HAL
open science

Contrôle optique des cathodes froides à base de nanotubes de carbone pour les sources THz

Pierrick Guiset

To cite this version:

Pierrick Guiset. Contrôle optique des cathodes froides à base de nanotubes de carbone pour les sources THz. Micro et nanotechnologies/Microélectronique. Ecole Polytechnique X, 2010. Français. NNT : . pastel-00543060v1

HAL Id: pastel-00543060

https://pastel.hal.science/pastel-00543060v1

Submitted on 5 Dec 2010 (v1), last revised 5 Jan 2011 (v2)

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

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

Thèse présentée pour obtenir le grade de
DOCTEUR DE L'ECOLE POLYTECHNIQUE
Spécialité : Physique

par

Pierrick GUISET

Contrôle optique des cathodes froides à base de nanotubes de carbone pour les sources THz

Soutenue le 17 mars 2010 devant le jury composé de :

Bernard Deconihout	Université de Rouen	Président du Jury
Jùan José Saenz	Universidad Autonoma de Madrid	Rapporteur
Stephen Purcell	LPMCN, Lyon	Rapporteur
Alain Durand	TED, Velizy	Examinateur
Didier Pribat	LPICM, Palaiseau	Directeur de thèse
Pierre Legagneux	TRT, Palaiseau	Invité
Alfredo De Rossi	TRT, Palaiseau	Invité
Marc Chatelet	LPICM, Palaiseau	Invité
Costel Cojocaru	LPICM, Palaiseau	Invité
Pascal Maigne	Direction Générale de l'Armement	Invité

"La science est l'asymptote de la vérité. Elle approche sans cesse, et ne touche jamais. Du reste, toutes les grandeurs, elle les a. Elle a la volonté, la précision, l'enthousiasme, l'attention profonde, la pénétration, la finesse, la force, la patience d'enchaînement, le guet permanent du phénomène, l'ardeur du progrès, et jusqu'à des accès de bravoure."

Victor Hugo

Remerciements

Le travail présenté dans ce manuscrit est le fruit de trois années de recherche passées au sein du Laboratoire Commun Nanocarb de Thales Research & Technology (TRT). Elles auront été très enrichissantes tant par les moyens mis à ma disposition que par les qualités humaines et scientifiques des personnes que j'ai eu l'occasion de côtoyer. De tout cela, je garderai un excellent souvenir !

Je tiens d'abord à remercier les personnes qui m'ont encadré et aidé à piloter ce travail. Pour ses conseils et l'enthousiasme qu'il m'a apporté durant ce travail, je remercie Pierre Legagneux, le directeur du Laboratoire Commun Nanocarb. Je remercie également Alfredo De Rossi pour son soutien et pour m'avoir transmis sa passion de l'optique de champ proche.

Je remercie également Didier Pribat du Laboratoire de Physique des Interfaces et des Couches Minces de l'Ecole Polytechnique, qui a été mon directeur de thèse durant ces trois ans.

J'aimerais ensuite remercier les membres du jury, Stephen Purcell, Jùan José Saenz, Bernard Deconihout, Alain Durand et Marc Chatelet. Cela a été un grand honneur de leur présenter mon travail et de partager avec eux quelques discussions passionnantes à l'issue de ma soutenance.

La construction de ce travail a nécessité la participation de nombreuses personnes que je souhaite saluer dans ces remerciements. Pour m'avoir initier aux techniques des procédés couches minces et aider à réaliser des petits bijoux d'échantillons, je remercie tout particulièrement Sylvain Combrié, Marylin Béguet, Patrick Plouhinec, Didier Thénot et Shaïlandra Bansropun. Pour avoir autant assuré les belles croissances de nanotubes que les superbes images en microscopie électronique, je remercie Amaël Caillard, Aurélien Gohier et Costel-Sorin Cojocaru. Pour m'avoir si souvent accueilli sur leurs expériences d'ablation laser, je remercie Javier Briatico et Eric Jacquet. Pour les discussions passionnantes sur le temps de traversée tunnel, je remercie Borge Vinter. Pour avoir développé à mes côtés l'expérience de caractérisation du champ proche, je remercie Thomas Antoni. Pour m'avoir guidé dans la suite de leurs travaux, je remercie Eric Minoux et Mathieu Carras.

Au-delà des aspects techniques, j'ai eu l'occasion de travailler dans une ambiance chaleureuse portée par des personnes et des voisins qui sont souvent devenus, au terme de ses années, bien plus que des collègues. Pour cela, je remercie plus particulièrement Jean-Philippe Schnell pour nos discussions aussi passionnantes en physique qu'en étymologie, Paolo Bondavalli pour sa bonne humeur et son inoubliable mug vert, Nicolas Le Sech le keynote et le complice, Gaëlle Lehoucq ma jumelle de thèse DGA, Louis Gorintin l'adorateur des nuances automnales, Stéphane Xavier pour son humour aussi fin que ses nano-alignements, Karima

Alilat ma partenaire de footing et Richard Lebourgeois qui ne reverra jamais ses baskets. Sans oublier ceux qui ont participé de près ou de loin à ce travail : Michel Paté, Thomas Lepetit, Ludovic Hudanski, Laurent Gangloff, Garry Rose, Patrice Sarafian, Jean-Luc Maurice, Jean-Luc Reverchon, Shaïma Enouz-Vedrenne, Buntha Ea Kim, Cédric Robert.

Je veux également remercier mes amis de X'Doc : Pierre, Liem, Cécile, Andreea, Florian et Frank, qui m'ont permis de faire rimer thèse avec détente et camaraderie. Et je ne peux pas oublier les fidèles : Alain-Christophe, Marie-Anne, Julien, Micha, Nicéphore, Fabrice, et Jérémy, sans qui tout serait tellement différent.

Pour terminer, je dédie cet ouvrage à plusieurs personnes qui me sont chères : à mes parents Evelyne et Philippe dont les efforts, le soutien et l'affection m'ont permis d'aller loin dans mes études, à mon frère Quentin pour notre complicité et ses encouragements, à mes beaux-parents Catherine et Albert pour leur soutien et pour avoir gardé Juliette pendant les mois de rédaction, à mon épouse Aurélie pour la force et la joie qu'elle me donne au quotidien, je la remercie en particulier pour le soutien qu'elle m'a constamment apporté et qui a permis la réussite de ce travail (aller-retours Palaiseau-Orléans, répétitions jusqu'à l'aube, ...), à ma fille Juliette qui aura pimenté avec douceur ma fin de thèse, à l'enfant qui va naître. Je remercie également les membres de ma famille qui m'ont soutenu au cours de ces années et notamment Guy et Marie-Thérèse qui ont pu assister à ma soutenance. Et comme le bon élève n'est rien sans le bon professeur, je dédie finalement cet ouvrage à Eric Bregeras mon professeur de Physique en Terminale S.

