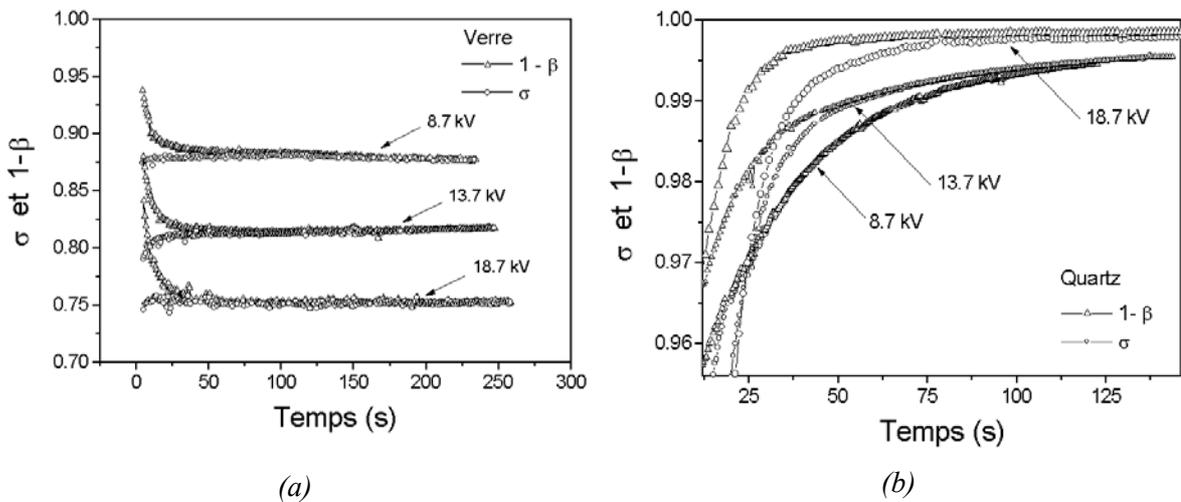
Quand le courant d'influence  $I_{inf}$  s'annule à l'état d'équilibre, le rendement d'émission électronique total à la saturation  $\sigma_s$  est égal à :

$$\sigma_s = \frac{I_\sigma}{I_0} = 1 - \frac{I_L}{I_0} = 1 - \beta_s \quad (\text{E.III.8})$$

Les figures.III.14 (a) et (b) représentent les courbes  $\sigma(t)$  obtenues respectivement pour le verre et le quartz et pour trois tensions d'accélération 8.7, 13.7 et 18.7 kV et un courant primaire fixe de 2nA.

On constate que  $\sigma$  augmente au cours de l'irradiation d'une manière continue jusqu'à l'état d'équilibre (saturation) indépendamment de la nature de l'échantillon et de la tension d'accélération. Notons que la valeur de  $\sigma$  à la saturation n'atteint pas l'unité car un courant de fuite est impliqué dans l'équation de conservation du courant (E.I.9).

L'évolution au cours du temps de la quantité  $1-\beta$  (où  $\beta$  est le rapport entre le courant de fuite et le courant primaire  $\beta = \frac{I_L}{I_0}$ ) est également représentée. Cette quantité diminue au cours du temps dans le cas du verre tandis qu'elle augmente dans le cas du quartz.



**Fig.III.14 :** Variation au cours du temps du rendement d'émission électronique total,  $\sigma$  et de la quantité  $1-\beta$  pour trois tensions d'accélération (8.7, 13.7 et 18.7 kV) et un courant primaire de 2 nA.

A l'état d'équilibre, la relation  $\sigma_s = 1 - \beta_s$  est vérifiée. Les résultats obtenus (voir Tableau.III.6) montrent que  $\sigma_s$  augmente avec la tension d'accélération dans le cas du quartz alors qu'il diminue dans le cas du verre. Ces tendances dépendent du courant de fuite qui augmente pour le verre et diminue pour le quartz quand la tension d'accélération augmente (voir Figures.III.8 et III.9). Notons que  $\sigma_s$  du quartz est très proche de l'unité car le

courant de fuite impliqué dans l'équation de conservation du courant est très faible. Dans le cas du verre  $\sigma_S$  est relativement loin de l'unité (de l'ordre de 20 %) car le courant de fuite est important. Ces résultats sont en accord avec les mesures du potentiel de surface présentées précédemment.

$V_{ac}$ (kV)	8.7	13.7	18.7
$\sigma_S$ (verre)	0.87	0.81	0.75
$\sigma_S$ (quartz)	0.994	0.995	0.998

*Tableau.III.6 : Les valeurs de  $\sigma_S$  pour le verre et le quartz à l'état d'équilibre pour trois tensions d'accélération et un courant primaire fixe à 2 nA*

### III.7 Détermination de l'énergie critique $E_{CII}$

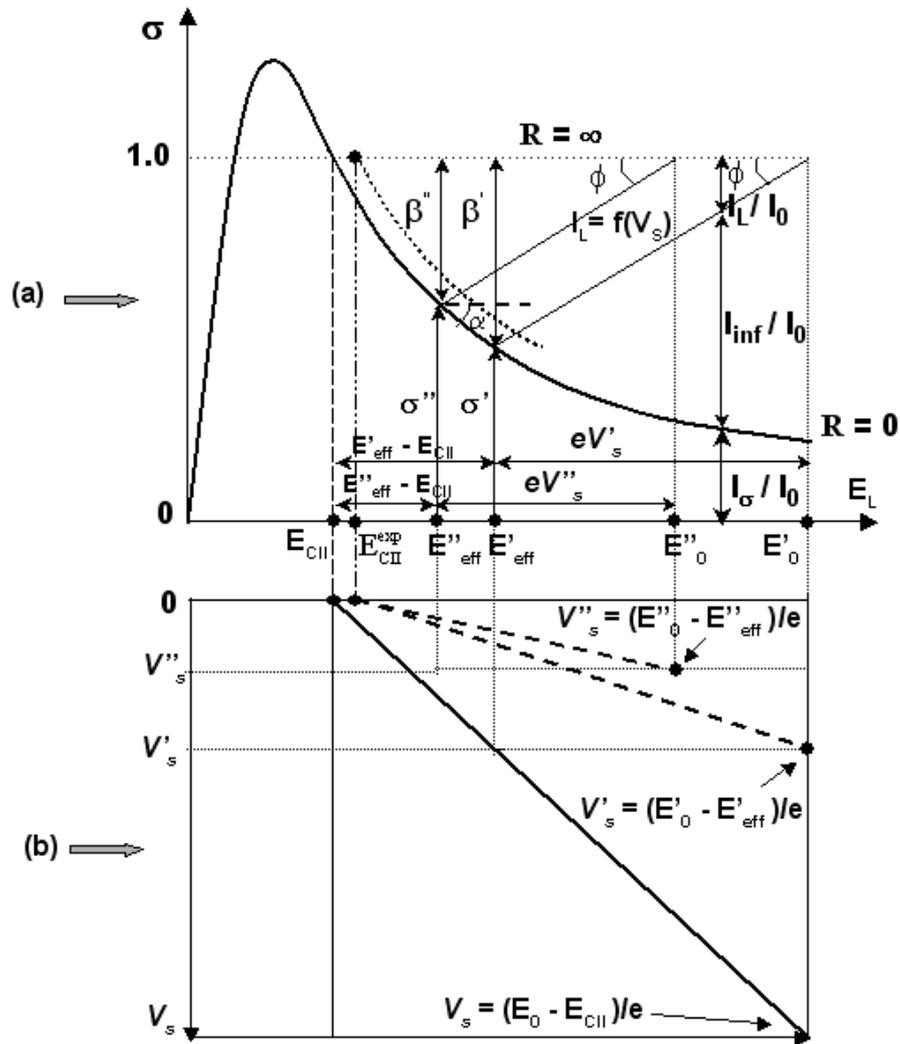
Dans cette partie, il sera question de déterminer l'énergie critique  $E_{CII}$  en mesurant le potentiel de surface à l'aide du spectromètre toroidal et en utilisant une procédure issue de l'approche conventionnelle. Cette approche est généralement utilisée pour décrire l'évolution de la charge piégée  $Q$ , ou le potentiel de surface  $V_S$ , sous irradiation permanente. A basses tensions d'accélération,  $V_{ac}$ , ( $eV_{ac} < E_{CII}$ ), l'incapacité de cette dernière de non seulement déterminer la valeur de  $V_S$  mais aussi de prédire le signe de la charge a été maintes fois constatée [17,18,19]) et récemment discutée [3]. Pour des tensions d'accélération, telles que,  $eV_{ac} > E_{CII}$ , seul le ralentissement dans le vide des électrons primaires et l'accroissement du taux d'émission électronique secondaire qui en résulte, sont en général pris en compte dans la régulation de la charge. L'état d'équilibre ( $\sigma = 1$ ) correspond à une énergie effective  $E_{eff}$  égale à l'énergie critique  $E_{CII}$ . Cette dernière est généralement considérée comme dépendante de la nature de l'échantillon (composition chimique [20], structure [21], contamination [22,23], etc.) mais indépendante de la quantité de charges piégées qui implique le courant de fuite. Ainsi, la procédure que nous suggérons tiendra compte de l'effet due à ce courant négligé jusqu'alors dans cette approche et permettra d'étudier son influence sur l'énergie critique.

#### III.7.1 Procédure :

##### III.7.1.1 Position du problème

En absence de courant de fuite  $I_L = 0$  (correspondant à une résistance infinie de l'isolant,  $R = \infty$ ) le potentiel électrostatique négatif  $V_S$  (expression (E.III.6)) qui se développe à la surface de l'isolant sous irradiation électronique est responsable de la diminution de l'énergie effective  $E_{eff}$  des électrons incidents à partir d'une énergie primaire donnée  $E_0$  ( $E_0 >$

$E_{CII}$ ), jusqu'à l'énergie critique  $E_{CII}$ . Le rendement d'émission électronique secondaire  $\sigma$  augmente alors pour atteindre l'unité.



**Fig.III.15 :** (a): Représentation schématique du rendement d'émission électronique total en fonction de l'énergie effective des électrons primaires. Les énergies  $E_{eff}'$  et  $E_{eff}''$  sont les énergies effectives correspondant aux énergies primaires  $E_0'$  et  $E_0''$  respectivement. Représentation du courant de fuite en fonction du potentiel de surface. (b): Variation du potentiel de surface en fonction de l'énergie effective des électrons primaires. Les potentiels de surface correspondant aux énergies primaires  $E_0'$  et  $E_0''$  sont respectivement  $V_s'$  et  $V_s''$ .

Dans ce cas idéal le potentiel de surface à l'équilibre en fonction de l'énergie primaire (i.e.  $V_s = (E_0 - E_{CII})/e$ ) suit la droite en continue représentée sur la figure.III.15 (b). Le potentiel a pour origine le point d'énergie  $E_{CII}$  (isolant non chargé) et croit linéairement avec l'énergie primaire  $E_0$ .

En réalité la résistance d'un isolant n'est pas infinie et présente une résistance effective,  $R_{\text{eff}}$  résultant de l'association en parallèle d'une résistance volumique,  $R_V$ , et d'une résistance surfacique  $R_S$ . Cette résistance  $R_{\text{eff}}$  est donnée par l'expression suivante [24]:

$$R_{\text{eff}} = R_V R_S / (R_V + R_S) \quad (\text{E.III.9})$$

La résistance surfacique reste souvent très inférieure à celle du volume (i.e.  $R_S \ll R_V$ ) et l'évacuation des charges peut s'effectuer à travers la surface de l'isolant et le courant de fuite ( $I_L = \beta I_0$ ) existe toujours même s'il est parfois faible et dépend du potentiel de surface généré (ou de la quantité de charges piégées). La variation de ce courant,  $I_L$ , en fonction de  $V_S$  ( $I_L = f(V_S)$ ) est donnée sur la figure.III.15 (a) pour deux énergies primaires  $E_0'$  et  $E_0''$  ( $E_0' > E_0''$ ). L'angle  $\phi$  entre la droite  $I_L = f(V_S)$  et l'horizontale correspondant à  $\sigma = 1$  permet de caractériser cette variation. Deux cas particuliers sont à noter,  $\phi = \pi/2$  qui correspond à  $R = 0$  et  $\phi = 0$  qui correspond à  $R = \infty$  ( $E_{\text{eff}} = E_{\text{CII}}$  et  $\sigma = 1$ ).

La prise en compte du courant de fuite dans l'équation de conservation du courant (voir représentation au début de l'irradiation sur la figure.III.15 (a) avec  $(I_L + I_Q + I_\sigma) / I_0 = 1$ ) conduit à un état d'équilibre différent de celui prévu par l'approche conventionnelle. Cet état d'équilibre qui correspond à une variation au cours du temps de la charge piégée nulle ( $I_d = I_Q = dQ/dt = 0$ ) et un potentiel de surface  $V_S$  stable est atteint pour une énergie effective des électrons primaires  $E_{\text{eff}}(\text{équi})$  supérieure à  $E_{\text{CII}}$  où  $\sigma + \beta = 1$  et non  $\sigma = 1$  (voir Fig.III.15 (a)). Cette énergie est donnée par l'abscisse du point d'intersection des courbes  $\sigma(E_0)$  et  $I_L = f(V_S)$  [25]. Le potentiel de surface ne vérifie plus l'équation (E.III.6) mais plutôt l'expression suivante :

$$V_S = (E_0 - E_{\text{eff}}(\text{équi})) / e \quad (\text{E.III.10})$$

Nombreux sont les travaux consacrés à la détermination du potentiel de surface connaissant l'énergie critique  $E_{\text{CII}}$  en utilisant des expressions judicieusement établies.

Aristov [24] propose le rapport suivant:

$$V_S = (E_0 - E_{\text{CII}}) \frac{k I_0 R_{\text{eff}}}{1 + k I_0 R_{\text{eff}}} \quad (\text{E.III.11})$$

Où  $k$  est la tangente de la courbe  $\sigma(E_0)$  à proximité du point  $\sigma = 1$ .

Dans les travaux de Joy [26] le potentiel de surface est donné par :

$$eV_S = \frac{(E_0 - E_{\text{CII}}) I_0 f_0 R_{\text{eff}}}{(E_0 - E_{\text{CII}}) + I_0 f_0 R_{\text{eff}}} \quad (\text{E.III.12})$$

Où  $f_0 = [1 - \sigma(E_0)]$

Frank [27] propose l'expression suivante :

$$V_s = (E_L - E_{CII}) R_{\text{eff}} I_0 (d\sigma / dE) \quad (\text{E.III.13})$$

Où  $E_L = E_0 - e V_s$

Et enfin Song [6] utilise la relation suivante:

$$V_s = \frac{(\sigma(E_{CII}) - \sigma(E_0))(E_0 - E_{CII})}{1 - \sigma(E_0)} \quad (\text{E.III.14})$$

Ces expressions sont fondamentalement identiques et nécessitent à priori la connaissance des constantes notamment  $\sigma(E_0)$ ,  $f_0$  et  $R_{\text{eff}}$  qui ne sont pas toujours accessibles expérimentalement.

Par rapport à l'ensemble des travaux cités, dans notre étude nous adoptons une démarche inverse qui consiste à déterminer l'énergie critique  $E_{CII}$  en mesurant tout simplement le potentiel de surface (sous irradiation permanente) et en tenant compte de l'effet du courant de fuite responsable du déplacement de cette énergie vers une énergie  $E_{CII}^{\text{exp}}$  plus élevée. Cette énergie correspond à l'état d'équilibre ( $\sigma = 1$ ) quand la courbe discontinue est décrite (voir Fig.III.15 (a)). Le courant de fuite qui provoque la diminution du potentiel de surface (pente de la droite  $V_s(E_0)$  inférieure à l'unité : voir paragraphe précédent) entraîne l'augmentation de l'énergie effective à l'équilibre (voir Fig.III.15 (a)) et par conséquent la translation de la courbe donnée par l'approche conventionnelle vers les hautes énergies. On assiste également à une augmentation de la valeur de  $\sigma$  à l'équilibre car le champ électrique à l'interface vide-isolant généré par la charge négative piégée est responsable de la diminution de l'affinité électronique de l'isolant irradié [3,9,28]. Ainsi si on considère la variation temporelle de  $\sigma$ , la valeur  $E_{CII}^{\text{exp}}$  est atteinte plus rapidement que celle prévue par l'approche conventionnelle.

Suite à l'ensemble de ces considérations, il s'avère donc nécessaire d'apporter une correction à l'effet du courant de fuite pour déterminer la valeur de l'énergie critique  $E_{CII}$ .

### III.7.1.2 Formalisme proposé tenant compte du courant de fuite

Si on considère deux énergies primaires  $E_0'$  et  $E_0''$  différentes (avec  $E_0' > E_0''$ ) et un courant primaire  $I_0$  fixe, leurs potentiels de surface respectifs à l'état d'équilibre seront  $V_s'$  et  $V_s''$  tels que  $V_s' > V_s''$  (en valeur absolue). Les énergies effectives correspondantes sont respectivement  $E_{\text{eff}}'$  et  $E_{\text{eff}}''$  telle que  $E_{\text{eff}}' > E_{\text{eff}}''$  ( voir Fig.III.15 (a)). La conservation de la charge à l'équilibre pour ces deux énergies conduit à  $\beta' = 1 - \sigma'$  et  $\beta'' = 1 - \sigma''$  avec  $\beta'$  et  $\beta''$  les rapports des courants de fuite et du courant primaire respectifs. La fonction  $\sigma(E_0)$  dans

l'intervalle d'énergie  $[E_{CII}, E'_{eff}]$  peut être considérée en première approximation comme une droite de pente :

$$\operatorname{tg} \alpha = \frac{\beta'}{E'_{eff} - E_{CII}} \quad (\text{E.III.15})$$

avec  $E'_{eff} = E'_0 - e V'_S$

Cette équation reste valable dans l'intervalle  $[E_{CII}, E''_{eff}]$  telle que

$$\operatorname{tg} \alpha = \frac{\beta'}{E'_{eff} - E_{CII}} = \frac{\beta''}{E''_{eff} - E_{CII}} = \frac{\beta' - \beta''}{E'_{eff} - E''_{eff}} \quad (\text{E.III.16})$$

avec  $E''_{eff} = E''_0 - e V''_S$

Cette équation conduit à:

$$\frac{\beta'}{\beta''} = \frac{E'_{eff} - E_{CII}}{E''_{eff} - E_{CII}} \quad (\text{E.III.17})$$

En tenant compte de la relation  $\beta = \frac{e V_S}{e I_0 R_{eff}}$  [24,25], l'angle  $\phi$  est donné par (voir Fig.III.15

(a)) :

$$\operatorname{tg} \phi = \frac{\beta'}{e V'_S} = \frac{\beta''}{e V''_S} \quad (\text{E.III.18})$$

Ou encore 
$$\frac{\beta'}{\beta''} = \frac{V'_S}{V''_S} \quad (\text{E.III.19})$$

En substituant cette expression dans l'équation (E.III.17), on obtient la relation suivante :

$$\frac{V'_S}{V''_S} = \frac{E'_{eff} - E_{CII}}{E''_{eff} - E_{CII}} \quad (\text{E.III.20})$$

Qui nous permet d'avoir l'expression donnant l'énergie  $E_{CII}(\text{eff})$  à tout instant d'irradiation telle que :

$$E_{CII}(\text{eff})(t) = \frac{V'_S(t) E''_0 - V''_S(t) E'_0}{V'_S(t) - V''_S(t)} \quad (\text{E.III.21})$$

A l'équilibre, cette énergie correspond à l'énergie critique  $E_{CII}$  (pour les isolants non chargés).

Cette énergie peut être également exprimée en fonction du courant de fuite  $I_L$  ou en fonction de la charge piégée  $Q$  :

$$E_{\text{CII}}(\text{eff})(t) = \frac{I_L'(t) E_0'' - I_L''(t) E_0'}{I_L'(t) - I_L''(t)} \quad (\text{E.III.22})$$

$$E_{\text{CII}}(\text{eff})(t) = \frac{Q'(t) E_0'' - Q''(t) E_0'}{Q'(t) - Q''(t)} \quad (\text{E.III.23})$$

### III.7.2 Influence de la contamination

l'adsorption stimulée par irradiation électronique d'espèces chimiques notamment les hydrocarbures provenant des vapeurs d'huile de la pompe à diffusion, relative à la qualité du vide dans les MEB (en général la pression résiduelle est de l'ordre de  $10^{-4}$  à  $10^{-6}$  Torr) conduit au dépôt d'une couche de contamination sur la zone irradiée. La présence de cette couche de contamination à la surface de l'isolant peut provoquer une diminution de l'émission secondaire et par conséquent une diminution de l'énergie critique  $E_{\text{CII}}$ . En effet l'émission électronique totale en présence d'une couche de contamination est donnée par la relation suivante [29]:

$$\delta = \delta_c + (\delta_s - \delta_c) \exp(-d_c / z_c) \quad (\text{E.III.24})$$

avec  $\delta_c$  le coefficient d'émission électronique secondaire de la couche de contamination et  $\delta_s$  celui du substrat isolant.  $z_c$  est la profondeur moyenne d'échappement des électrons secondaires dans la couche de contamination d'épaisseur  $d_c$ . Cette épaisseur peut être approchée par une fonction linéaire du temps d'irradiation donnée par [29,30] :

$$d_c = k t = 0.2 \text{ (nm/s) } t(\text{s}) \quad (\text{E.III.25})$$

$d_c$  dépend de la température, de la pression résiduelle dans la chambre objet du MEB, du courant primaire, du mode et de la vitesse de balayage et de la surface irradiée [31,32].

Ainsi au cours de l'irradiation l'augmentation de l'épaisseur de la couche de contamination conduit à une diminution de l'émission électronique totale  $\sigma$  (équation (E.III.24)) et par conséquent à la translation de  $\sigma(E_0)$  vers les basses énergies qui entraîne une diminution de l'énergie critique  $E_{\text{CII}}$ . Une autre interprétation de la diminution de la valeur de  $\sigma$  en présence d'une couche de contamination consiste à considérer les interactions supplémentaires des électrons secondaires avec les électrons de la bande de conduction de la couche de contamination (formée essentiellement de carbone) qui sont responsables de la réduction du libre parcours moyen des électrons secondaires [3] ainsi qu'une partielle recombinaison des électrons à l'interface vide-isolant. La probabilité d'échappement d'un électron secondaire généré en dessous de la surface se trouve alors diminuée. L'ensemble

de ces effets provoque l'augmentation du potentiel de surface (diminution de l'énergie effective) et par conséquent la diminution de l'énergie critique  $E_{CII}$ .

Dans cette étude la contribution de la contamination aux mécanismes de régulation de la charge n'est pas prise en compte (la valeur de l'énergie critique  $E_{CII}$  ne diminue pas) car elle est négligeable devant les autres contributions (émission secondaire et courant de fuite). En effet l'épaisseur de la couche de contamination est très faible dans le cadre des conditions d'irradiation utilisées (zone irradiée large et mode de balayage TV ). Notons que pour des intensités de courant primaire comparables, une injection de courte durée (une dizaine de ms), et en sonde fixe focalisée, induit autant de contamination qu'une irradiation d'une durée de 100 s et étalée sur une surface de  $(100 \times 100 \mu\text{m}^2)$  [29].

La contamination de la surface de l'isolant irradié peut également induire une augmentation de la conductivité effective de cette surface et favorise alors l'écoulement des charges vers la masse (porte échantillon). Dans des cas extrêmes, comme le montrent les travaux de Taniguchi et co [33] sur le diamant, la contamination est susceptible d'éliminer tout effet de charge visible à la surface de l'échantillon. L'augmentation de la conductivité superficielle conduit à une augmentation du courant de fuite qui provoque le déplacement de  $\sigma = f(E_0)$  et par conséquent celui de l'énergie critique vers les hautes énergies (voir paragraphe précédent).

### III.7.3 Résultats expérimentaux

Dans cette section nous allons appliquer la procédure décrite précédemment pour déterminer la valeur critique  $E_{CII}$  des échantillons suivants :  $\text{SiO}_2$  (ECH.4), PMMA (ECH.3), Verre (ECH.1), Quartz (ECH.2), Saphir (ECH.5) ). Les mesures auxquelles est appliquée cette procédure sont soit des mesures du potentiel de surface (E.III.21) soit des mesures du courant de fuite (E.III.22) ou soit encore des mesures de la charge piégée (E.III.23).

#### III.7.3.1 Détermination de $E_{CII}$ à l'aide du potentiel de surface

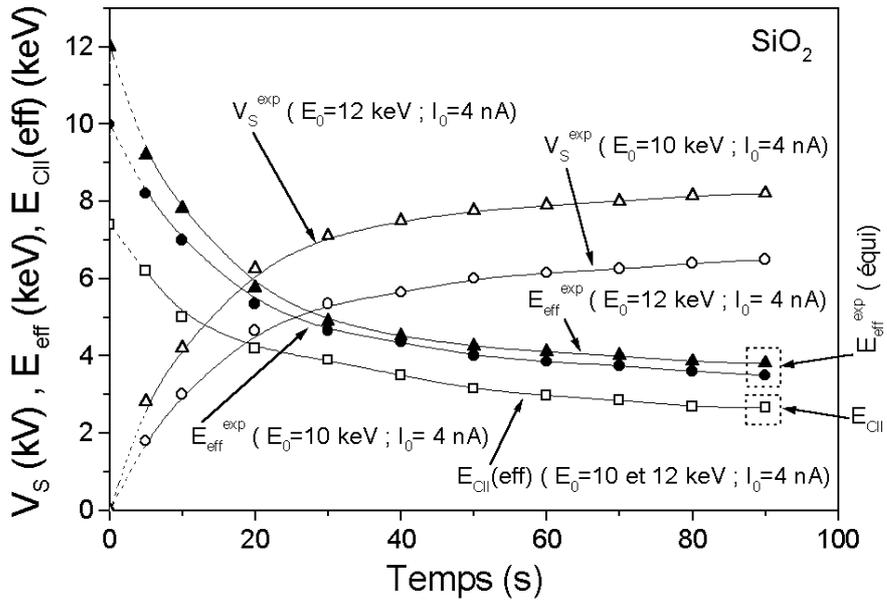
Le potentiel de surface a été mesuré en mode (TV) et pour une zone irradiée de  $1600 \mu\text{m}^2$ . Sur la figure.III.16 (a), nous présentons la variation temporelle de ce potentiel dans le cas de  $\text{SiO}_2$  (ECH.4) à deux tensions d'accélération (10 et 12 keV) et un courant primaire de 4 nA. On constate que la variation temporelle du potentiel de surface présente la même allure indépendamment de la tension d'accélération. Elle augmente au début de l'irradiation pour atteindre ensuite la saturation. Cependant les constantes de temps sont différentes et la valeur du potentiel à la saturation est plus grande pour la tension d'accélération la plus élevée. Sur la même figure la variation au cours du temps des énergies effectives correspondantes (E.II.1) a été également présentée. Ces énergies sont égales aux énergies primaires tout au début de l'irradiation puis diminuent au cours de cette irradiation au fur et à

mesure que le potentiel de surface augmente pour atteindre leurs valeurs minimales stables à l'état d'équilibre ( $E_{\text{eff}}^{\text{exp}}$  (équi)).

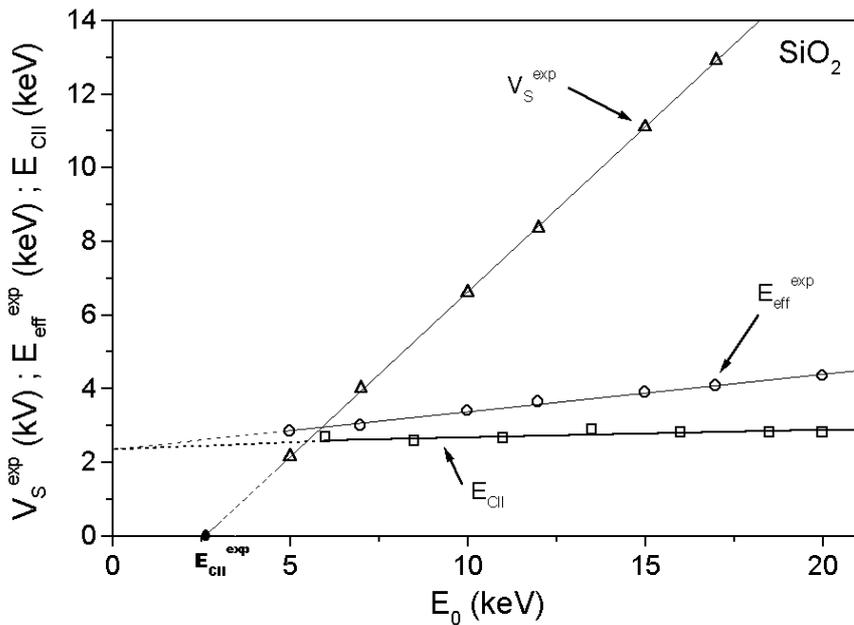
La variation temporelle de l'énergie critique effective  $E_{\text{CII}}(\text{eff})$  déduite de l'équation (E.III.21) tenant compte de l'effet du courant de fuite est également représentée sur la figure.III.16 (a). A l'équilibre cette énergie correspond à l'énergie critique  $E_{\text{CII}}$  et vaut 2.3 keV (en tenant compte de l'effet du courant de fuite).

Sur la figure.III.16 (b), l'évolution en fonction de l'énergie primaire du potentiel de surface à l'état d'équilibre dans le cas de  $\text{SiO}_2$  a été représentée et on constate que la pente de la droite obtenue est inférieure à l'unité (0.89). L'extrapolation de la droite à l'état de potentiel nul permet d'accéder à la valeur de l'énergie critique  $E_{\text{CII}}^{\text{exp}}$  (abscisse de l'intersection de la droite avec l'axe des énergies qui vaut 2.65 keV). Sur la même figure nous avons également représenté la valeur de l'énergie critique  $E_{\text{CII}}$  déduite de l'équation (E.III.21). La droite obtenue, en tenant compte des erreurs expérimentales liées à la mesure du potentiel de surface, est pratiquement indépendante de l'énergie primaire. L'écart entre la valeur de  $E_{\text{CII}}^{\text{exp}}$  et la valeur de l'énergie critique  $E_{\text{CII}}$  correspond à l'effet du courant de fuite (voir tableau.III.7).

La même procédure expérimentale a été également appliquée au PMMA (ECH.3) et au verre (ECH.1). Les résultats obtenus sont représentés sur les figures III.17 et III.18 respectivement. On constate que dans le cas du PMMA la capacité à évacuer les charges excédentaires est faible et le potentiel de surface augmente très rapidement au cours de l'irradiation. La pente de la droite représentant le potentiel de surface en fonction de l'énergie primaire est proche de l'unité. La valeur de l'énergie critique  $E_{\text{CII}}$  est légèrement inférieure à celle de  $E_{\text{CII}}^{\text{exp}}$  (voir tableau.III.7).