Table des matières

Introduction **i**

1 Cathodes froides pour l'émission THz **1**
1.1 Un tube électronique THz 2
1.1.1 Les sources THz 2
1.1.2 Les tubes électroniques 4
1.1.3 Le Tube à Ondes Progressives 6
1.2 Une source électronique modulée 9
1.2.1 Introduction 9
1.2.2 Les cathodes thermoïoniques 9
1.2.3 Les cathodes froides 13
1.2.4 La prémodulation du faisceau électronique 21
1.3 La cathode THz 26
1.3.1 Introduction 26
1.3.2 La prémodulation à 1THz par mélange de fréquences 26
1.3.3 Présentation de la cathode THz 29
1.3.4 La cathode THz 30
1.3.5 Le tube THz 31
1.4 Conclusion 32

2 Optimisation du couplage électromagnétique **39**
2.1 Introduction 41
2.2 Propriétés des ondes de surface 41
2.2.1 Considérations historiques 41
2.2.2 Le champ proche optique 42
2.2.3 Le plasmon-polariton de surface 43
2.2.4 Le couplage radiatif 44
2.2.5 Les ondes lentes de surface 46
2.2.6 Le couplage aux ondes lentes de surface 52
2.2.7 Les cavités de surface unidimensionnelles 55
2.2.8 Conclusion 59
2.3 Optimisation du concentrateur de surface 61
2.3.1 Introduction 61
2.3.2 La méthode des Différences Finies dans le Domaine du Temps 61
2.3.3 Identification des mécanismes de pertes 63
2.3.4 Optimisation du concentrateur 66
2.3.5 Conclusion 68
2.4 La caractérisation expérimentale en champ proche 69
2.4.1 Introduction 69

2.4.2 Description du banc expérimental 70
2.4.3 Le champ proche sur le réseau de Bragg 71
2.4.4 Le champ proche sur le concentrateur 74
2.4.5 Conclusion 76
2.5 Le concentrateur bidimensionnel 77
2.5.1 Introduction 77
2.5.2 Introduction de la composante de couplage 79
2.5.3 Le concentrateur 2D 80
2.5.4 Conclusion 81
2.6 Conclusion 82

3 Etude de la cathode THz 87
3.1 Introduction 88
3.2 Les cathodes froides à base de nanotubes de carbone 88
3.2.1 Introduction 88
3.2.2 Émission de champ d'un métal 89
3.2.3 Émission de champ d'un nanotube individuel 96
3.2.4 Émission de champ d'une cathode à nanotubes 106
3.2.5 Conclusion 110
3.3 Couplage onde-nanotube 111
3.3.1 Introduction 111
3.3.2 Couplage optique avec le catalyseur 112
3.3.3 Les nanotubes multiparois comme antenne optique 117
3.3.4 Conclusion 119
3.4 Structure et performance de la cathode THz 120
3.4.1 Introduction 120
3.4.2 Caractéristiques de la distribution d'émetteurs 120
3.4.3 Performances de la cathode THz 122
3.4.4 Conclusion 126
3.5 Conclusion 126

4 Préparation des cathodes THz 131
4.1 Introduction 133
4.2 Fabrication de la cathode THz 133
4.2.1 Fabrication du réseau métallique par lift-off 133
4.2.2 Croissance des nanotubes de carbone 140
4.2.3 Fabrication du réseau par dépôt métallique isotrope sur microstructuration silicium. 148
4.2.4 La croissance sur le concentrateur silicium 150
4.2.5 Métallisation post-croissance 157
4.2.6 Conclusion 161
4.3 Le recuit laser des cathodes à nanotubes 162
4.3.1 Limitations du courant émis 162
4.3.2 Étude du recuit laser des cathodes orientées 166
4.3.3 Conclusion 172
4.4 Développement du banc de caractérisation 173
4.4.1 Les quantités mesurées 173
4.4.2 Le système électrique 174
4.4.3 La grille d'extraction 176

4.4.4 Le contrôle optique par réflectométrie 180
4.4.5 Conclusion 182
4.5 Conclusion et perspectives 183

Conclusion **185**

Annexe **189**

Communications **193**

Introduction

Le domaine THz

Parmi les fréquences qui composent le spectre électromagnétique, on distingue usuellement deux domaines. Le premier est couvert par les dispositifs électroniques (radio, micro-ondes) et le second est couvert par les dispositifs photoniques (infrarouge, visible). A leur frontière se trouve la gamme du TeraHertz (THz) qui se manifeste par des propriétés très singulières. En effet, cette zone est naturellement peu propice aux phénomènes d'émission et très favorable aux phénomènes d'absorption. Par exemple, on ne compte que le corps noir et le rayonnement cosmique parmi les sources naturelles d'émission alors que les processus absorption de ces ondes sont très répandus et très efficaces dans tous les corps composés d'eau. Les scientifiques ont donc longtemps délaissé cette partie du spectre devant la difficulté pour y concevoir sources et détecteurs. Mais depuis les années 1980, de nouvelles techniques ont émergé pour permettre la génération d'énergie à ces fréquences. Aujourd'hui, l'émission de ce rayonnement est assurée par une dizaine de méthodes dont les plus performances, mais aussi les plus volumineuses, ont permis d'atteindre des puissances de plusieurs dizaines de Watts [1].

Le développement rapide de ces techniques a été stimulé par les formidables perspectives que leur maîtrise récente a suscitées. En médecine, le développement de l'imagerie THz offre de nouvelles possibilités diagnostiques pour l'observation les tissus. On évoque ainsi la possibilité d'assister la chirurgie oncologique par l'imagerie THz [2]. Dans le secteur industriel, l'imagerie THz permet d'analyser la structure des matériaux à l'échelle micronique. Celle-ci fût récemment utilisée dans l'enquête sur le crash de la navette Columbia [3]. La richesse spectrale des matériaux dans cette gamme permet également le contrôle qualité des produits alimentaires comme par exemple leur taux d'humidité. Dans le domaine de la sécurité, beaucoup de substances toxiques et illicites possèdent une signature dans le THz. Cela permet d'envisager le contrôle de la toxicité de l'atmosphère de lieux confinés ou encore l'identification d'explosifs ou de drogues. Par ailleurs, comme le rayonnement THz est peu absorbé par les revêtements plastiques, cette détection peut être envisagée à travers différents types de contenant comme les bagages. Ceci permettrait également de révéler des armes même non métalliques sous les vêtements [4].

Une nouvelle approche

Les enjeux de la gamme THz sont donc nombreux et appellent aujourd'hui à la conception de sources puissantes et compactes. Toutefois, ce compromis est difficilement réalisé par les dispositifs actuels. Notre étude va donc concevoir une nouvelle approche à ce problème en

1. G.L. Carr et al., *Nature*, **420**, 6912, 153-156 (2002)
2. R.M. Woodward et al., *Journal of Investigative Dermatology*, **120**, 1, 72-78 (2003)
3. H. Zhong et al., *Infrared and Millimeter Waves 12th ICTE*, 753-754 (2004)
4. M.C. Kemp, *Proceedings of SPIE*, **5070**, 45 (2003)

s'appuyant sur une technologie THz existante. Nous considérerons plus précisément les tubes électroniques dont la mise au point a été réalisée au cours du XX siècle. Ces dispositifs, qui ont notamment contribué au développement des premiers ordinateurs, sont toujours utilisés dans un grand nombre d'applications comme dans les communications par satellites. Ces tubes se composent d'une source électronique qui initie la formation d'un faisceau d'électrons dans le système. La modulation de cette source au THz sera au centre de notre travail.

Pour envisager celle-ci, nous enrichirons notre démarche de l'apport des micro et nanotechnologies. Depuis les années 1960 et la célèbre prophétie de R. Feynman "*there's plenty of room at the bottom*" [1], la possibilité d'arranger la matière à l'échelle atomique est en effet devenue concrète. Une quantité importante de nouvelles techniques ont permis l'émergence de cette révolution conceptuelle comme le microscope à effet tunnel ou le microscope à force atomique. De nouveaux nano-objets sont alors apparus en faisant parfois oublier que la nature et l'homme utilisent certains d'entre eux depuis longtemps [2]. Nous nous intéresserons dans ce travail aux nanotubes de carbone. Leur découverte a été attribuée à Iijima [3] en 1991 et depuis ils n'ont cessé de démontrer leur excellentes propriétés électroniques, thermiques et mécaniques. Ils sont notamment envisagés comme briques élémentaires des circuits électroniques de demain, comme diffuseur thermique ou encore dans les matériaux composites.