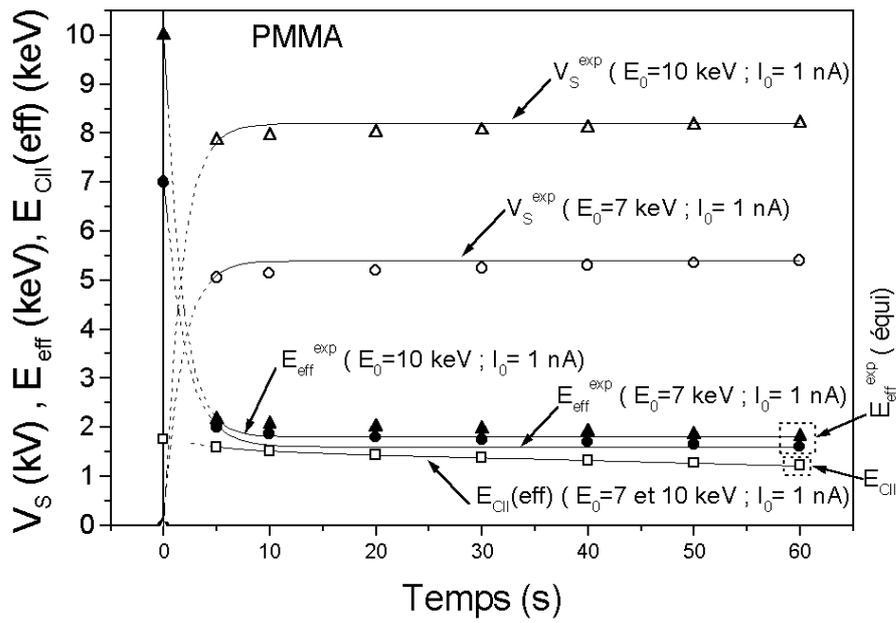


(a)

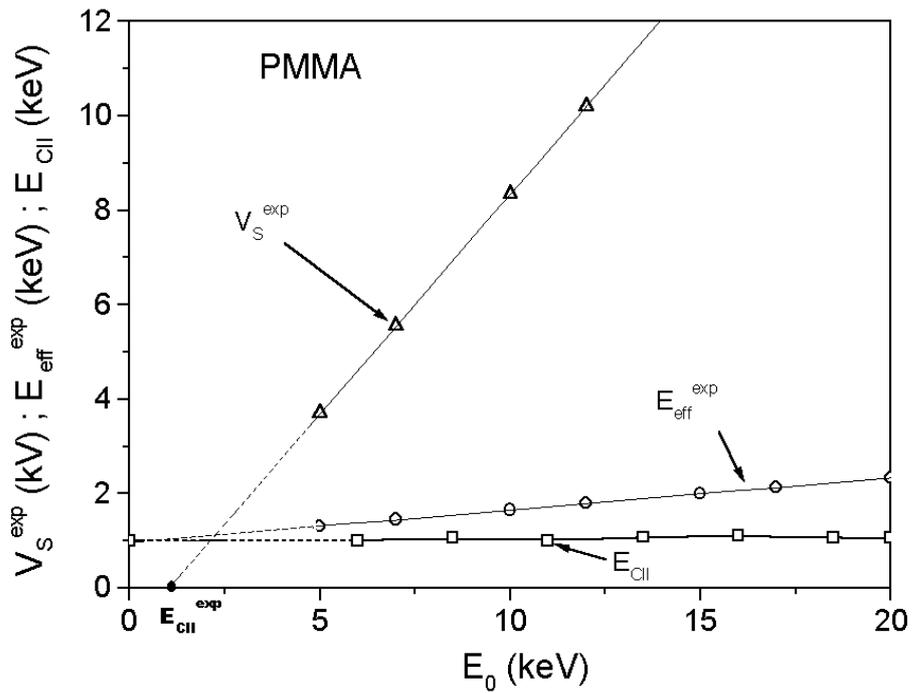


(b)

**Fig.III.16 :** (a) : Variation au cours du temps de  $V_S$ ,  $E_{eff}$  et  $E_{CII}(eff)$  (déduit de l'équation (E.III.21)) pour deux tensions d'accélération (10 et 12 kV) et un courant primaire de 4 nA. (b): Variation en fonction de l'énergie primaire de  $V_S$  et  $E_{eff}$  à l'équilibre. Valeur de  $E_{CII}$  (déduite de l'équation (E.III.21)) pour différentes énergies à l'équilibre.

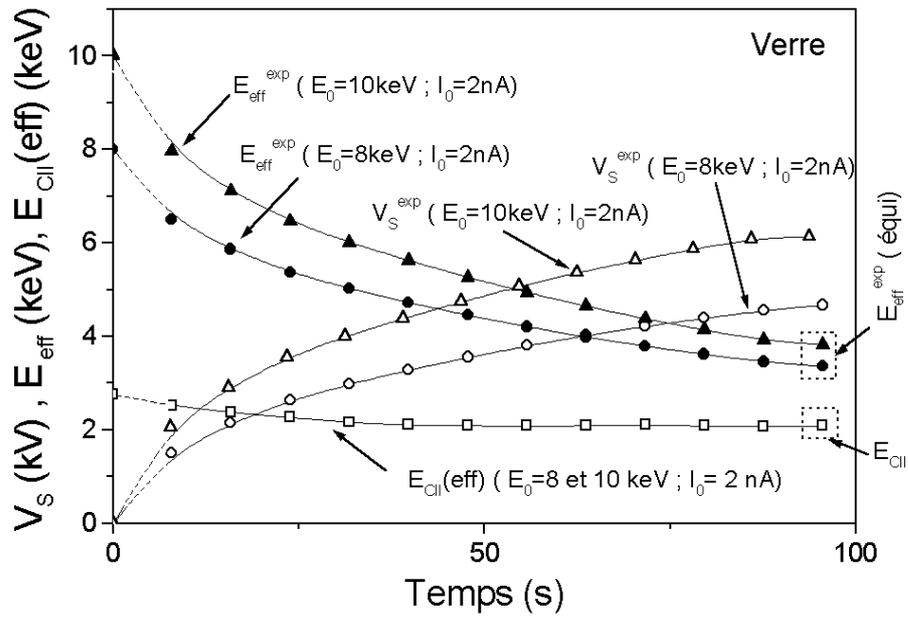


(a)

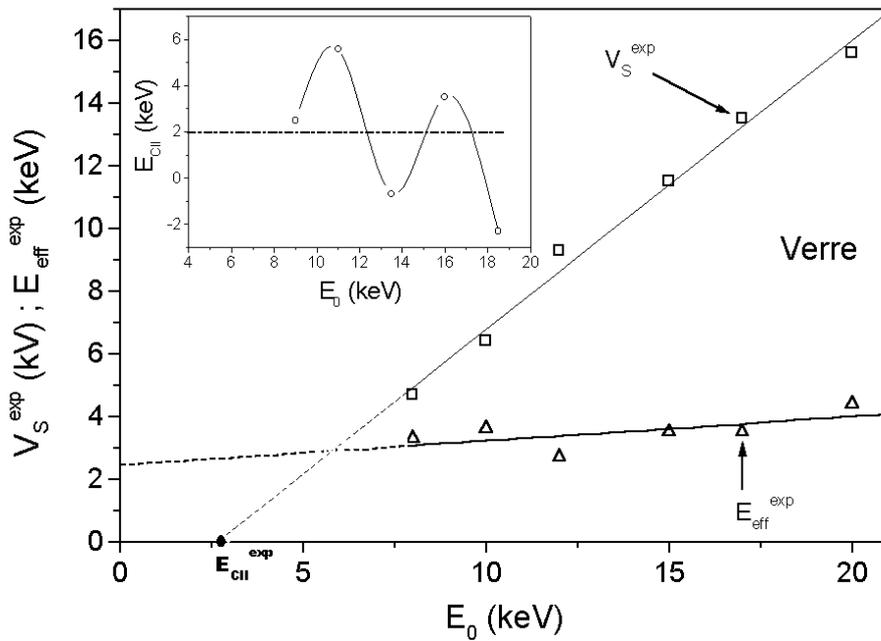


(b)

**Fig.III.17:** (a) : Variation au cours du temps de  $V_S$ ,  $E_{eff}$ ,  $E_{ClI}(eff)$  (déduit de l'équation (E.III.21)) pour deux tensions d'accélération (7 et 10 kV) et un courant primaire de 1nA. (b): Variation en fonction de l'énergie primaire  $V_S$ ,  $E_{eff}$  à l'équilibre. Valeur de  $E_{ClI}$  (déduite de l'équation (E.III.21)) pour différentes énergies à l'équilibre.



(a)



(b)

**Fig.III.18 :** (a) : Variation au cours du temps de  $V_S$ ,  $E_{eff}$ ,  $E_{CII}(eff)$  (déduit de l'équation (E.III.21) pour deux tensions d'accélération (8 et 10 kV) et un courant primaire de 2nA. (b): Variation en fonction de l'énergie primaire  $V_S$ ,  $E_{eff}$  à l'équilibre. Dans l'encart, la valeur de  $E_{CII}$  (déduite de l'équation (E.III.21)) pour différentes énergies à l'équilibre.

Dans le cas du verre, matériau instable sous irradiation électronique à cause de la présence d'ions sodium mobiles, la situation est plus complexe. L'application de l'équation (E.III.21) à l'équilibre pour différentes énergies n'est plus vérifiée vu l'écart différent et non constant entre les états d'équilibres. En effet, on constate que l'énergie critique  $E_{CII}$  n'est pas une constante mais subit des fluctuations d'autant plus importantes que l'énergie primaire est élevée (voir encart de la figure.III.18 (b)). Ces fluctuations sont probablement dues à la migration des ions de sodium sous l'action du champ électrique induit par les charges piégées, cette migration qui intervient dans le mécanisme de régulation de la charge est d'autant plus importante quand l'énergie primaire augmente. Ainsi la valeur de  $E_{CII}$  a été déterminée à basses énergies pour minimiser l'effet de la migration des ions sodium (Fig.III.18 (a)).

Le tableau.III.7 regroupe les valeurs de  $E_{CII}^{exp}$  et  $E_{CII}$  ainsi que la pente de  $V_S=f(E_0)$  pour les trois matériaux isolants étudiés. Ce tableau montre clairement que le courant de fuite est un paramètre important qui conditionne la valeur de l'énergie critique  $E_{CII}$ . Notons que l'écart le plus important entre  $E_{CII}^{exp}$  et  $E_{CII}$  a été obtenu pour le matériau présentant le courant de fuite le plus important (le verre) .

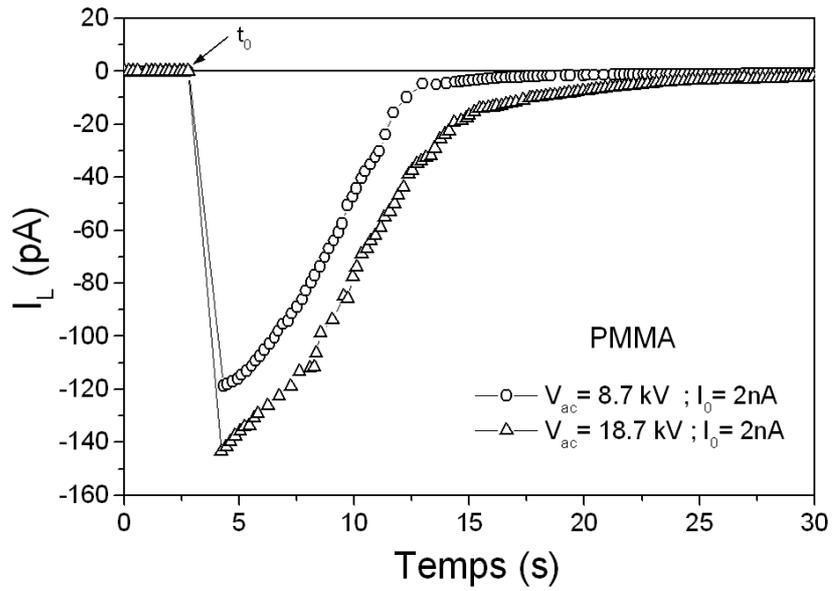
	SiO <sub>2</sub>	PMMA	Verre
$E_{CII}^{exp}$	2.65	1.1	2.75
$E_{CII}$	2.3	1	2
Pente	0.89	0.93	0.88

**Tableau.III.7** : valeurs de la pente (représentant la variation de  $V_S$  en fonction de  $E_0$ ), de  $E_{CII}^{exp}$  et de  $E_{CII}$  pour différents isolants étudiés.

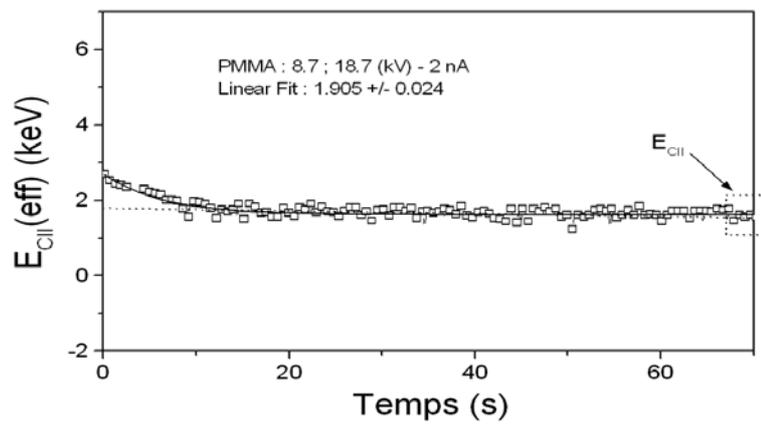
### III.7.3.2 Détermination de $E_{CII}$ à l'aide du courant de fuite ou de la charge piégée

Pour déterminer l'énergie  $E_{CII}$  nous utilisons la variation du courant de fuite au cours de l'irradiation pour deux tensions d'accélération différentes pour le PMMA (ECH.3) (voir Fig.III.19 (a)). En utilisant ces résultats et à l'aide de l'équation (E.III.22) l'évolution au cours du temps de l'énergie critique effective  $E_{CII}(eff)$  a été déterminée (voir figure.III.19 (b)). Les valeurs de cette énergie à l'équilibre correspondant à  $E_{CII}$  ( $E_{CII} = 1.9$ ).

De même nous utilisons la variation de la charge piégée au cours du temps pour deux énergies primaires différentes dans le cas du quartz (voir Fig.III.20 (a)). La valeur  $E_{CII}$  obtenue (E.III.23) est de 6 keV (voir Fig.III.20 (b)) et est en accord avec la valeur trouvée par Wong [20].

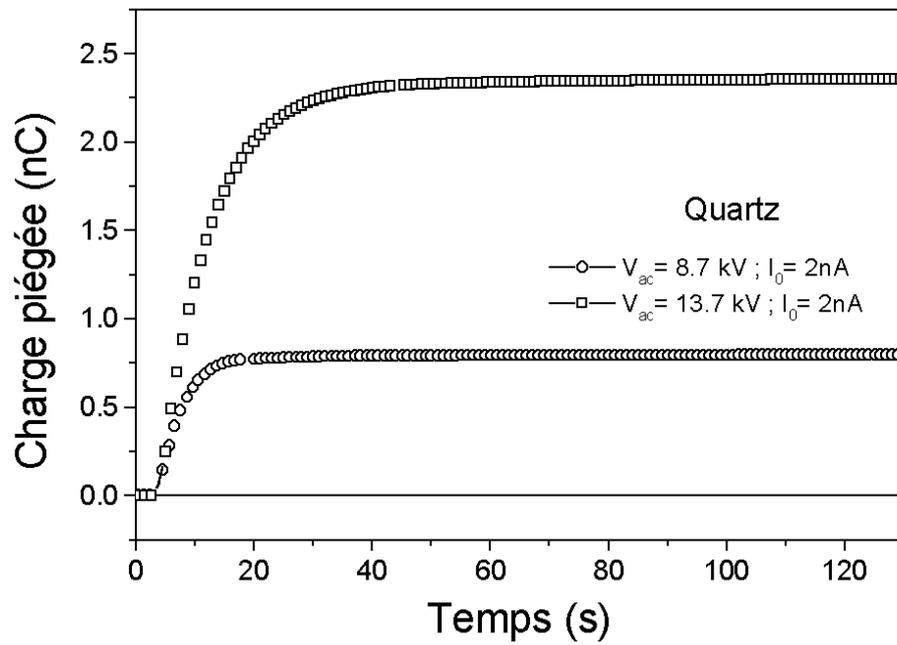


(a)

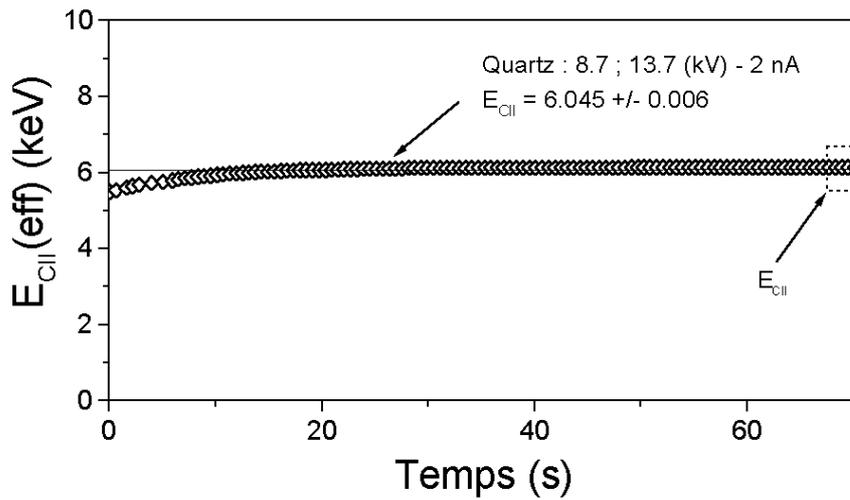


(b)

**Fig.III.19 :** (a): Variation du courant de fuite au cours du temps pour deux tensions d'accélération pour le PMMA. (b): Variation au cours du temps de  $E_{CII}(eff)$  (dédit de l'équation (E.III.22)).



(a)



(b)

**Fig.III.20 :** (a): Variation de la charge piégée au cours du temps de l'irradiation pour deux tensions d'accélération pour le Quartz. (b): Variation au cours du temps de  $E_{CII}(eff)$  (dédit de l'équation (E.III.23)).

### III.8 Conclusion

Nous avons vu que les phénomènes de charge dans les isolants soumis à une irradiation électronique dépendent essentiellement de trois facteurs, les paramètres reliés à l'injection électronique, les caractéristiques de l'échantillon et l'effet de la charge elle-même. Les phénomènes de décharge quant à eux dépendent uniquement des deux derniers facteurs. Nous avons vu également que la connaissance de l'ensemble de ces facteurs est primordiale pour mieux comprendre les mécanismes de régulation de la charge d'une part et déterminer la quantité de charges piégées d'autre part.

Dans ce chapitre, à partir de mesures simultanées du courant d'influence et de fuite, nous avons déterminé la quantité de charges piégées et son évolution pendant et après l'irradiation. Plusieurs matériaux isolants ont été étudiés, et des comportements électriques différents face à une irradiation électronique ont été remarqués. Les mécanismes des phénomènes de charge et de décharge ainsi que la variation des constantes de temps de ces phénomènes en fonction de l'énergie primaire ont été analysés. Le rôle important joué par le courant de fuite dans ces phénomènes a été largement discuté.

Les mesures simultanées du courant d'influence et de fuite ont été également utilisées pour déterminer la variation temporelle du rendement d'émission électronique total  $\sigma$  pendant le processus d'irradiation. En tenant compte du courant de fuite dans l'équation de conservation du courant, on vérifie que la valeur de  $\sigma$  n'atteint pas l'unité à l'état d'équilibre.

A l'aide des mesures du potentiel de surface en utilisant le spectromètre toroïdal, des mesures du courant de fuite ou encore de la charge piégée, la détermination de la valeur de l'énergie critique  $E_{CII}$  d'un isolant sous irradiation permanente est désormais possible. Cette énergie a été déterminée pour toute une gamme de matériaux isolants par une nouvelle méthode utilisant une procédure basée sur l'approche conventionnelle et tenant compte de l'influence du courant de fuite sur les mécanismes de charge.

### Références Bibliographique chapitre III

- [1] O. Jbara, S. Fakhfakh, M. Belhaj, J. Cazaux, E.I. Rau, M. Filippov and M.V. Andrianov, Nucl. Instr. and Meth. In Phys. Res B. **194**, 302 (2002).
- [2] M. Belhaj, O. Jbara, S. Odof, K. Msellak, E.I. Rau and M.V. Andrianov, Scanning. **22**, 352 (2000).
- [3] J. Cazaux, J. Appl. Phys. **85**, 1137 (1999).
- [4] D. C Joy, Scanning. **11**, 1 (1989).
- [5] L. Reimer, Scanning Electron Microscopy, Physics of Image Formation and Microanalyses (Springer, Berlin, 1985).
- [6] Z. G. Song, C. K. Ong and H. Hong, J. Appl. Phys. **79**, 7123 (1996).
- [7] M. Belhaj, S. Odof, K. Msellak and O. Jbara, J. Appl. Phys. **88**, 2289 (2000).
- [8] S.Fakhfakh, O.Jbara, M.Belhaj, Z.Fakhfakh, A.Kallel and E.I.Rau, Eur. Phys. J. AP. **21**, 137 (2003).
- [9] O. Jbara, M. Belhaj, S. Odof, K. Msellak, E.I. Rau and M.V. Andrianov. Rev. Sci. Instrum. **72**, 1788 (2001).
- [10] G.N. Greaves, J.Non-Cryst. Solids. **71**, 203 (1985).
- [11] O. Jbara, J. Cazaux and P. Trebbia, J. Appl. Phys. **78**, 868 (1995).
- [12] J. Cazaux, J. Appl. Phys. (2004) (in press).
- [13] A. El- Hidy, J.Appl. Phys. **75**, 1952 (1994).
- [14] J.F Conely, Jr. p. M. Lenahan, H. L. Evans, R. K. Lowry, and T. J. Morthorst, J. Appl. Phys. **76**, 1592 (1994).
- [15] S.Fakhfakh, O.Jbara, M.Belhaj, Z.Fakhfakh, A.Kallel and E.I.Rau, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Res B. 197, 114 (2002).
- [16] J. Cazaux, J. Appl. Phys. **59**, 1418 (1986).
- [17] A. Melchinger et S. Hofmann, J. Appl. Phys. **78**, 6224 (1995).
- [18] R. Renoud, F. Mady et J. P. Ganachaud, Vide Sci. Techn. Appl. Numero special : Conferences presented at CSC'4 : 4 th Interat. Conf. On Electric Charges in Non-Conductive Materials, Tour (France) 1-6 july 2001, p 242
- [19] C. H. Seager, W. L. Warren, and D. R. Tallent, J. Appl. Phys, **81**, 7994 (1997).
- [20] W. K. Wong, J. C. H. Phang and J. T. L. Thong, Appl. Phys. Lett, **71**, 1270 (1997).
- [21] D. C. Joy and C. S. Joy, Micros. Microanal, **4**, 475 (1999).
- [22] J. Bigarré, Thèse Ecole centrale de Lyon (1996).
- [23] D. C. Joy, SPIE Microlitography Conf. (1999) p.123.
- [24] V. V. Aristov, L. S. Kokhancik, K. P. Meyer and H. Blumtritt, Phys. Stat. Sol. **78**, 229 (1983).

- [25] L. Reimer, U. Golla, R. Bongeler, M. Kassens, B. Schindler and R. Senkel, *Optik*. **92**, 14 (1992).
- [26] D.C. Joy et C.S. Joy, *Micron*. **27**, 247 (1996)
- [27] L. Frank, M. Zadrazil and I. Mullerova, *Microchim Acta, Suppl.* **13**, 289 (1996).
- [28] M. Kotera et H. Suga, *J. Appl. Phys*, **63**, 261 (1988)
- [29] P. Hirsch, M. Kaessens, M. Puttman, L. Reimer, *Scanning*, **16**, 101 (1994).
- [30] H. Seiler, *J. Appl. Phys.* **54**, 11 (1983).
- [31] R.W. Christy, *J. Appl. Phys*, **31**, 1680 (1960).
- [32] L. Reimer. *Transmission electron microscopy*, Berlin, Springer, 1997, p. 488.
- [33] J. Taniguchi, I. Miyamoto, N. Ohno, S. Honda, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B 121**, 507 (1997).

## CHAPITRE IV

### **Etude des isolants recouverts sous irradiation électronique**

"Derrière les ennuis et les vastes chagrins qui se chargent de leur poids l'existence brumeuse, heureux celui qui peut d'une aile vigoureuse s'élancer vers les champs lumineux et sereins; celui dont les pensées, comme des alouettes, vers les cieux le matin prennent un libre essor, qui plane sur la vie et comprend sans effort le langage des fleurs et choses muettes !"

C. BAUDELAIRE

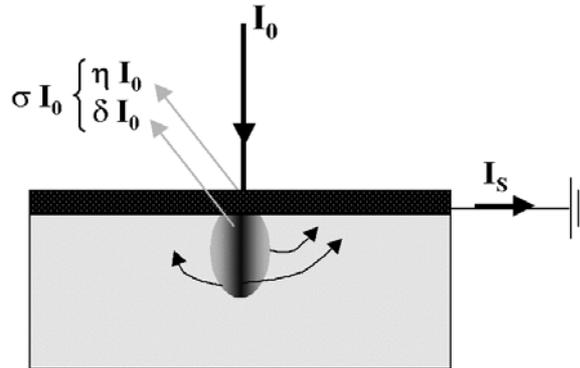
## VI.1 Introduction

L'observation par microscopie électronique à balayage conventionnelle des matériaux isolants ainsi que leur analyse par spectroscopie d'émission X nécessite souvent le recours à la métallisation de la surface de l'échantillon. Si le film métallique mis à la masse recouvrant l'isolant permet d'annuler le champ électrique externe (dans le vide), le champ électrique interne dû aux électrons piégés dans le volume de l'isolant est renforcé. Ce champ responsable de la modification des interactions électron-matière peut entraîner une analyse quantitative par spectroscopie d'émission X erronée. Ainsi, dans ce chapitre, nous allons mettre en évidence l'existence de ce champ et déterminer sa valeur. D'un point de vue théorique, nous nous appuyons sur le fait que pendant l'irradiation les charges piégées se redistribuent pour conduire à un champ électrique interne maximal à l'interface métal/isolant et qui s'annule à une profondeur très proche de la profondeur de pénétration des électrons primaires.

D'un point de vue expérimental, cette étude a été complétée par la mise en œuvre d'une méthode basée sur l'influence électrostatique qui permet de suivre l'évolution temporelle de la charge piégée (pendant et après l'irradiation) par la mesure du courant d'influence sur une électrode placée en regard de la face opposée à la face métallisée de l'échantillon. Ainsi, en combinant les résultats théoriques et expérimentaux, la détermination du champ électrique interne  $E_C$  à l'état stationnaire est désormais possible.

## IV.2 Loi générale de conservation du courant

Dans le cas des isolants recouverts, l'émission électronique secondaire provient exclusivement du revêtement métallique et les charges positives résultantes sont neutralisées par une partie du courant échantillon  $I_s$ . Le courant  $I_s$  est la superposition de deux contributions, l'une est due aux électrons primaires qui s'écoulent directement à la masse à travers la couche métallique et l'autre est due aux électrons provenant de la zone irradiée.



*Fig.IV.1 : Illustration de la relation de conservation de la charge d'espace*

La fraction des électrons piégés au cours de l'irradiation conduit à une charge négative qui génère un champ électrique interne. Ainsi, l'équation de la conservation de la charge ou du courant peut s'écrire comme suit:

$$I_0 = \sigma I_0 + I_s + \frac{dQ}{dt} \quad (E.IV.1)$$

Avec  $\sigma = \delta + \eta$ ,  $\delta$  et  $\eta$  sont respectivement le coefficient de rétrodiffusion et le rendement des électrons secondaires.

Les considérations portant sur le phénomène d'influence électrostatique (chapitre I, section I.4) montrent que la charge piégée au cours de l'irradiation dans l'isolant donne naissance à une charge image sur l'électrode métallique destinée à la mesure du courant d'influence (voir Fig.IV.2) donnée par :

$$Q_{im}(t) = K Q(t) \quad (E.IV.2)$$

avec  $K$  le facteur d'influence qui dépend essentiellement de l'échantillon et des conditions d'irradiation (voir chapitre II, paragraphe.II.3).

Le courant d'influence  $I_{inf}$  résultant de la variation au cours du temps de la charge piégée est :

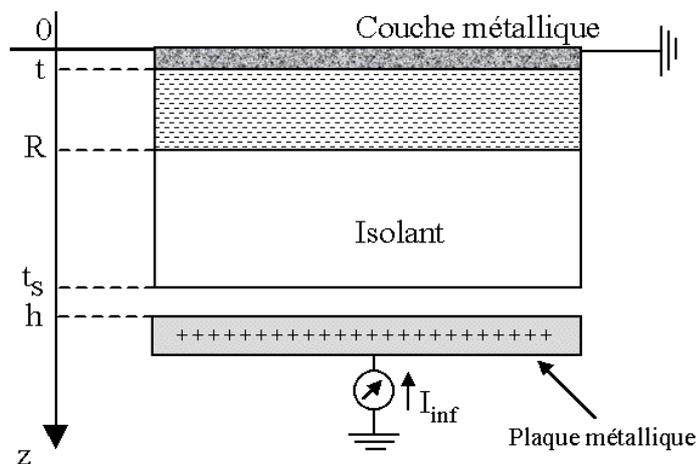
$$I_{inf} = K \frac{dQ(t)}{dt} \quad (E.IV.3)$$

Connaissant le facteur K, la mesure de ce courant permet en principe de déterminer l'évolution temporelle de la charge piégée en utilisant la relation suivante:

$$Q(t) = \frac{1}{K} \int_0^t I_{\text{inf}} dt \quad (\text{E.IV.4})$$

### IV.3 Modèle de champ électrique induit et expression du facteur K

Le modèle du champ électrique proposé dans cette étude adopte de nombreuses hypothèses simplificatrices liées à la nature de l'échantillon d'une part et aux conditions d'irradiation d'autre part. L'échantillon isolant est supposé amorphe ou polycristallin, de constante diélectrique  $\epsilon_r$ , recouvert par un film conducteur, d'épaisseur  $t$ , lié à la masse et irradié sous incidence normale. La zone irradiée (surface S) est suffisamment large de telle façon que ses dimensions latérales soient plus grandes que l'épaisseur de l'échantillon recouvert,  $t_s$ . Dans ces conditions, le champ électrique induit  $\vec{E}$  ainsi que le potentiel V correspondant, sont des fonctions dépendantes uniquement de la coordonnée  $z$ . La distribution des sites de piégeage étant supposée uniforme, les charges piégées seront donc réparties uniformément (densité volumique  $\rho_c$  constante) dans le volume irradiée ( $V = S.R$ , R la profondeur maximale de pénétration des électrons primaires). Bien que certaines hypothèses considérées dans ce modèle soient grossières, le champ électrique a permis de rendre correctement compte des phénomènes expérimentaux concernant la migration des ions  $\text{Na}^+$  dans les verres soumis à une irradiation électronique [1]. Ce modèle a été également utilisé avec succès pour étudier d'une part l'influence de la charge piégée sur la fonction  $\Phi(\rho z)$  de la microanalyse X [2,3] et d'autre part pour corrélérer l'émission électronique secondaire et le phénomène de charge dans les isolants nus [4,5].