Le nanotube de carbone comme source électronique

Les premières sources électroniques utilisées dans les débuts de l'électronique sous vide ont été les cathodes dites thermoïoniques. Celles-ci nécessitent de porter un matériau à environ 1000°C pour que l'agitation thermique permette aux électrons de sortir de la matière. Mais en 1928, R.H. Fowler et L. Nordheim décrirent un nouveau mécanisme pour extraire les électrons de la matière par effet tunnel. L'origine de celui-ci est purement quantique et nécessite l'application de champs électriques très importants (2kV/µm).

Pendant longtemps, il fût difficile de concevoir l'application de tels champs sur de grandes surfaces. Ces sources ne pouvaient donc pas rivaliser en terme de courants émis avec les cathodes thermoïoniques. Mais en 1968, C. Spindt du Stanford Research Institute (SRI) réussi a fabriquer un réseau de pointes coniques en molybdène [4] dont l'émission électronique pouvait être pilotée par de faibles tensions. Cette cathode connu un remarquable intérêt et son application fût aussitôt envisagée dans les tubes électroniques. Néanmoins, plusieurs limitations sont progressivement apparues au fil des années. Ces cathodes se montrèrent sensibles à la dégradation à forts courants et limitées pour la modulation à hautes fréquences des faisceaux électroniques.

D'autres scientifiques se sont ensuite orientés vers de nouveaux matériaux plus robustes et des systèmes à fréquences de coupure plus élevées. L'émission électronique des nanotubes de carbon fût démontrée à cette période [5] [6]. Celle-ci se révéla alors très prometteuse pour les applications électroniques avec une grande stabilité thermique et de forts courants émis [7].

1. Titre de sa conférence lors d'une réunion de la *Société Américaine de Physique* à Caltech (1959)
2. On peut citer la couleur des ailes du papillon morpho ou la couleur de la coupe de Lycurgus
3. S. Iijima, *Nature*, **354**, 6348, 56-58 (1991)
4. C. Spindt, *Journal of Applied Physics*, **39**, 3504 (1968)
5. A.G. Rinzler et al., *Science*, **269**, 1550 (1995)
6. W.A. De Heer et al., *Science*, **270**,1179 (1995)
7. K. Teo et al., Nature, **437**, 968 (2005)

Éléments de l'étude

Les dispositifs traditionnels utilisés pour moduler les faisceaux électroniques possèdent des fréquences de coupure inférieures au THz. Néanmoins, une solution a été proposée à la fin des années 1980 par Krieger et al.[1] pour dépasser ces limitations. Ces chercheurs ont éclairé la pointe d'un microscope à effet tunnel avec un laser émettant deux raies spectrales séparées de quelques GHz. Grâce à la non-linéarité du courant d'émission, ceux-ci ont réussi à produire une modulation du courant à la différence des fréquences des raies du laser. Ils transposèrent ensuite cette démonstration jusqu'aux longueurs d'onde THz.

Mais leur expérience se limita à la modulation d'une unique pointe. L'étude qui est proposée dans ce manuscrit s'intéresse donc à la modulation THz à grande échelle avec une cathode à nanotubes de carbone. Ce travail vise ainsi à comprendre, concevoir, optimiser et fabriquer cette cathode ainsi qu'à préparer sa caractérisation. Bien qu'elle comporte une dimension exploratoire, notre approche sera orientée vers l'intégration de la cathode dans un tube électronique. Cet aboutissement constitue un des objectifs principaux du projet européen OPTHER (*OPtically driven TeraHertz amplifiERs*) auquel cette thèse a été rattachée.

Le premier chapitre de notre étude introduira le contexte technologique de la gamme THz, des tubes électroniques et des sources électroniques. Nous présenterons ensuite les différentes méthodes de modulation des faisceaux électroniques en identifiant leurs limites. Cela nous permettra de préciser les idées fondatrices du fonctionnement notre cathode.

Le second chapitre s'intéressera à la conception un réseau de couplage électromagnétique qui sera utilisé sur notre cathode. Celui-ci permettra de transférer l'énergie du laser aux électrons émis par les nanotubes. Nous appuierons donc nos explications sur des notions de photonique pour détailler le fonctionnement de ce composant. Ces éléments permettront de mettre en place une démarche d'optimisation numérique ainsi qu'une validation expérimentale des concepts développés. Une approche prospective viendra finalement conclure cette partie de notre travail sur le couplage à la surface de la cathode.

Le troisième chapitre sera centré sur les caractéristiques électroniques, optique et géométrique du nanotube sur la cathode. Nous développerons ainsi les propriétés individuelles et collectives des nanotubes de carbone en régime d'émission de champ. Le couplage du laser avec le nanotube sera également examiné dans cette partie. Ces éléments conduiront à l'association du réseau de nanotubes et du réseau de couplage pour former le design final de notre cathode. Ces développements conduiront à une estimation des performances globales du dispositif.

Le quatrième chapitre sera consacrée à la préparation expérimentale de la cathode. Celle-ci inclura une présentation du procédé technologique qui a été développé pour fabriquer cette cathode. On s'intéressera également à l'évolution des techniques usuellement employées sur les cathodes (recuit, caractérisation) que les spécificités de notre nouvelle cathode impose.

Nous conclurons enfin sur les résultats obtenus, leurs apports quant à la compréhension de cette nouvelle source électronique et les perspectives qu'ils ouvrent pour son utilisation en tube électronique.