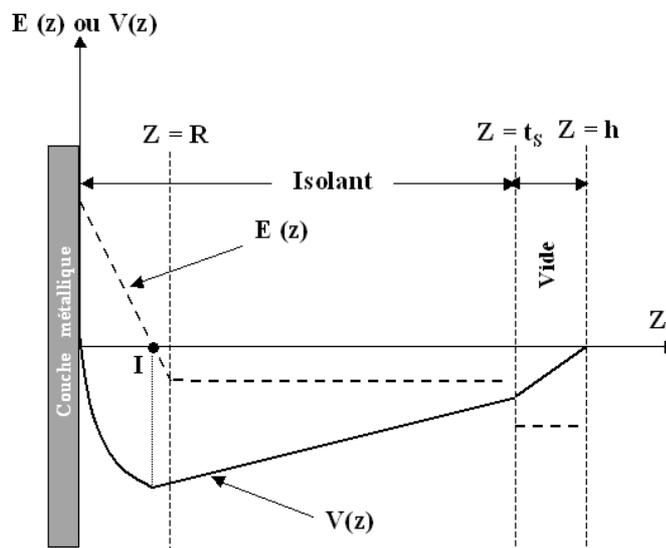
*Fig.IV.2 : Description des conditions aux limites d'un isolant métallisé chargé négativement.*

En tenant compte de la géométrie du dispositif expérimental indiquée sur la figure.IV.2 et sachant que la plaque métallique destinée à la mesure de la charge image est fixée à une distance  $z = h$  et un espacement (vide) d'épaisseur  $h-t_s$  sépare cette plaque métallique de la face inférieure de l'échantillon, les conditions aux limites sont alors :  $V(0) = V(h) = 0$  et la composante du champ électrique est selon l'axe  $z$  ( $E_z = -(\frac{\partial V}{\partial z})$ ). Ainsi l'équation de

Poisson se réduit à une équation à une dimension sous la forme suivante:

$$\frac{\partial^2 V}{\partial z^2} = -\frac{\rho_c}{\epsilon} \quad \text{(E.IV.5)}$$

avec  $\rho_c$  (C/cm<sup>3</sup>) la densité de charge piégée négative.



**Fig.IV.3 :** Représentation schématique du champ électrique (ligne discontinue) et du potentiel (ligne continue) en fonction de la profondeur de pénétration (selon l'axe z).

La résolution de cette équation dans différentes régions situées à l'intérieur et à l'extérieur de l'échantillon conduit à :

□ ( $0 < z < R$ ) :

Dans cette zone, la densité de charge volumique négative est donnée par:

$$\rho_c = \frac{Q}{RS} = \frac{\sigma}{R}$$

avec  $\sigma$  est la densité surfacique de la charge piégée.

La fonction  $V(z)$  obtenue est alors donnée par :

$$V(z) = -\frac{E_{\max} \cdot R}{2} \left[ \left( \frac{z}{R} \right)^2 - 2 \left( \frac{z}{R} \right) \right] \quad (\text{E.IV.6})$$

Cette fonction potentielle suit une loi parabolique (Fig.IV.3) et atteint une valeur minimale au voisinage de l (très proche de R). Cette valeur est :

$$V_m = \frac{\sigma R}{2\epsilon} \quad (\text{E.IV.7})$$

La composante du champ électrique dans cette région est donnée par :

$$E_z = E_{\max} \left( 1 - \frac{z}{R} \right) \quad (\text{E.IV.8})$$

Ce champ dirigé vers l'intérieur est maximal à l'interface revêtement métallique /isolant et décroît linéairement pour s'annuler à la profondeur  $z_1$  (Fig.IV.3).

La valeur maximale à  $z = 0$  est telle que :

$$E_{\max} = -\frac{Q}{S\epsilon} = -\frac{\sigma}{\epsilon} \quad (\text{E.IV.9})$$

□ ( $t_s < z < h$ ) :

Dans l'espace vide séparant l'échantillon et l'électrode de mesure du courant d'influence, en utilisant la relation de continuité de la composante normale du champ à l'interface vide/électrode métallique, le champ électrique directement lié à la charge image mesurée est donné par:

$$E_v = \frac{\sigma_{im}}{\epsilon_0} \quad (\text{E.IV.10})$$

avec  $\sigma_{im} = \frac{Q_{im}}{S}$  est la densité surfacique de charge image et  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide.

□ ( $R < z < t_s$ ) :

Le champ électrique dans cette région non chargée ( $\rho_c = 0$ ) est uniforme et le potentiel correspondant est une fonction qui décroît linéairement avec la profondeur z.

A l'aide de la relation de continuité de la composante normale du champ à l'interface vide/isolant, la valeur du champ dans cette zone non irradiée est telle que :

$$E_{ext} = \frac{E_v}{\epsilon_r} \quad (\text{E.IV.11})$$

avec  $\epsilon_r$  est la permittivité relative du diélectrique.

L'évolution des fonctions V(z) et E(z) est représentée sur la figure.IV.3.

En tenant compte des solutions de l'équation de Poisson dans les différentes zones mentionnées ci-dessus, des conditions aux limites et des équations de continuité, le facteur d'influence est donné par la relation suivante [6] (voir Annexe) :

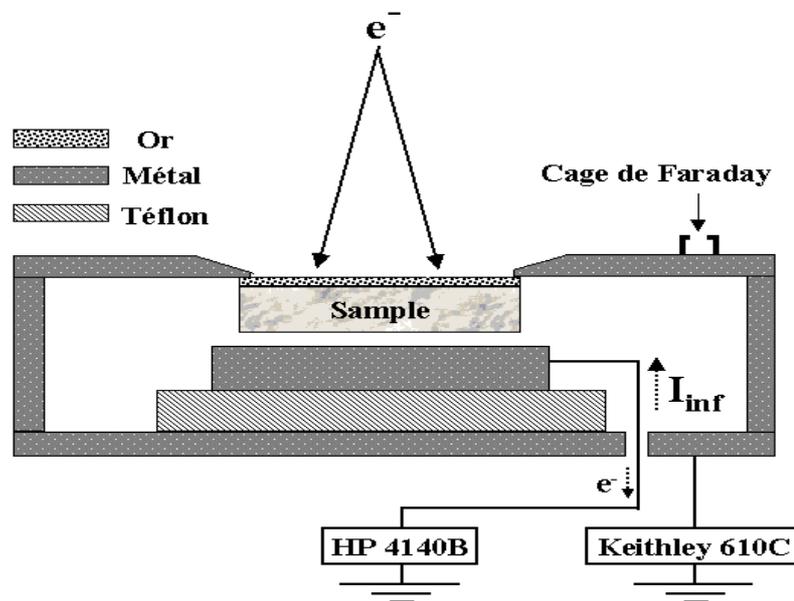
$$K = -\frac{R/2t_s}{\epsilon_r(1-h/t_s)-1} \quad (\text{E.IV.12})$$

Concernant la profondeur de pénétration R, l'expression de Kanaya et Okayama [7] donnée au chapitre I (E.I.1) a été utilisée.

## IV.4 Etude expérimentale

### IV.4.1 Dispositif expérimental

Pour pouvoir étudier les mécanismes de charge et de décharge dans les isolants recouverts par une couche métallique mise à la masse, la mise en œuvre de la méthode du courant d'influence nécessite une légère modification du dispositif expérimental décrit au chapitre II (section II.2.3.2.3) [8,9]. Cette modification illustrée sur la figure.IV.4 consiste essentiellement à mettre en contact électrique intime la face métallisée de l'échantillon avec l'enceinte métallique et à positionner l'électrode de mesure de la charge image en regard de la face opposée à la face métallisée de l'échantillon à une distance plus faible par rapport à celle utilisée dans le cas des isolants nus (200 µm environ).



*Fig.IV.4 : Dispositif expérimental de mesure du courant d'influence.*

L'électrode de mesure, en cuivre, est posée sur une plaque isolante (en Téflon) pour éviter tout contact électrique avec l'enceinte. Cette électrode est connectée à la masse via un pico-ampèremètre de type Hewlett-Packard (HP 4140B) interfacé par une carte IEEE à un micro-ordinateur. Afin de mesurer le courant primaire, une cage de Faraday est fixée sur l'enceinte métallique et connectée à la masse à travers un deuxième pico-ampèremètre.

L'utilisation d'un tel dispositif permet d'éviter les deux contributions habituelles susceptibles de perturber la mesure du courant d'influence à savoir, le courant échantillon et le courant dû aux électrons émis par les parois de la chambre objet du MEB.

Ce dispositif est placé dans un microscope électronique à balayage de type Philips 505 dont le vide est d'environ  $10^{-6}$  Torr et la distance de travail est de 14 mm. La surface de l'échantillon, sous le trou, est irradié en mode balayage rapide (mode TV).

#### **IV.4.2 Résultats expérimentaux et discussion**

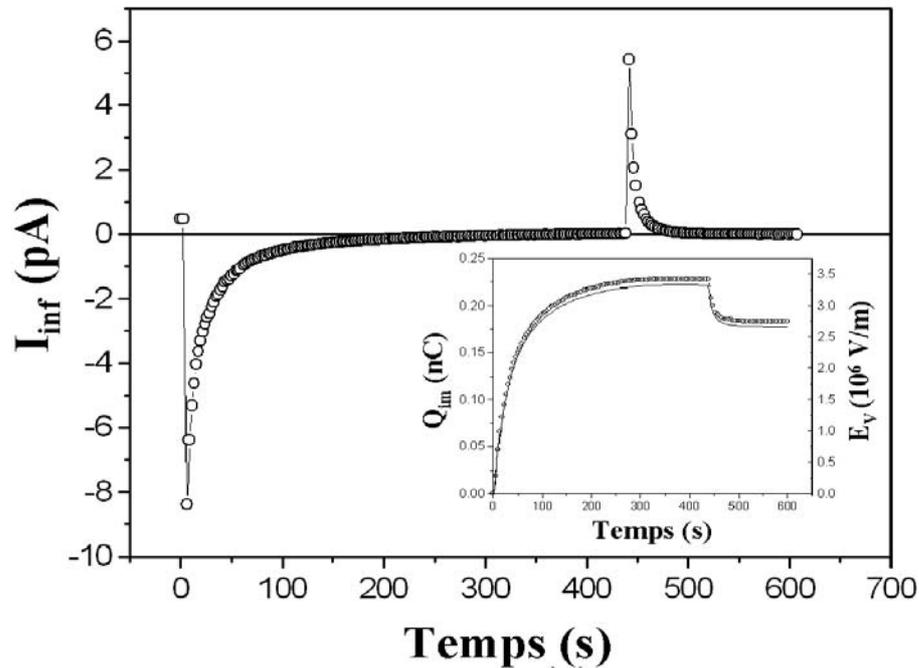
Cette étude a été conduite sur des échantillons de Polyméthyl-métacrylate (PMMA) (ECH.3) et de verre (ECH.1). La densité volumique du PMMA et celles du verre sont  $1.2 \text{ g/cm}^3$  et  $2.6 \text{ g/cm}^3$  respectivement. Les échantillons sont tout d'abord nettoyés à l'acétone puis à l'alcool dans une cuve à ultrasons pendant 15 mn, ensuite ils sont introduits dans l'évaporateur où une couche métallique d'épaisseur 15 nm est déposée sur leur surface. Pour éviter les effets de pré-irradiation, chaque mesure est effectuée sur un nouvel échantillon.

##### **IV.4.2.1 Cas du verre**

###### **IV.4.2.1.1 Courant d'influence**

La figure.IV.5 représente un exemple typique de l'évolution du courant d'influence obtenu sur le verre pendant et après l'irradiation sous une tension d'accélération de 18.5 kV et un courant primaire de 3 nA. L'évolution de la charge image pendant et après l'irradiation est représentée dans l'encart de cette figure. Le courant d'influence est maximum (en valeur absolue) au début de l'irradiation puis décroît progressivement jusqu'à une valeur de saturation nulle.

Contrairement au cas des échantillons non recouverts où les électrons incidents sont essentiellement ralentis par la formation d'un potentiel de surface négatif, les électrons incidents dans le cas des échantillons recouverts où ce potentiel est nul sont ralentis par le champ électrique interne induit par les charges précédemment piégées. Ce ralentissement provoque un déplacement du volume d'interaction vers la surface. Au fur et à mesure que la quantité de charges piégées augmente, le champ électrique interne augmente et peut atteindre des valeurs permettant de déclencher le phénomène de dépiégeage.



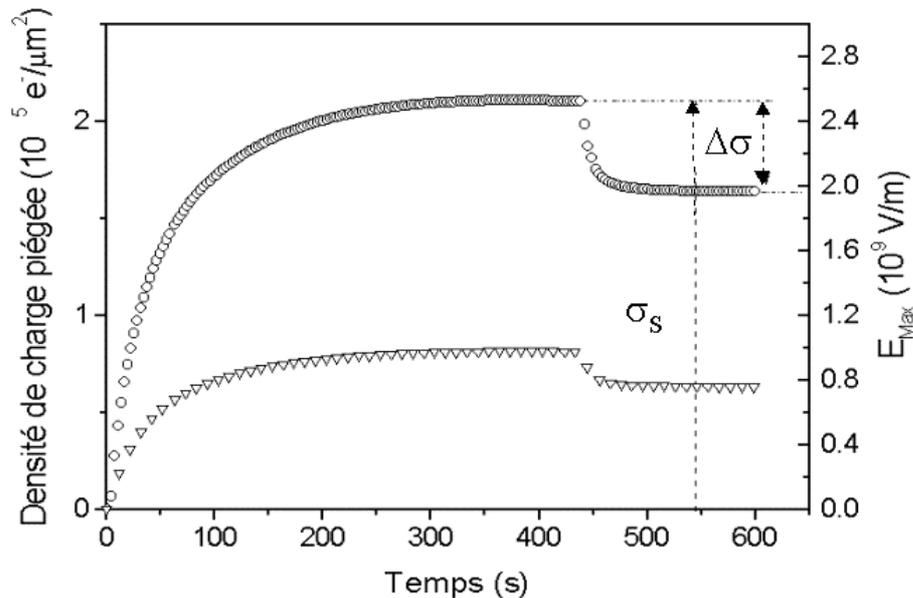
**Fig.IV.5 :** Evolution du courant d'influence en fonction du temps pendant et après l'irradiation. La variation de la charge image  $Q_{im}$  (cercles) ainsi que le champ électrique  $E_V$  créée dans l'espace compris entre la face inférieure de l'échantillon et l'électrode de mesure du courant d'influence (ligne continu) sont représentés dans l'encart. L'énergie primaire et le courant primaire sont respectivement 18.5 keV et 3 nA.

Ce phénomène est responsable d'une diminution progressive du courant d'influence  $I_{inf}$  qui atteint une valeur nulle à l'état d'équilibre correspondant à une charge piégée constante au cours du temps. Cet état d'équilibre résulte du dépiégeage des nouvelles charges piégées. Autrement dit lorsque le flux électronique sortant (constitué des électrons émis par l'échantillon et des électrons évacués vers la masse) devient égal au flux entrant (électrons incidents), la charge piégée atteint une valeur de saturation négative  $Q_S$  telle que  $KQ_S = 0.23$  nC.

#### IV.4.2.1.2 Cinétique de charge

L'étude de la cinétique de charge nécessite la connaissance du facteur d'influence  $K$  qui nous permet à l'aide de la charge image mesurée de déterminer la charge piégée au cours du temps. En effet, dans le cas du verre étudié de numéro atomique moyen  $Z = 10$  et de masse atomique moyenne  $A = 20$  g/mol, on obtient une profondeur maximale de pénétration de  $3.5 \mu\text{m}$  (expression (E.I.1)) pour une énergie primaire de  $E_0 = 18.5$  keV et par conséquent un facteur d'influence de l'ordre de  $10^{-3}$  (équation (E.IV.12)). En utilisant ce facteur et la charge image représentée dans l'encart de la figure.IV.5, l'évolution temporelle

de la densité de charge piégée  $\sigma$  ainsi que celle du champ maximal  $E_{\max}$  sont déduites. Ces évolutions sont représentés sur la figure.IV.6. Le résultat le plus remarquable est que le champ maximal peut atteindre des valeurs de l'ordre de  $10^7$  V/cm.



**Fig.IV.6 :** Evolution de la densité surfacique de charge piégée (cercles) et du champ maximal (triangles) en fonction du temps, déduite des résultats expérimentaux obtenus sur le verre (Fig.IV.5).

Au cours de l'irradiation, la quantité de charge piégée obéit à une cinétique de premier ordre donnée par :

$$\sigma = \sigma_s \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau}}\right) \quad (\text{E.IV.13})$$

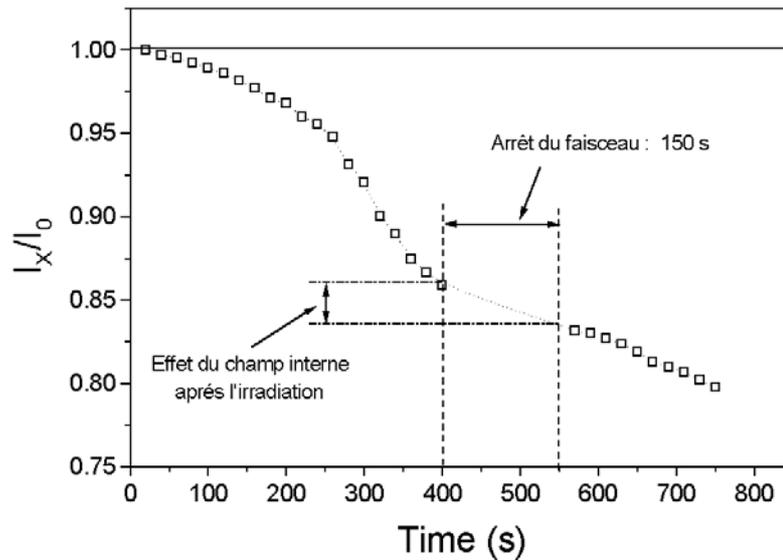
$\sigma_s$  est la densité surfacique de charge à l'état d'équilibre et  $\tau$  est la constante de temps de charge. Ces deux grandeurs valent  $2.2 \cdot 10^5 \text{ e}^-/\mu\text{m}^2$  et 48 s respectivement.

Quand le faisceau primaire est arrêté, la mesure d'un courant d'influence non négligeable traduit l'occurrence du phénomène de décharge. Ce phénomène résulte uniquement de l'évacuation d'une fraction de la charge préalablement piégée vers la masse à travers la couche métallique. Au cours de cette phase de décharge les électrons circulent de la masse vers l'électrode métallique entraînant un courant d'influence  $I_{\text{inf}}$  de signe opposé à celui du courant mesuré lors de la phase d'irradiation. La décroissance de l'intensité de ce courant, au cours du temps, traduit la diminution de la charge piégée et par conséquent celle de la charge image.

L'évolution de la densité surfacique de la charge après l'interruption du faisceau primaire (à  $t > t_f$ ) suit également une cinétique de premier ordre:

$$\sigma = \sigma_S - \Delta \sigma e^{-\frac{t-t_f}{\tau'}} \quad (\text{E.IV.14})$$

$\Delta \sigma = \sigma_S - \sigma'_S$  est la différence de densité surfacique de charge correspondante à la charge totale évacuée à l'équilibre,  $\sigma'_S$  est la densité surfacique de charge correspondante à la charge qui reste piégée dans le matériau à l'équilibre,  $\tau'$  est la constante de temps de la décharge. Ces deux dernières valent  $1.5 \cdot 10^5 \text{ e}^-/\mu\text{m}^2$  et 11 s respectivement. Ces résultats montrent que la décharge est partielle et que la charge qui est piégée dans le matériau ainsi que le champ électrique correspondant restent significatifs. La vérification expérimentale de l'existence de ce champ a consisté à acquérir l'évolution au cours du temps du signal X ( $\text{NaK}_\alpha$ ) émis par le sodium (espèce mobile dans le verre étudié) pendant deux phases d'irradiation séparées par une interruption du faisceau primaire d'une durée de 150 s. Cette évolution est représentée sur la figure.IV.7.



**Fig.IV.7 :** Décroissance au cours du temps de l'intensité de la raie  $\text{NaK}_\alpha$  normalisée (par rapport à l'intensité au tout début de l'irradiation). Les conditions expérimentales sont identiques à celles de la figure.IV.5.

Au cours de la première phase d'irradiation, on constate que l'intensité du signal X diminue car les ions sodium migrent sous l'action du champ électrique généré. Au cours de la seconde phase, d'irradiation, on constate que l'intensité de ce signal ne débute pas à la valeur correspondant à la fin de la première phase mais à une valeur inférieure. Cette dernière constatation qui montre clairement que la migration des ions sodium se poursuit même après l'interruption du faisceau primaire (150 s) est une preuve irréfutable de l'existence d'un champ électrique interne qui a été estimé à  $8 \cdot 10^6 \text{ V/cm}$ .

#### IV.4.2.1.3 Discussion

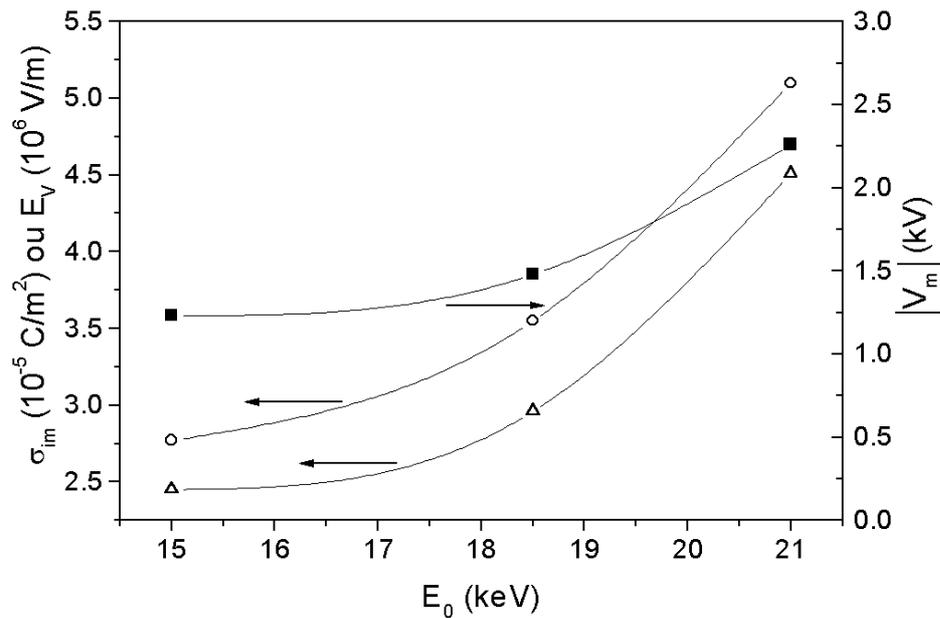
Les valeurs des champs électriques  $E_V$  (espace compris entre la face inférieure de l'échantillon et l'électrode de mesure) et  $E_{ext}$  (zone non chargée de l'échantillon) sont déduites de la mesure de la charge image (voir équations (E.IV.10) et (E.IV.11)), avec une incertitude relative reliée uniquement aux erreurs expérimentales inférieure à 5%. L'évolution du champ  $E_V$  au cours du temps est représentée dans l'encart de la figure IV.5. Les valeurs estimées de  $E_{max}$  et de  $\sigma$  résultent des applications numériques de l'équation (E.IV.9) qui implique la connaissance du facteur d'influence donné par l'équation (E.IV.12). Le calcul de ce facteur utilise l'expression de la profondeur de pénétration maximale  $R$  (E.I.1) pour un échantillon non chargé. Cependant suite au ralentissement des électrons primaires par le champ électrique interne, il est nécessaire de tenir compte du raccourcissement des trajectoires électroniques résultant, responsable de la décroissance de  $R$ . Ainsi pour évaluer la nouvelle valeur de  $R$ , on remplace  $E_0^{1.66}$  par  $(E_0 - q|V_m|)^{1.66}$  dans l'équation (E.I.1) et la chute de tension,  $V_m$ , due au ralentissement électrique a été exprimée en utilisant les équations (E.IV.7) et (E.IV.12) comme suit:

$$V_m = \left( \frac{\sigma_{im} t_S}{\varepsilon} \right) \left( \varepsilon_r \left( 1 - \frac{h}{t_S} \right) - 1 \right) \quad \text{(E.IV.15)}$$

La figure IV.8 représente la chute de potentiel  $V_m$ , la charge image mesurée ainsi que le champ électrique dans l'espace vide compris entre l'échantillon et l'électrode de mesure en fonction de l'énergie primaire. On constate que ces grandeurs augmentent quand l'énergie primaire augmente. Cette augmentation résulte de l'augmentation de la quantité de charges piégées elle même liée à l'augmentation du volume d'interaction.

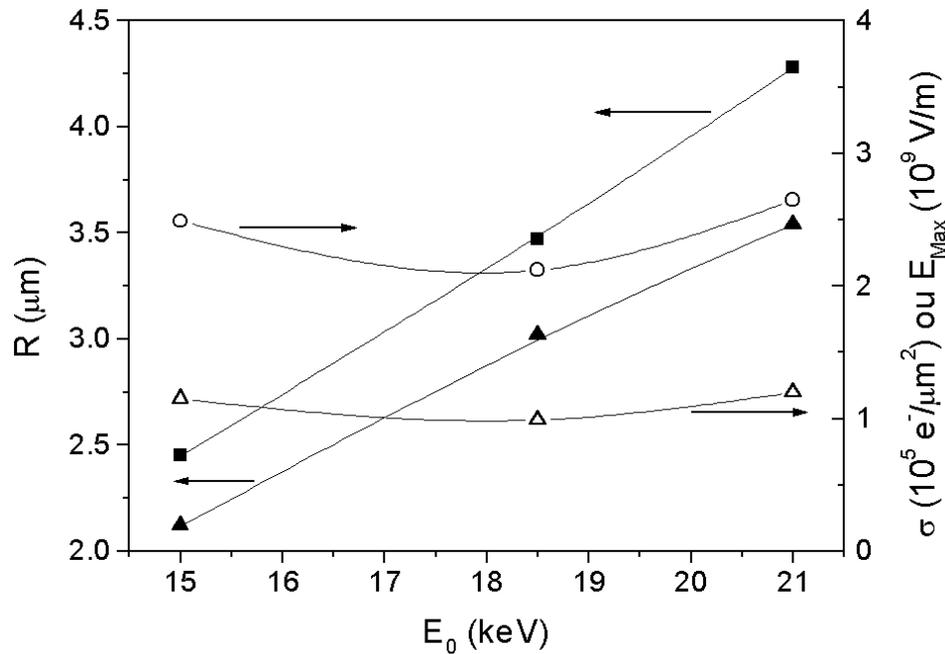
Dans le cas du verre irradié dans les conditions mentionnées ci-dessus, la chute de tension à l'état d'équilibre vaut  $V_m = 1.5$  kV.

La figure IV.9 donne également la représentation en fonction de l'énergie primaire, de la profondeur de pénétration, de la densité de charge ainsi que du champ électrique maximal à l'interface couche métallique isolant. On constate que dans le cas présent la densité surfacique de charge ainsi que le champ maximal sont indépendants de l'énergie primaire. Cette allure est probablement due au fait qu'à l'équilibre le champ électrique maximal que l'on peut atteindre quelque soit l'énergie primaire correspond à un champ électrique critique de dépiégeage,  $E_C$ , qui provoque l'évacuation de la charge piégée à travers la couche métallique mise à la masse.



**Fig.IV.8 :** Evolution de la densité surfacique de charge image (triangles) ou du champ électrique (cercles) dans l'espace vide entre l'échantillon et l'électrode de mesure (axe des ordonnées de gauche) et de la chute de potentiel  $V_m$  (carrés) (axe des ordonnées de droite) en fonction de l'énergie primaire.

L'ensemble des considérations mentionnées montre que le champ électrique induit, qui provoque une diminution de la longueur de la trajectoire électronique et donc une décroissance de la profondeur maximale de pénétration  $R$ , est responsable de la diminution du facteur d'influence électrostatique  $K$  pendant le processus de l'irradiation. La correction de l'effet du ralentissement électrique, conduit à une incertitude relative commise sur le calcul du facteur  $K$  en négligeant ce ralentissement de l'ordre de 15 %. Quand le faisceau primaire est arrêté, le processus de dépiégeage qui s'en suit provoque un étalement de la zone de charge et par conséquent on peut s'attendre à une légère variation dans le sens opposé ( à celui de la phase d'irradiation) du facteur  $K$ , c'est à dire une augmentation qui peut entraîner une sous-estimation de la valeur de la charge résiduelle  $\Delta Q$ .



**Fig.IV.9 :** Variation de la profondeur de pénétration  $R$  (axe des ordonnées de gauche) et de la densité de charge (cercles) ou le champ électrique maximal (triangles vides) à l'interface couche métallique isolant (axe des ordonnées de droite) en fonction de l'énergie primaire.

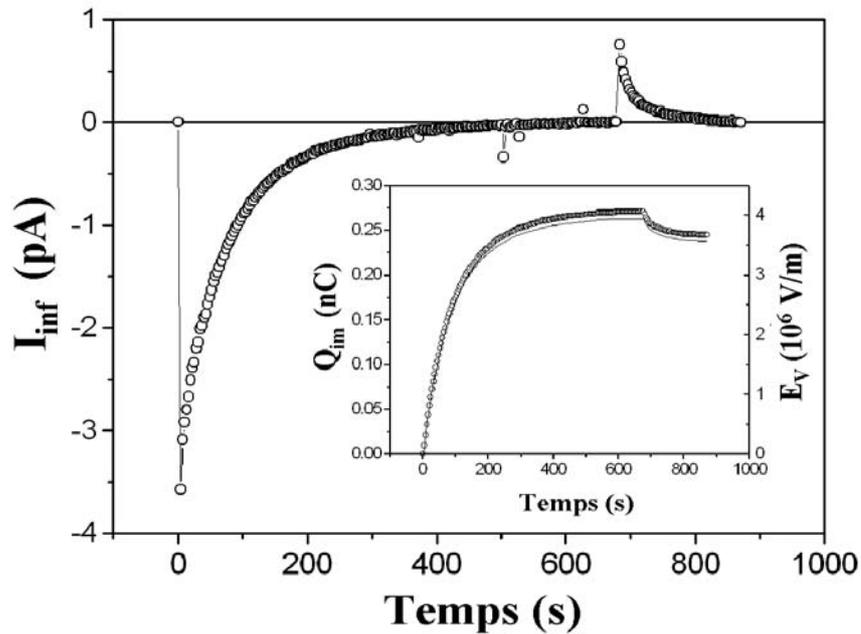
(carrés pleins) : profondeur de pénétration déduite de l'équation (E.I.1)

(triangles pleins) : profondeur de pénétration déduite de l'équation (E.I.1) dans laquelle  $E_0^{1.66}$  a été remplacé par  $(E_0 - q/V_m)^{1.66}$ .

#### IV.4.2.2 Cas PMMA

##### IV.4.2.2.1 Courant d'influence

La figure.IV.10 montre l'évolution du courant d'influence dans le PMMA pendant et après l'irradiation électronique sous une tension d'accélération de 18.5 kV et un courant primaire de 2nA. L'évolution de la charge image pendant et après l'irradiation est représentée dans l'encart de cette figure. On constate que l'allure du courant d'influence  $I_{inf}$  n'est pas fondamentalement différente de celle obtenue sur le verre. le courant d'influence est maximum (en valeur absolue) au début de l'irradiation puis décroît progressivement jusqu'à une valeur de saturation nulle. La seule différence réside dans l'ordre de grandeur des constantes de temps de la charge et de la décharge. Ces constantes étant respectivement 98 et 46 s.