1. Krieger et al., *Physical Review B*, **41**, 14 (1990)

Chapitre 1

Cathodes froides pour l'émission THz

Sommaire

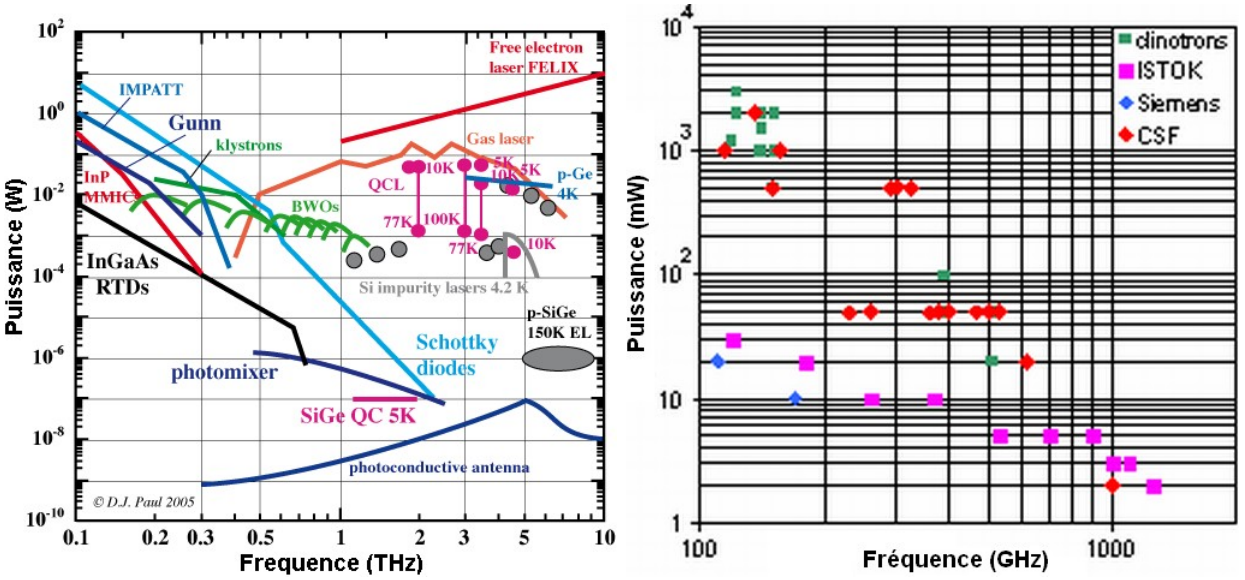
1.1 Un tube électronique THz 2
1.1.1 Les sources THz 2
1.1.2 Les tubes électroniques 4
1.1.3 Le Tube à Ondes Progressives 6
1.2 Une source électronique modulée 9
1.2.1 Introduction 9
1.2.2 Les cathodes thermoïoniques 9
1.2.2.1 L'émission thermoïonique 9
1.2.2.2 Canons et cathodes pour les TOP : état de l'art 10
1.2.3 Les cathodes froides 13
1.2.3.1 L'émission de champ 13
1.2.3.2 L'effet de pointe 14
1.2.3.3 Les cathodes Spindt 15
1.2.3.4 Les cathodes à nanotubes de carbone 16
1.2.3.5 Les autres types de cathodes froides 18
1.2.3.6 Les applications des cathodes froides 19
1.2.4 La prémodulation du faisceau électronique 21
1.2.4.1 Introduction 21
1.2.4.2 La prémodulation par grille externe 22
1.2.4.3 La prémodulation par grille intégrée 23
1.2.4.4 La prémodulation par cavité résonante 24
1.2.4.5 La photomodulation 25
1.3 La cathode THz 26
1.3.1 Introduction 26
1.3.2 La prémodulation à 1THz par mélange de fréquences 26
1.3.2.1 Émission de champ modulée par mélange de fréquences . 26
1.3.3 Présentation de la cathode THz 29
1.3.4 La cathode THz 30
1.3.5 Le tube THz 31
1.4 Conclusion 32

1.1 Un tube électronique THz

1.1.1 Les sources THz

Le TéraHertz (THz) correspond à la partie du spectre située entre 100GHz et 10THz, soit à des longueurs d'onde entre 30µm et 3mm. L'intérêt porté à cette plage spectrale a commencé dans les années 1920 pour des applications en spectroscopie. Les scientifiques employaient alors ce terme pour décrire les longueurs d'ondes se trouvant au-delà de l'infrarouge lointain.

L'énergie des photons THz est comprise entre 0.4 et 40 meV. Ces énergies sont donc plus faibles que celles impliquées dans les transitions entre les états électroniques des atomes et des molécules (>1eV) ou que les énergies de vibration moléculaires (40-100meV). Les ondes THz ne peuvent donc exciter que des résonances de faibles énergies au sein de la matière comme les modes de rotation des molécules à l'état gazeux. L'interaction des ondes THz sera donc importante avec les molécules possèdant un fort moment dipolaire comme la molécule d'eau. Ceci explique que dans les matériaux humides, le signal THz soit complètement éteint après propagation sur quelques centaines de microns. Pour les solides, la gamme THz correspond à l'excitation des vibrations collectives du cristal (phonons) et à l'excitation de porteurs libres. Les objets nanostructurés (puits quantiques, quantum dots, ...) peuvent également avoir des différences de niveaux énergétiques dans cette gamme.



(a) (b)

FIGURE 1.1 – (a) Diagramme puissance/fréquence dans la gamme THz d'après Cooke [1]. (b) Puissance maximale de sortie à la fréquence maximale pour Carcinotrons et Clinotrons.

L'emploi du THz a été longtemps restreint à la communauté scientifique en raison de sa forte absorption dans l'atmosphère et de sa mise en oeuvre difficile. En effet, étant en dehors des énergies de transitions électroniques usuelles et au-delà des fréquences de coupures des systèmes électroniques, il fût longtemps difficile de concevoir des détecteurs et sources THz. Mais depuis les années 1980, certaines solutions sont apparues. Concernant les détecteurs, on distingue les détecteurs d'énergies et les détecteurs de champ. Les premiers sont sensibles

à l'élévation de température et sont représentés par les bolomètres, les celulles de Golay ou encore les détecteurs à électrons chauds. Pour les seconds, ce sont des systèmes utilisant des cristaux électro-optiques dont l'indice est modulé par le champ THz. Les dispositifs de détection ne constituent pas le coeur de notre étude. Aussi, nous ne détaillerons pas davantage leurs caractéristiques.

Pour les sources, la figure 1.1 donne un aperçu des performances des différents systèmes existants et le tableau 1.1 compare leurs avantages et inconvénients. On constate que les puissances générées sont globalement faibles pour toutes les sources à l'exception des lasers à gaz et les lasers à électrons libres qui sont des appareils volumineux. Pour cette raison, la zone comprise entre 500GHz et 3THz à reçu le nom de "fossé" THz (en anglais *THz gap*). Notre étude cherche à concevoir une source dans ce "fossé" tout en visant un dispositif possédant des dimensions compactes.

Sources	**Avantages**	**Inconvénients**
Corps noir	simplicité, large bande	puissance faible, incohérent
Diodes (Gunn, IMPATT, ...)	compact	fréquence limitée
Free Electron Laser	puissance, spectre	volumineux
Backward Wave Oscillator	compact, accordable	fréquence limitée
Lasers moléculaires	finesse spectrale, puissance	stabilité, volumineux
Lasers à Cascade Quantiques	compact, rendement	cryogénie
Optoélec. impulsionnelle	cohérent, spectre	puissance limitée, finesse spectrale
Battement optique	compact, accordabilité, finesse	puissance faible

TABLE 1.1 – Tableau des avantages et inconvénients des sources térahertz

Dans la catégorie des sources de petites tailles, les Lasers à Cascade Quantique (en anglais *Quantum Cascade Laser = QCL*) semblent être les mieux placés. Ils produisent leur rayonnement en exploitant des transitions entre sous-bandes ou mini-bandes générées par des hétérostructures à superréseaux. Depuis leur découverte en 1994, l'optimisation de la zone active et du design de leur guide d'onde a mené vers de grandes avancées en terme de longueur d'onde disponible, puissance optique, finesse spectrale et augmentation de la température de fonctionnement. Cependant, ces composants sont perturbés par les phonons thermiques et fonctionnent donc à des températures cryogéniques et uniquement au dessus de 1THz. Ces sources sont donc compactes mais ne couvrent que partiellement le gap THz et leur utilisation à basses températures limite leur capacité d'intégration.