**Fig.IV.10** : Evolution du courant d'influence en fonction du temps pendant et après l'irradiation. La variation de la charge image  $Q_{im}$  (cercles) ainsi que la champ électrique  $E_V$  créée dans l'espace compris entre la face inférieure de l'échantillon et l'électrode de mesure du courant d'influence (ligne continu) sont représentés dans l'encart. L'énergie primaire et le courant primaire sont respectivement 18.5 keV et 2 nA.

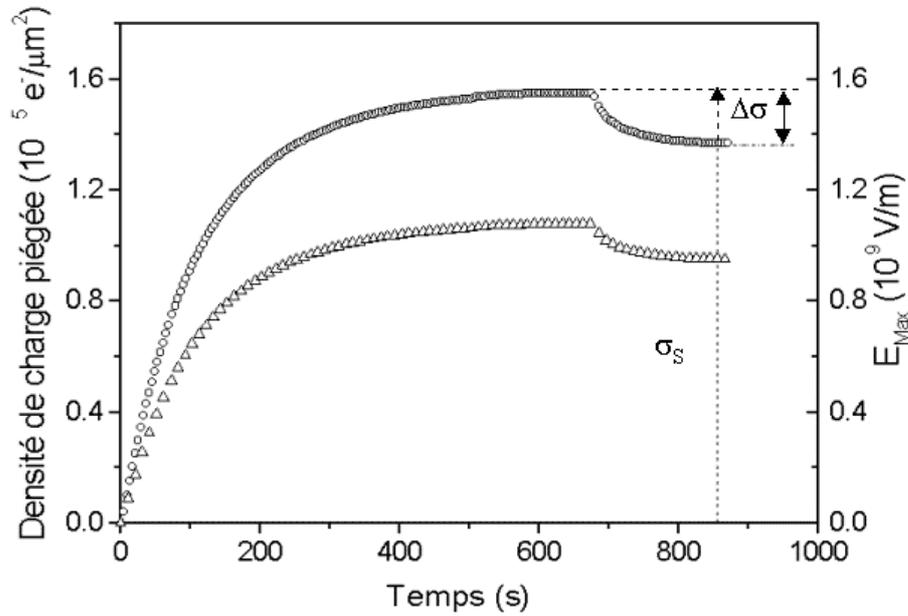
Par rapport au verre, on constate que la décharge est également partielle dans le cas du PMMA mais la charge qui reste piégée après l'interruption du faisceau primaire est plus importante. Cette constatation traduit une grande différence entre les propriétés électriques des deux matériaux.

#### IV.4.2.2.2 Cinétique de charge

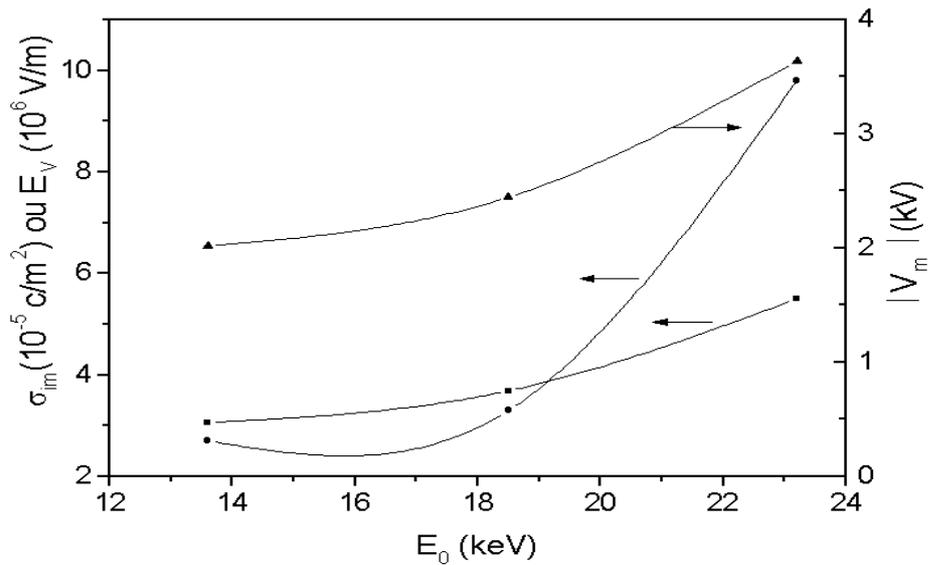
Dans le cas du PMMA, le facteur d'influence est de  $2 \cdot 10^{-3}$  pour une énergie primaire  $E_0$  de 18.5 keV. Dans la figure.IV.11, nous représentons l'évolution de la densité de charge piégée ainsi que celle du champ électrique maximal. La valeur maximale du champ atteinte est de  $9.5 \cdot 10^6$  V/cm.

La même procédure a été également appliquée dans le cas du PMMA. Sur la figure.IV.12, nous représentons l'évolution expérimentale de la densité de la charge image et du champ développé dans le gap de vide pour une énergie primaire variant entre 14 et 24 keV. La chute de tension est aussi représentée dans cette figure. Les valeurs calculées de  $E_{max}$  et  $\sigma$  sont données sur la figure.IV.13. Ces résultats montrent que le champ électrique maximal  $E_{max}$  (à l'interface couche métallique /isolant) est presque constant. Ceci peut être expliqué par l'effet du phénomène d'autorégulation dans lequel un champ électrique critique

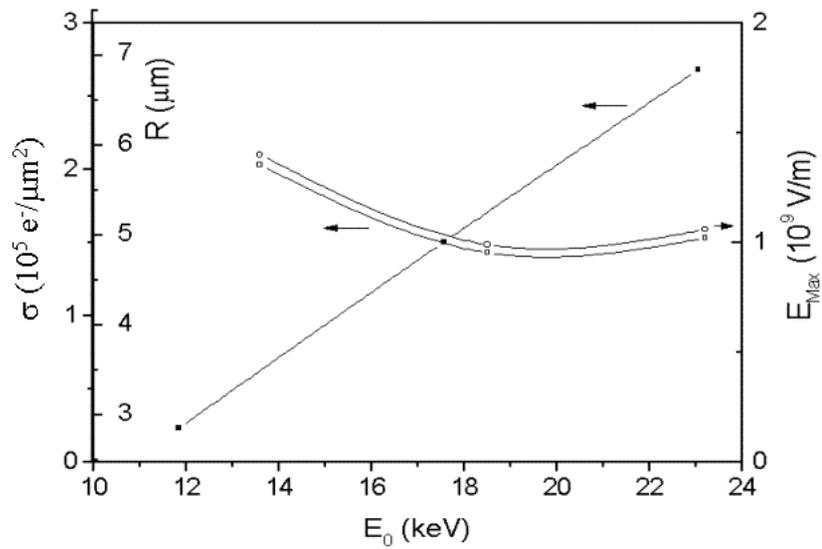
de  $10^7$  V/cm induit un mécanisme de dépiégeage conduisant à une évacuation des charges vers la masse à travers la couche conductrice.



**Fig.IV.11** : Evolution de la densité surfacique de charge piégée (cercles) et du champ maximal (triangles) en fonction du temps, déduite des résultats expérimentaux obtenus sur le PMMA (Fig.IV.10).



**Fig.IV.12** : Evolution de la densité de charge image (cercles), du champ électrique  $E_v$  (carrés) dans l'espace vide entre l'échantillon et l'électrode de mesure et de  $V_m$  calculé (triangles) en fonction de l'énergie primaire pour le PMMA.



**Fig.IV.13 :** Variation de la densité de charge piégée (carrés vides), de la profondeur de pénétration (carrés pleins) et du champ maximal (cercles) en fonction de l'énergie primaire. Ces résultats sont obtenus en utilisant l'équation (E.I.1) tout en remplaçant  $E_0^{1.66}$  par  $(E_0 - q/V_m)^{1.66}$ .

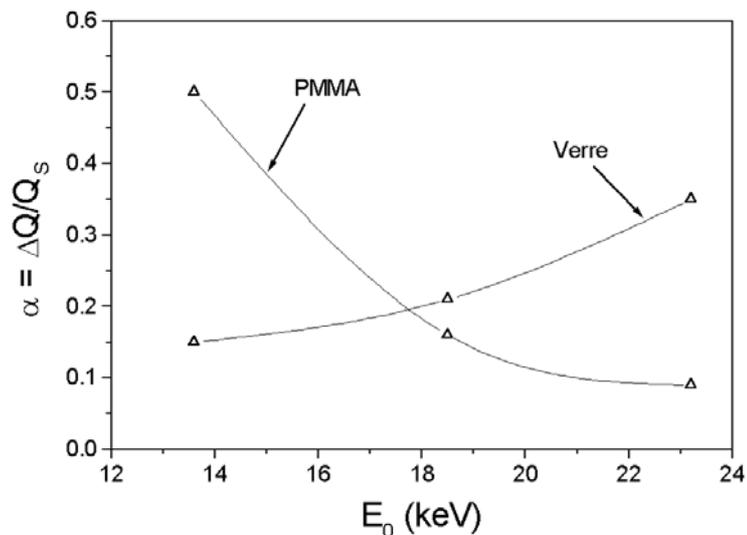
#### IV.4.2.3 Constantes de temps des phénomènes de charge et de décharge

Par soucis de simplification, les paragraphes concernant les cinétiques de charge et de décharge des matériaux étudiés n'ont présentés que les résultats obtenus à une seule énergie primaire. Ainsi dans ce paragraphe nous allons étudier l'influence de l'énergie primaire sur les constantes de temps des phénomènes de charge et de décharge. Le tableau IV.1 donne les constantes de temps ainsi que la fraction de charge dépiégée obtenus.

	$E_0$ (keV)	$\alpha = \Delta Q/Q_S$	$\tau$ (s)	$\tau'$ (s)
Verre	13.6	0.15	54.7	14.6
	18.5	0.21	48	11.2
	23.2	0.35	42.4	7.8
PMMA	13.6	0.5	95	44
	18.5	0.16	98	46
	23.2	0.09	104	49

**Tableau. IV.1 :** fraction de la charge dépiégée ( $\alpha = \Delta Q/Q_S$ ) et constantes de temps de charge et de décharge pour les différentes énergies primaires.

Ces résultats montrent clairement que les paramètres caractérisant les phénomènes de charge et de décharge dépendent de l'énergie primaire. Dans le cas du verre les constantes de temps  $\tau$  (s) et  $\tau'$  (s) diminuent alors qu'elles augmentent dans le cas du PMMA. Ce comportement a été également observé dans le cas d'échantillons nus de verre et de quartz (isolant ayant même comportement électrique que le PMMA) (voir Chapitre III, section III.4). Dans cas du PMMA l'augmentation de la constante de temps de charge  $\tau$  avec l'énergie primaire est le résultat de l'augmentation du volume d'interaction et par conséquent de celle du nombre de pièges préexistants et induits par irradiation électronique susceptibles d'être comblés par les électrons incidents. La constante de temps de décharge,  $\tau'$ , augmente car plus la charge d'espace est proche de la surface (faible énergie primaire) plus elle est instable et susceptible de s'évacuer plus rapidement vers la masse à travers la surface. Ceci est vérifié en considérant la fraction  $\alpha$  de charge dépiégée représentée sur la figure.IV.14 en fonction de l'énergie primaire. Cette fraction est moins importante quand cette dernière augmente.



**Fig.IV.14 :** Evolution de la fraction de la charge dépiégée ( $\alpha = \Delta Q / Q_s$ ) pour les différentes énergies primaires.

Dans le cas du verre la situation est totalement différente, la diminution des constantes de temps est non seulement liée aux effets de charge mais également à la modification de la composition chimique du verre sous irradiation électronique. Cette modification est due au fait que les espèces mobiles que contient le verre, notamment les ions sodium, sont susceptibles de migrer sous l'action du champ électrique interne induit par les électrons piégés. Cette migration qui est d'autant plus importante que l'énergie primaire est grande conduit à une augmentation de la conductivité ionique du verre et par conséquent à l'augmentation de la fraction de charge neutralisée (voir Fig.IV.14). Ainsi l'augmentation de la

conductivité est responsable de la diminution de la constante de temps de charge quand l'énergie primaire augmente. Concernant les constantes de temps de décharge, leur diminution quand l'énergie primaire augmente s'explique par le fait que quand le faisceau primaire est interrompu, la migration des ions se poursuit (voir Fig.IV.7) et que cette migration est plus importante quand l'énergie est plus élevée.

## I.5 Conclusion

Dans cette étude, nous avons mis au point une technique basée sur le phénomène d'influence pour mesurer la charge piégée dans les isolants recouverts sous irradiation électronique. Le dispositif utilisé permet d'éviter tout contact électrique entre l'échantillon et la plaque métallique et par la suite d'empêcher la création d'un courant induit par radiation (RIC) qui peut se superposer au courant d'influence. Les performances ainsi que les limites de cette technique sont discutées. Il est possible de suivre dynamiquement la variation de la charge piégée sans se heurter à la complexité due à l'émission électronique secondaire comme dans le cas des isolants non recouverts. Les constantes de charge et de décharge ainsi que le champ électrique interne en-dessous de la couche métallique ont été déterminés.

Cette étude montre clairement que la métallisation des isolants permet bien d'annuler le champ électrique externe, mais contrairement aux idées reçues elle renforce le champ électrique interne. Ce dernier est responsable de la modification des paramètres gouvernant les interactions électron-matière mais également de la modification de la composition chimique (migration des ions mobiles, désorption d'espèces). Ainsi, la fonction  $\phi(\rho z)$  de la microanalyse X peut subir une distorsion et conduire à une analyse quantitative erronée. La connaissance de l'ordre de grandeur du champ électrique, qui constitue le seul paramètre représentant les effets de charge, permettra d'inclure sa valeur dans les simulations de MC pour proposer ensuite une procédure d'analyse X quantitative des isolants recouverts tenant compte de ces effets.

### Références Bibliographiques chapitre IV

- [1] O.Jbara, J.Cazaux, P.Trebbia, J.Appl.Phys.**78**, 868 (1995).
- [2] J.Cazaux, X-Ray Spectrum. **25**, 265 (1996).
- [3] O.Jbara, B.Portron, D.Mouze, J.Cazaux, X-Ray Spectrum. **26**, 291(1997).
- [4] J.Cazaux, J. Appl. Phys. **85**, 1137 (1999).
- [5] J.Cazaux, J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom. **105**, 155 (1999).
- [6] O. Jbara, S. Fakhfakh, M. Belhaj, J. Cazaux, E.I. Rau, M. Filippov and M.V. Andrianov, Nucl. Instr. and Meth. In Phys. Res B. **194**, 302 (2002).
- [7] K.Kanaya, S. Okayama, J.Phys. D. **5**, 43 (1972).
- [8] S.Fakhfakh, O.Jbara, M.Belhaj, Z.Fakhfakh, A.Kallel and E.I.Rau, Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Res B. 197, 114 (2002).
- [9] S.Fakhfakh, O.Jbara, M.Belhaj, Z.Fakhfakh, A.Kallel and E.I.Rau, Eur. Phy. J. AP 21, 137 (2003).

## **CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES**

## CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

L'objet de notre travail était l'étude du comportement des matériaux isolants sous irradiation électronique et les méthodes expérimentales étaient un ensemble de techniques dont la plupart a été mise au point au laboratoire. Il s'agit des spectroscopies d'émission X, et électronique, la méthode basée sur la déflexion du faisceau primaire et la méthode basée sur le phénomène d'influence électrostatique. Une attention particulière a été accordée à cette dernière et un dispositif expérimental adéquat a été conçu et mis en œuvre. L'étalonnage de ce dispositif a bénéficié de la complémentarité de l'ensemble des techniques utilisées. Au cours de ce travail, nous avons cherché à montrer que la méthode d'influence est non seulement capable de déterminer la charge piégée dans l'isolant irradié, mais également de suivre son évolution au cours et après l'irradiation. Une des performances essentielles du dispositif expérimental conçu à cet égard est la possibilité de mesurer simultanément le courant d'influence et le courant de fuite. Plusieurs matériaux isolants ont été étudiés et des comportements électriques différents face à une irradiation électronique ont été remarqués. Nous avons vu que les phénomènes de charge dans les isolants soumis à une irradiation électronique dépendent essentiellement de trois facteurs, les paramètres liés à l'injection électronique, les caractéristiques de l'échantillon et l'effet de la charge elle-même tandis que les phénomènes de décharge dépendent uniquement des deux derniers facteurs. Les mécanismes liés aux phénomènes de charge et de décharge ainsi que la variation des constantes de temps de ces phénomènes en fonction de l'énergie primaire ont été analysés. Le rôle important joué par le courant de fuite dans la compréhension des mécanismes de régulation de la charge et par conséquent dans les phénomènes de charge et de décharge a été largement discuté. Nous avons vu également que la connaissance de ce courant constitue un élément essentiel pour déterminer la variation temporelle du rendement d'émission secondaire au cours de l'irradiation. La prise en compte du courant de fuite dans l'équation de conservation du courant a montré que la valeur de  $\sigma$  n'atteint pas l'unité à l'état d'équilibre.

Un des résultats remarquables déduits de la mesure du potentiel de surface à l'aide du spectromètre toroïdal est la divergence qui existe entre l'expérience et l'approche conventionnelle, divergence d'autant plus marquée que l'aptitude de l'isolant à évacuer la charge est grande. Cette divergence a été également constatée lors de la mesure du rendement d'émission électronique total au cours du processus d'irradiation.

A l'aide des mesures du potentiel de surface en utilisant le spectromètre toroïdal, des mesures du courant de fuite ou encore de la charge piégée, la détermination de la valeur de l'énergie critique  $E_{cII}$  d'un isolant sous irradiation permanente est désormais possible. La

méthodologie que nous préconisons pour déterminer la valeur de cette énergie est basée sur l'approche conventionnelle mais en tenant compte de l'influence du courant de fuite sur les mécanismes de charge. Dans cette détermination, le poids prédominant du courant de fuite par rapport à celui de la présence d'une couche de contamination a été souligné.

L'autre volet de ce travail est l'étude des isolants métallisés en surface tels qu'ils sont analysés en spectroscopie d'émission X. Grâce à une légère modification du dispositif de mesure destiné au départ aux isolants nus, il a été possible de déterminer le champ électrique créé par la charge piégée sous le revêtement superficiel. En suivant l'évolution temporelle de l'intensité de la raie  $\text{NaK}\alpha$  dans un verre sodocalcique, nous avons montré que ce champ pouvait être plus intense que celui créé dans les mêmes conditions dans un isolant nu.

Enfin, au niveau des perspectives, il serait intéressant d'étudier l'influence de la température sur le comportement des courants d'influence et de fuite mesurés simultanément à l'aide du dispositif expérimental mis au point. Cette étude débouchera sans doute sur une meilleure compréhension de l'effet de la température sur les phénomènes de piégeage-dépiégeage.

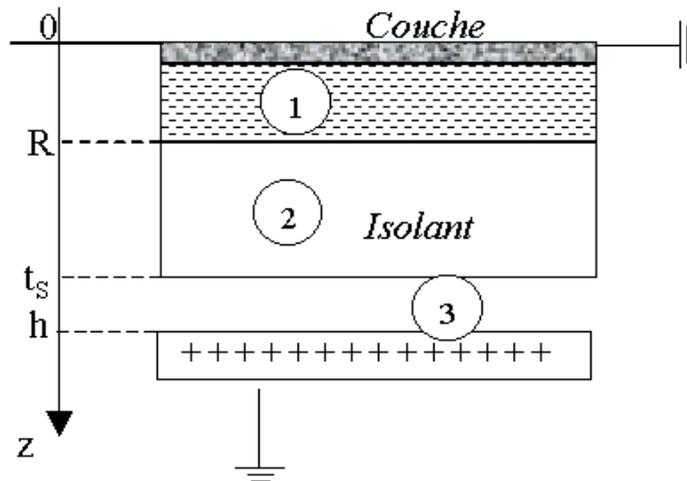
**ANNEXE**

## ANNEXE

## Calcul du facteur d'influence électrostatique

Sur la figure ci-dessous représentant schématiquement la configuration géométrique utilisée dans cette étude on distingue 3 zones :

- Zone 1 :  $0 < z < R$   
C'est la partie chargée de l'échantillon qui s'étend de l'interface métal isolant jusqu'à la profondeur maximale de pénétration des électrons primaires  $R$ .
- Zone 2 :  $R < z < t_s$   
C'est la partie non chargée de l'échantillon qui s'étend de  $R$  à  $t_s$ .  $t_s$  est l'épaisseur de l'échantillon métallisé.
- Zone 3 :  $t_s < z < h$   
C'est l'espace vide séparant la face inférieure de l'échantillon et l'électrode de mesure du courant d'influence située à une distance  $h$  de la surface de l'échantillon.



**Fig. Annexe :** Représentation schématique des différentes zones étudiées dans le cas d'un échantillon métallisé soumis à une irradiation électronique.

La résolution de l'équation de Poisson en tenant compte des conditions aux limites et de l'équation de continuité dans les régions spécifiées ci-dessus permettra d'avoir l'expression du facteur d'influence  $K$  ainsi que le champ électrique à l'interface métal/isolant. La densité volumique de charge est négative et est notée  $\rho$ . La constante diélectrique du matériau est  $\epsilon$ .

Zone (1) :

$$V(z) = -\frac{1}{2} \frac{\rho}{\varepsilon} z^2 + C_1^1 z + C_2^1$$

A la surface de l'échantillon (couche métallique)  $\Rightarrow V(0) = 0$  donc  $C_2^1 = 0$

$$V(z) = -\frac{1}{2} \frac{\rho}{\varepsilon} z^2 + C_1^1 z$$

Zone (2) :

$$\frac{\partial^2 V}{\partial z^2} = 0 \quad \Rightarrow \quad \frac{\partial V}{\partial z} = C_1^2 \quad \Rightarrow \quad V(z) = C_1^2 z + C_2^2$$

Zone (3) :

$$\frac{\partial^2 V}{\partial z^2} = 0 \quad \Rightarrow \quad \frac{\partial V}{\partial z} = C_1^3 \quad \Rightarrow \quad V(z) = C_1^3 z + C_2^3$$

$$V(h) = 0 \quad \Rightarrow \quad C_1^3 h + C_2^3 = 0 \quad (I)$$

### Continuité du potentiel

- Interface des zones (1) et (2)

$$\Rightarrow V^1(R) = V^2(R)$$

$$-\frac{1}{2} \frac{\rho}{\varepsilon} R^2 + C_1^1 R = C_1^2 R + C_2^2 \quad (II)$$

- Interface des zones (2) et (3)

$$\Rightarrow V^{(2)}(t_s) = V^{(3)}(t_s)$$

$$C_1^2 t_s + C_2^2 = C_1^3 t_s + C_2^3 \quad (III)$$

### Continuité de la composante normale (selon z) du vecteur déplacement électrique

$$\vec{D} = \varepsilon \vec{E} \quad \Rightarrow \quad D_z = \varepsilon E_z$$

- zone (1)  $\Rightarrow E(z) = \frac{\rho z}{\varepsilon} - C_1^1$
- zone (2)  $\Rightarrow E(z) = -C_1^2$
- zone (3)  $\Rightarrow E(z) = -C_1^3$

$$\begin{aligned} \bullet \text{ entre (1) et (2)} & \Rightarrow \varepsilon_r \left( \frac{\rho R}{\varepsilon} - C_1^1 \right) = -\varepsilon_r C_1^2 \\ & \Rightarrow \frac{\rho R}{\varepsilon} - C_1^1 = -C_1^2 \end{aligned} \quad (\text{IV})$$

$$\bullet \text{ entre (2) et (3)} \Rightarrow -\varepsilon C_1^2 = -C_1^3 \quad (\text{V})$$

La charge image est donnée par :

$$Q_{\text{im}} = Q'' = -\varepsilon_0 C_1^3 S$$

Il faut déterminer  $C_1^3$  à partir des équations (I), (II), (III), (IV) et (V).

$$(\text{III}) \Rightarrow C_1^3 = \frac{1}{t_s} [C_1^2 t_s + C_2^2 - C_2^3] = C_1^2 + \frac{1}{t_s} C_2^2 + \frac{h}{t_s} C_1^3$$

$$\Rightarrow C_1^3 \left(1 - \frac{h}{t_s}\right) = C_1^2 + \frac{1}{t_s} C_2^2$$

Remplaçant  $C_1^2$  par sa valeur à partir de l'équation (IV)

$$\text{On a donc} \Rightarrow C_1^3 \left(1 - \frac{h}{t_s}\right) = C_1^1 - \frac{\rho R}{\varepsilon} + \frac{1}{t_s} C_2^2$$

Déterminons maintenant  $C_2^2$  :

$$(\text{II}) \Rightarrow C_2^2 = -\frac{1}{2} \frac{\rho R^2}{\varepsilon} + C_1^1 R - C_1^2 R$$

$$(\text{IV}) \Rightarrow C_2^2 = -\frac{1}{2} \frac{\rho R^2}{\varepsilon} + C_1^1 R - \left(C_1^1 - \frac{\rho R}{\varepsilon}\right) R$$

$$\text{Donc} \Rightarrow C_2^2 = \frac{1}{2} \frac{\rho R^2}{\varepsilon}$$

$$\Rightarrow C_1^3 \left(1 - \frac{h}{t_s}\right) = C_1^1 - \frac{\rho R}{\varepsilon} + \frac{1}{t_s} \frac{\rho R^2}{2\varepsilon}$$

Il reste donc d'exprimer  $C_1^1$  en fonction de  $C_1^3$

$$\left. \begin{aligned} (\text{V}) \Rightarrow \varepsilon_r C_1^2 &= C_1^3 \\ \text{or d'après (IV)} \quad C_1^2 &= C_1^1 - \frac{\rho R}{\varepsilon} \end{aligned} \right\} \Rightarrow C_1^3 = \varepsilon_r \left( C_1^1 - \frac{\rho R}{\varepsilon} \right)$$

$$\Rightarrow C_1^1 = \frac{C_1^3}{\varepsilon_r} + \frac{\rho R}{\varepsilon}$$

$$\text{Finalement} \quad \Rightarrow \quad C_1^3 \left(1 - \frac{h}{t_s}\right) = \frac{C_1^3}{\epsilon_r} + \frac{\rho R}{\epsilon} - \frac{\rho R}{\epsilon} + \frac{1}{t_s} \frac{\rho R^2}{2\epsilon}$$

$$C_1^3 \left(1 - \frac{h}{t_s} - \frac{1}{\epsilon_r}\right) = \frac{1}{t_s} \frac{\rho R^2}{2\epsilon}$$

$$C_1^3 = \frac{1}{t_s} \frac{\rho R^2}{2\epsilon_0\epsilon_r \left(1 - \frac{h}{t_s} - \frac{1}{\epsilon_r}\right)}$$

$$C_1^3 = \frac{\rho R^2}{2\epsilon_0\epsilon_r t_s - 2h\epsilon_0\epsilon_r - 2\epsilon_0}$$

$$C_1^3 = \frac{\rho R^2}{2\epsilon_0(\epsilon_r(t_s - h) - t_s)}$$

$$\text{or :} \quad \rho = \frac{Q}{R S} \quad \Rightarrow \quad \rho R^2 = \frac{Q R}{S} \quad \Rightarrow \quad C_1^3 = \frac{Q R}{2 S \epsilon_0(\epsilon_r(t_s - h) - t_s)}$$

$$Q_{im} = Q'' = -\epsilon_0 C_1^3 S = k Q \quad (Q : \text{la charge piégée})$$

Finalement le coefficient d'influence électrostatique s'exprime ainsi:

$$K = -\frac{R/2t_s}{\epsilon_r(1 - h/t_s) - 1}$$

### Calcul du champ Maximal

$$\text{Zone (1)} \Rightarrow E(z) = \frac{\rho z}{\epsilon} - C_1^1$$

$$\text{En } z = 0 \Rightarrow E_{\max} = -C_1^1 = -\frac{C_1^3}{\epsilon_r} - \frac{\rho R}{\epsilon} = -\frac{Q R}{2 S \epsilon(\epsilon_r(t_s - h) - t_s)} - \frac{\rho R}{\epsilon}$$

$$\text{On aura donc} \quad E_{\max} = -\frac{Q}{S \epsilon} \left(1 + \frac{R}{2(\epsilon_r(t_s - h) - t_s)}\right)$$

Or R est très faible devant  $t_s$  et h

$$\text{Donc} \quad E_{\max} = -\frac{Q}{S \epsilon}$$

## Résumé

Sous irradiation électronique, les matériaux isolants sont le siège d'effets très complexes appelés « effets de charges » qui présentent deux aspects, l'un négatif et l'autre positif. Si d'une part ces effets constituent une gêne pour l'observation des matériaux isolants en microscopie électronique à balayage et pour leur analyse par spectroscopie d'émission X ils peuvent constituer d'autre part un outil de caractérisation et de diagnostic de ces matériaux. La présente étude exploite ce dernier aspect pour mieux comprendre les mécanismes physiques mis en jeu dans les phénomènes de charge notamment les phénomènes de piégeage et de dépiégeage, l'émission, secondaires ainsi que les phénomènes de transport de charge. D'un point de vue pratique cette étude permettra d'optimiser l'élaboration des matériaux isolants destinés aux applications industrielles (électriques ou mécaniques) ainsi que leur procédés de fabrication.

Ce mémoire, est subdivisé en trois parties principales.

Dans la première partie nous décrivons l'aspect expérimental lié aux processus d'injection d'une charge par un faisceau d'électrons dans l'isolant ainsi que les techniques de mesure dynamique de la charge accumulée (et/ou du potentiel de surface) dans l'isolant qui ont été mises au point.

Dans la deuxième partie, la corrélation entre les propriétés physiques de l'isolant et son aptitude à accumuler une charge électrique sous irradiation électronique est discutée. L'accent est mis en particulier sur l'étude des paramètres physiques (émission électronique secondaire, mécanismes de transport de charge) qui caractérisent le comportement électrique de l'isolant.

La troisième partie est destinée à la détermination du champ électrique interne dans le cas des isolants recouverts par une couche métallique mise à la masse et à la compréhension de ses effets sur les interactions électron-matière et sur la modification chimique de l'isolant.

**Mots Clefs :** microscopie électronique à balayage, matériaux diélectriques, irradiation par un faisceau d'électron, piégeage de charge, émission électronique secondaire, courant de fuite, énergie critique.

## Summary

When insulating materials are submitted to electron irradiation, the so called charging effects occur. These effects may induce changes in electron specimen interaction parameters and hence in many properties of insulator such as secondary electron emission and leakage current. From a fundamental point of view, the study of insulators allow the physical mechanisms of charging to be understood.

This manuscript, is subdivided in three parts.

In the first part, the experimental aspects related to the process of charge injection using an electron beam are studied. In order to study the electric behavior of the insulator under and after electron irradiation, new measurement techniques are developed and described

In the second part, the correlation between the properties of the insulator and its ability to charge evacuation is discussed. Moreover, the influence of the physical processes such as secondary electron emission, leakage current, etc... on the electric behavior of the insulator are investigated.

The third part concerns an experimental approach for characterizing the internal trapped charge and the electric field build up in grounded-coated insulators during their electron-irradiation.

**Key words :** Scanning electron microscopy, dielectric materials, irradiation by an electron beam, charge trapping, secondary electron emission, leakage current, second crossover energy.