Dans le panorama des sources THz compactes, les tubes électroniques sont représentés par les Oscillateurs à Ondes Régressives (en anglais *Backward Wave Oscillator = BWO*), aussi nommés Carcinotrons. Ces systèmes sont des tubes sous vide dans lesquels un faisceau électronique se propage dans un potentiel périodique. Celui-ci est généré par une structure d'interaction périodique qui est le support de l'onde électromagnétique générée ou amplifiée par ce système. Bien qu'ils soient les dispositifs traditionnels de l'émission de puissance dans la gamme hyperfréquence, nous voyons sur la figure 1.1 que leur puissance de sortie reste inférieure à 10mW au delà de 600GHz. Ce faible niveau de performance provient de différentes raisons. La première est liée au fait que les dimensions de la plupart des éléments du tube sont proportionnels à sa longueur d'onde de fonctionnement. A la fréquence de 1THz, cette contrainte impose à la structure d'interaction de posséder des motifs élémentaires de quelques dizaines de microns. A cette échelle, la fabrication est donc délicate et les imperfections de réalisation apparaissent rapidement. Celles-ci engendrent des pertes importantes qui

s'ajoutent à des pertes diélectriques plus importantes que dans la gamme hyperfréquence. Par conséquent, bien qu'ils présentent une taille et une accordabilité avantageuses dans la gamme THz, les BWO sont pénalisés par leurs pertes importantes qui brident leur puissance de sortie.

Malgré ces difficultés, les technologies associées aux tubes électroniques progressent. Avec les avancées récentes de la microfabrication et des nanotechnologies, il est devenu possible de réaliser des structures adaptées à cette gamme de fréquences avec moins de défauts. L'émergence de nouveaux procédés de fabrication mène également à l'exploration de nouvelles structures et sources électroniques. Pour donner quelques exemples, voici un aperçu de projets récents de tubes électroniques THz intégrant des cathodes dites "froides" :

- le Jet Propulsion Laboratory de la NASA étudie un nanoreflex Klystron à 1.2THz pour une puissance de sortie de 3mW.
- le groupe Teraphysics réalise des BWO à 300GHz et 600GHz pour des puissances de sortie supérieures 40mW.
- la société Northrop Grumann a réalisé une source à 650GHz basée sur un guide d'onde replié et avec une puissance de sortie de 16mW.

Notre étude a été également motivée par la possibilité de combler une partie du gap THz avec un tube électronique. Elle vise à réaliser une nouvelle source émettant dans la gamme 600GHz-1THz avec une puissance de sortie de l'ordre de 10-100mW en s'appuyant sur l'intégration d'une cathode froide spécifique. La conception particulière de cette cathode constitue le centre de notre étude. La suite de cette partie sera donc consacrée à l'électronique sous vide avec la présentation du tube et de la cathode.

1.1.2 Les tubes électroniques

Les premiers développements des tubes électroniques datent du 19ème siècle et impliquèrent quelques grands scientifiques des lumières comme Thomas Edison ou Nikola Tesla. Les applications importantes émergeant de cette période furent principalement les lampes à incandescence pour l'éclairage et les tubes Geissler pour les panneaux d'affichage lumineux. Au début du 20ème siècle, l'américain Lee De Forest eut l'idée de disposer une grille entre la cathode et anode du montage diode afin de contrôler le flux d'électron circulant dans le système. Son appareil permit ainsi l'amplification de signaux électriques et fût en conséquence rapidement intégré dans les dispositifs de radiocommunication. Cette étape est importante pour les tubes électroniques amplificateurs puisqu'elle marque le démarrage de leur production industrielle.

A partir de ces premières découvertes, le développement des tubes suivit les importantes évolutions de la société. Avec l'essor des communications, les tubes furent largement employés dans les systèmes de réception/transmission de la radio, de la télévision et de la téléphonie. Les systèmes informatiques firent également les beaux jours des tubes en les intégrant pendant une vingtaine années dans les premières unités de calcul (ordinateur *Colossus*, 1943). La seconde guerre mondiale fût aussi un accélérateur majeur de l'évolution des tubes avec leur intégration dans les systèmes radars.

Mais à partir des années 1960, l'électronique sous vide fût confrontée aux progrès rapides des composants à base de semiconducteurs. Les transistors et diodes états solides, plus

compacts, plus efficaces et moins coûteux, finirent par les remplacer dans la plupart des applications. Toutefois, les tubes ont toujours conservés leur supériorité notamment en terme de puissance émise et de fiabilité. Certains secteurs ont ainsi maintenu un fonctionnement basé sur les tubes électroniques. Nous pouvons principalement citer les domaines suivants :

- **les applications médicales** : l'imagerie par rayons X, le traitement par radiothérapie
- **les applications scientifiques** : en particulier pour les accélérateurs de particules
- **les applications militaires et civiles** : pour les systèmes radars (naval, aérien, terrestre), les systèmes d'écoute et les brouilleurs de signaux
- **les communications** : pour les stations terrestres et spatiales afin d'assurer les services de téléphonie, de localisation GPS, de diffusion de la télévision, de la radio, ...
- **le chauffage industriel** : pour le chauffage des matériaux, l'activation des réactions chimiques et le traitement des fumées industrielles

Une grande variété de tubes a donc été conçue pour répondre aux besoins de ces secteurs. On rencontre parmi eux les klystrons, les gyrotrons, les magnétrons, les tubes à grilles (triodes, tube à sortie inductive, ...), les tubes à ondes progressives, les tubes à ondes régressives, ... ; tous ayant un fonctionnement basé sur l'amplification ou l'émission d'une onde électromagnétique par l'intermédiaire d'un faisceau d'électrons accéléré.

Pour la génération du rayonnement THz, notre étude s'est initialement intéressé à la structure des Tubes à Ondes Progressives. Jusqu'à présent, leurs puissances de sortie dans cette gamme spectrale ne se distinguent pas de celles des BWO. Néanmoins, nous verrons plus loin dans ce chapitre que l'utilisation d'une cathode "froide" dans ce type de tubes électroniques pourrait permettre d'améliorer cette situation. Par conséquent, nous allons développer dans la suite une brève introduction au fonctionnement de ce tube.

1.1.3 Le Tube à Ondes Progressives

Les premières recherches sur le Tube à Ondes Progressives (TOP) débutèrent en Angleterre à Université de Birmingham puis au États-Unis durant la seconde guerre mondiale. Pendant cette période, les scientifiques R. Kompfner (Université d'Oxford) et J.R. Pierce (laboratoires Bell) s'y intéressèrent particulièrement. Leurs résultats montrèrent qu'en intégrant des lignes hélicoïdales aux voisinages de faisceaux électroniques, il était possible d'obtenir une amplification importante des signaux radiofréquences injectés sur la ligne.

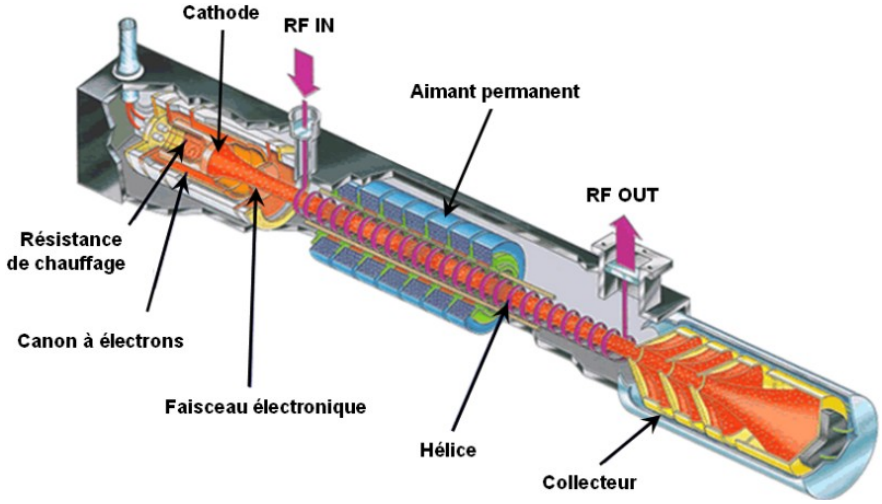


FIGURE 1.2 – Schéma d'un Tube à Ondes Progressives

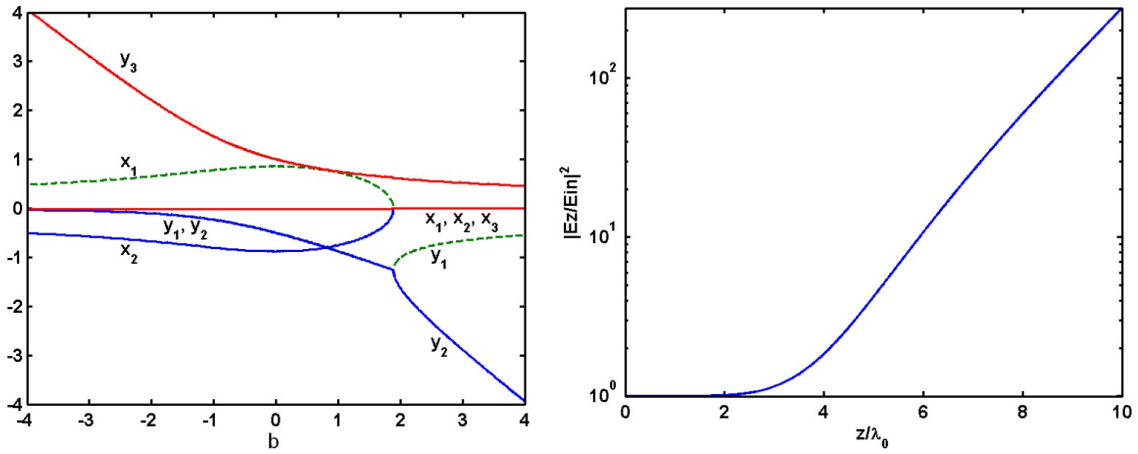
Les éléments fonctionnels du Tube à Ondes Progressives sont détaillés sur la figure 1.2 :
- **la cathode** : elle émet un faisceau électronique au sein du canon à électron
- **la ligne à retard** : elle est composée d'une structure métallique périodique formant un guide d'onde à proximité du faisceau électronique.
- **le collecteur** : il recueille les électrons du faisceau après interaction avec l'onde.

Le processus d'amplification dans un TOP se produit dans la ligne à retard par l'interaction entre un faisceau électronique et une onde électromagnétique progressive. La structure métallique périodique qui forme la ligne (par exemple une hélice) a pour effet de réduire la vitesse de phase de la composante longitudinale de l'onde afin qu'elle se rapproche de la vitesse du faisceau électronique. Cette condition est nécessaire pour qu'un échange d'énergie puisse se produire entre le faisceau et l'onde.

Cet accord des vitesses a été formalisé par la description analytique du TOP de J.R. Pierce [2]. Dans cette approche, l'interaction du faisceau électronique avec une ligne à retard est décrite dans le cas où les signaux du tube restent faiblement modulés. Le calcul est basé sur une modélisation de la ligne à retard par un circuit équivalent intégrant une série périodique de capacités et d'inductances. Après la formalisation des interactions onde-faisceau pour un système sans pertes, Pierce donne l'expression du champ électrique longitudinal (selon l'axe du tube orienté dans la direction Oz) ainsi que l'expression réduite de la relation de dispersion :

$$E_z(z) \propto e^{a\delta z} \quad \text{avec} \quad \delta^2(\delta + jb) = -j$$

Dans la formule du champ électrique, on omet le terme harmonique dépendant du temps. Les paramètres a et b avec a>0 sont extraits du modèle de Pierce et leur signification n'est pas



(a) Diagramme de dispersion de Pierce

(b) Profil d'amplification pour b<1.89

FIGURE 1.3 – Fonctionnement du TOP d'après Pierce

nécessaire à notre explication. La variable complexe $\delta = x + jy$ représente le vecteur d'onde réduit. Dans cette expression, la variable x est liée à l'atténuation (x<0) ou l'amplification (x>0) exponentielle de l'amplitude de l'onde. La variable y est égale à la différence entre la vitesse de phase de l'onde et celle du faisceau électronique.
L'équation de la dispersion est du 3ème ordre, ce qui indique que la ligne à retard supporte principalement la propagation de 3 ondes. Afin de caractériser la nature des 3 solutions δ_1, δ_2 et δ_3, la résolution numérique de cette équation est proposée sur la figure 1.3a. On constate que dans le régime où $b < 1.89$, l'amplitude de l'onde n°1 est amplifiée ($x_1 > 0$), celle de l'onde n°2 est atténuée ($x_2 < 0$) et celle de l'onde n°3 est invariante ($x_3 = 0$). Si on additionne ces 3 ondes dans ce régime, on constate sur la figure 1.3b que l'amplification exponentielle se produit bien le long de la ligne. La vérification de cette condition implique également que les valeurs y_1 et y_2 soient négatives. Ceci implique que la vitesse de phase de ces deux ondes doit être plus faible que celle du faisceau électronique. Le processus d'amplification est donc associé à un retard de l'onde sur le faisceau électronique.

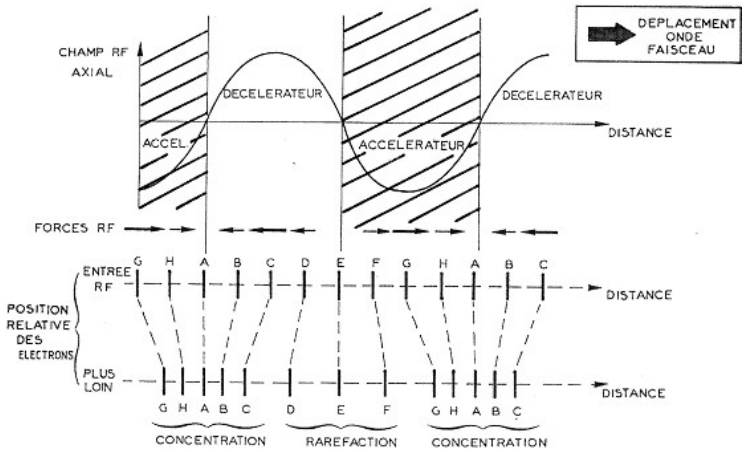


FIGURE 1.4 – Effet d'une vitesse nulle

Pour le comprendre, nous nous intéressons à la représentation schématique de l'accord

et du désaccord de vitesse de phase sur les figures 1.4 et 1.5. Dans ces deux situations, la composante longitudinale du champ électrique exerce périodiquement une force retardatrice et accélératrice sur le faisceau électronique. Elle provoque ainsi la mise en paquet des électrons tel que représenté sur la figure 1.4. Dans le cas où les vitesses de phase onde-électron sont égales les électrons du faisceau sont autant accélérés que décélérés et aucune énergie n'est échangée. Dans le cas où la vitesse de phase de l'onde est légèrement plus faible, la figure 1.5 montre que les paquets d'électrons vont avoir tendance à se déplacer par rapport à l'onde pour se trouver en permanence dans une zone où le champ électrique est retardateur. Les électrons sont alors freinés par ce champ et cèdent progressivement leur énergie cinétique à l'onde. La synchronisation des ondes qui se propagent dans le sens du faisceau permet aux composantes en phase de s'ajouter et de favoriser le groupement des électrons. Ainsi, de plus en plus d'énergie est cédée au faisceau entraînant une croissance exponentielle de la puissance de l'onde en fonction de la distance. Celle-ci est représentée sur la figure 1.5 où la sommation des 3 ondes du calcul de Pierce a été effectuée.

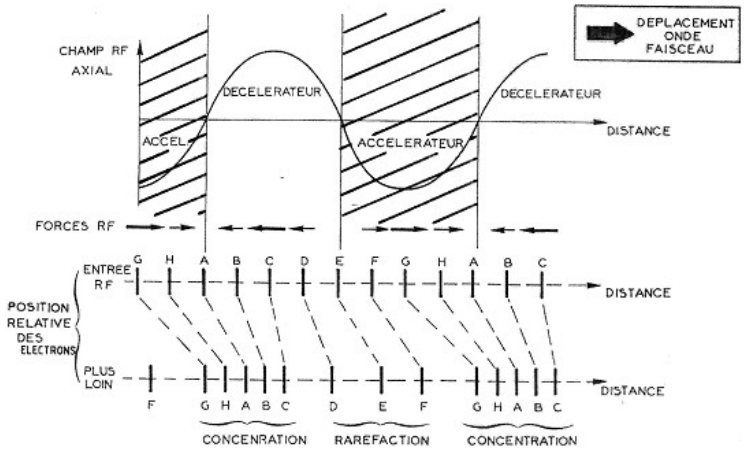


FIGURE 1.5 – Effet d'une différence de vitesse

A l'issue de la zone d'interaction, l'onde amplifiée est guidée vers le port de sortie du tube électronique et les électrons du faisceau électronique se dirigent vers le collecteur. Il est à noter que pour diminuer la puissance dissipée dans le collecteur, on utilise des collecteurs dit "déprimés". Ces collecteurs possède un potentiel qui est compris entre celui de la ligne et celui de la cathode afin de freiner les électrons avant l'impact et ainsi réduire leur énergie cinétique. A l'issue de l'interaction, le spectre de vitesse du faisceau est large et nécessite l'utilisation de plusieurs collecteurs à des potentiels différents sur lesquels on répartit les électrons en fonction de leur énergie résiduelle. Cette répartition des électrons entre plusieurs collecteurs à des tensions différentes se traduit par une réduction de la puissance électrique appliquée au tube et donc par une augmentation du rendement électrique global.

Aujourd'hui, ces tubes sont conçus pour fonctionner à hautes fréquences, de quelques GHz à quelques dizaines de GHz. Ils offrent des gains importants (40-50dB) avec des puissances de sortie entre 100W et 100kW. Mais leur puissance de sortie chute rapidement au dessus de quelques dizaines de GHz. Nous devons donc trouver des moyens de réduire cet affaiblissement des performances jusqu'au THz. Pour atteindre cet objectif, nous allons utiliser une source de courant que l'on appelle cathode "froide". Dans la suite, nous allons détailler les spécificités de ces cathodes pour comprendre l'intérêt de leur utilisation dans le régime THz.

1.2 Une source électronique modulée

1.2.1 Introduction

La position de la cathode au sein d'un TOP a été précédemment indiquée sur la figure 1.2. Dans ces tubes, les densités de courant délivrées par la source électronique peuvent varier de quelques mA/cm^2 à 100 A/cm^2 selon le mécanisme d'émission et le régime d'émission (continu ou pulsé). On distingue principalement deux types de cathodes. D'une part, les cathodes thermoïoniques qui sont fiables et utilisées dans la majorité des tubes depuis les débuts de l'électronique sous vide. D'autre part, les cathodes froides dont l'utilisation, moins répandue, concerne davantage un marché de niches technologiques.

La cathode est un composant dont les caractéristiques (courant, modulation, densité de courant, température, dimensions, géométrie, ...) sont déterminantes pour les performances d'un tube et notamment dans la gamme critique du THz. Dans la première partie de ce chapitre, nous allons donc présenter ces différentes cathodes pour comprendre et envisager des solutions à ce problème. Dans une deuxième partie, nous verrons notamment que la modulation du faisceau électronique directement au niveau de la cathode, appelée prémodulation, permet de réduire la longueur de la ligne à retard. Cette propriété nous conduira à la présentation à la cathode de notre étude.

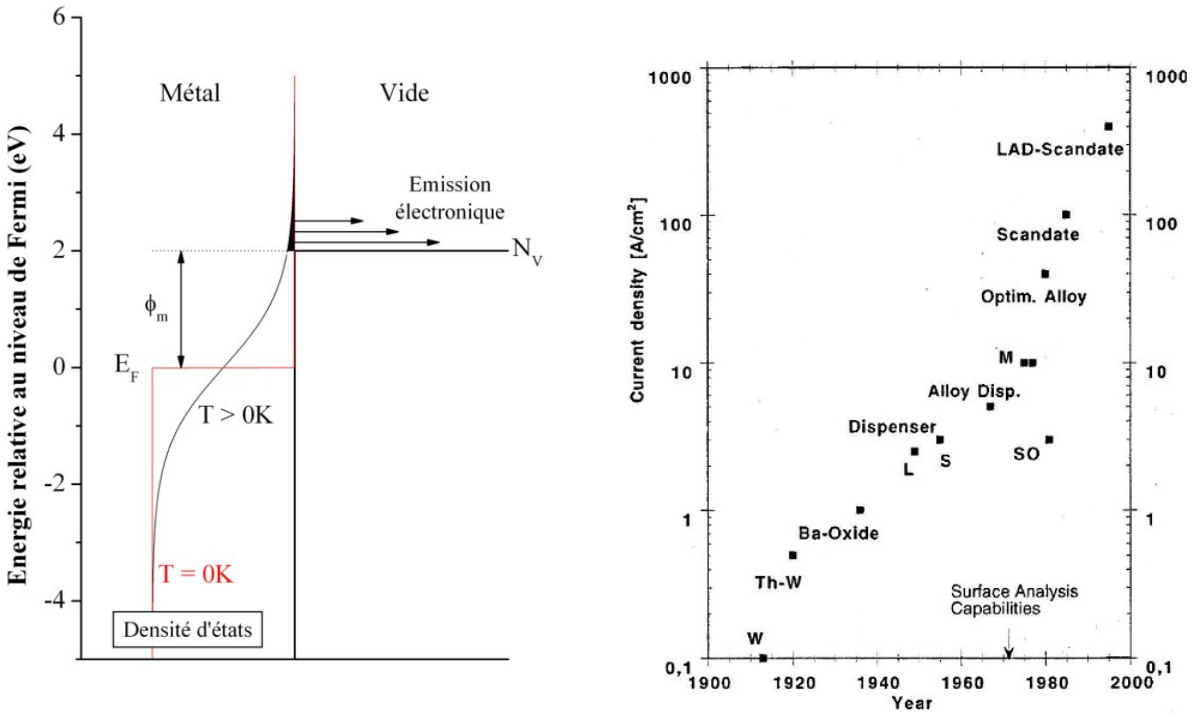
Bien que notre étude concerne principalement les applications du domaine THz, il est important de noter que la prémodulation intéresse également d'autres domaines comme celui de l'industrie spatiale. La source développée doit alors offrir une puissance de quelques dizaines de W à quelques centaines de Watts (puissances continues) pour des fréquences supérieures à 10GHz. Elle doit être simple, compacte et peu coûteuse. En effet, un satellite peut embarquer environ 100 TOPs pesant chacun près de 1kg pour une longueur d'environ 30cm. En réduisant la longueur de la ligne, la prémodulation pourrait ainsi permettre d'augmenter la puissance délivrée pour une même masse de tubes + alimentations embarquée, ou alors de diminuer la masse de tubes + alimentations embarquée pour une même puissance délivrée.

1.2.2 Les cathodes thermoïoniques

1.2.2.1 L'émission thermoïonique

L'émission thermoïonique est un mécanisme lors duquel l'excitation thermique d'un matériau (métal ou oxyde métallique) devient suffisante pour que ses électrons puissent franchir la barrière électrostatique qui les sépare d'un autre matériau (le vide dans notre cas). Pour décrire cette jonction métal-vide, nous nous appuyons sur la figure 1.6. Elle montre les distributions de Fermi-Dirac des électrons pour une température proche du zéro absolu et pour une température où l'émission électronique se produit. L'utilisation de la distribution de Fermi-Dirac est spécifique à la nature fermionique des électrons. Elle exprime leur probabilité d'occupation des états énergétiques.

Dans le premier cas, on retrouve la définition de deux grandeurs fondamentales. Tout d'abord l'énergie de Fermi E_F, qui est donnée par l'énergie la plus haute que les électrons peuvent atteindre à température nulle, et ensuite le travail de sortie ϕ_m, qui est donné par l'énergie minimum à fournir pour extraire ces électrons du niveau de Fermi vers le vide. Cette grandeur est une caractéristique intrinsèque du métal utilisé. Dans cette configuration, les



(a) (b)

FIGURE 1.6 – (a) Diagramme de la jonction métal-vide en régime d'émission thermoïonique (b) Evolution de la densité de courant des cathodes thermoïonique (d'après Gartner [3])

électrons ne sortent donc pas du matériau.

Dans le deuxième cas, la température du matériau augmente et les électrons deviennent capables d'occuper des états plus énergétiques. Lorsque ceux-ci dépassent le travail de sortie, les électrons ne sont alors plus confinés par le potentiel cristallin et peuvent être extraits dans le vide. Plus précisément, les électrons extraits du métal par cette méthode sont ceux dont l'énergie cinétique normale à l'interface est supérieure au travail de sortie. La densité de courant correspondante à cet effet est donnée par la formule de Richardson-Laue-Dushman (RLD) :

$$J_{RLD} = 4\pi \frac{emk_B^2}{h^3} T^2 exp(-\frac{\phi_m}{k_B T}) \tag{1.1}$$

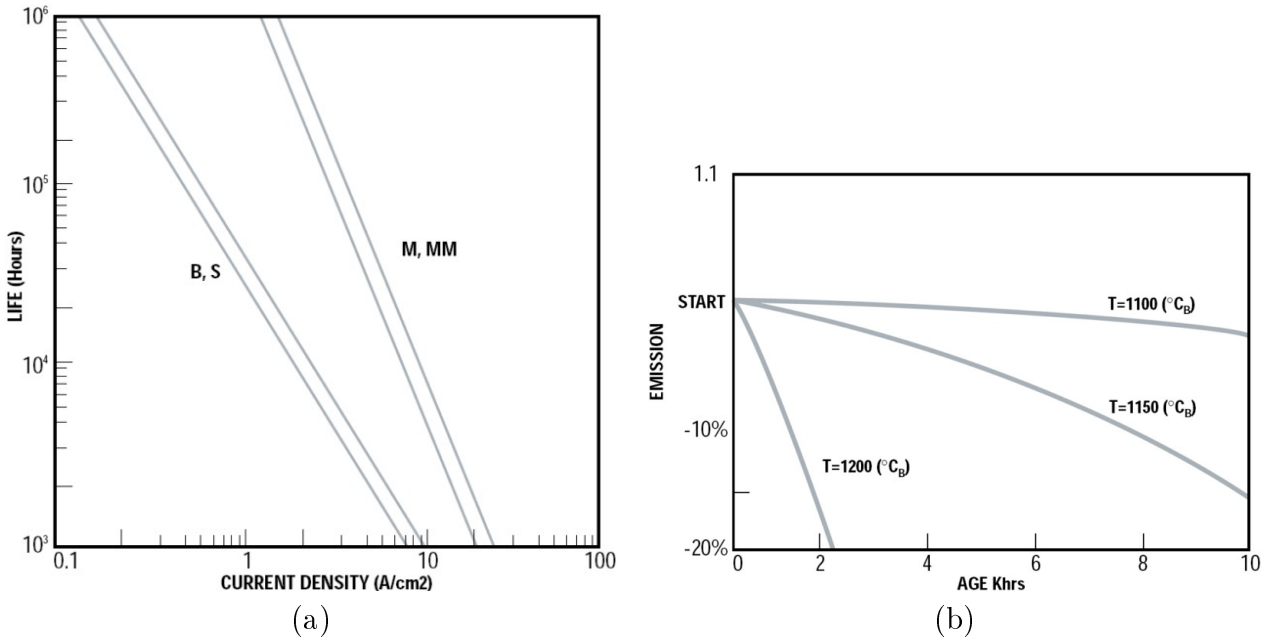
Avec e la charge de l'électron, m la masse de l'électron, h la constante de Planck, k_B la constante de Boltzmann et ϕ_m le travail de sortie du métal (entre 2 et 6eV selon le métal). Nous voyons que la densité de courant augmente exponentiellement avec l'accroissement de la température et/ou la diminution du travail de sortie.

1.2.2.2 Canons et cathodes pour les TOP : état de l'art

Comme le montre la figure 1.6b, le progrès des cathodes thermoïoniques a été conditionné par les combinaisons de matériaux employés pour les fabriquer. Les critères de sélection de ces alliages sont principalement déterminés par une température de fusion élevée, un faible travail de sortie (abaissement de la température à courant constant d'après 1.1) et une bonne résistance au bombardement ionique.

Les types de cathodes :

- **Les cathodes à oxydes** : elle sont constituées d'oxydes de métaux alcalinoterreux (Baryum, Calcium, Strontium, ...) sur une embase de Nickel. Ces cathodes délivrent des densités de courant continues jusqu'à 1A/cm^2 à 850°C pour une durée de vie de 10000h (la durée de vie correspond à un affaiblissement du courant cathode de 10%). L'avantage de ces cathodes est leur température d'émission relativement basse mais elles souffrent d'une forte sensibilité au bombardement ionique.
- **Les cathodes imprégnées de type B et S** : elles sont fabriquées à partir d'une cathode de tungtène poreux et d'un mélange d'oxydes alcalinoterreux remplissant les pores et recouvrant la surface (BaO, CaO et Al_2O_3 avec composition $[5, 3, 2]$ pour le type B et $[4, 1, 1]$ pour le type S). Cette technique permet d'abaisser de travail de sortie de la cathode tungstène de 4.5eV à 2.1eV et par conséquent d'abaisser la température de fonctionnement de la cathode. Ces cathodes peuvent aussi accéder à des densités de courant plus élevées et possèdent une sensibilité plus faible au bombardement ionique.
- **Les cathodes imprégnées de type M ("Magic")** : ce sont les cathodes les plus utilisées dans l'industrie des tubes hyperfréquences. Ces cathodes ont été inventées par Zalm et Van Stratum en 1960 [5]. Au cours de leur fabrication, elles sont d'abord de type B ou S puis recouvertes d'une couche d'Osmium ou de Ruthénium pour abaisser davantage leur travail de sortie (de 2.1eV à 1.9eV). Une vue schématique en coupe d'une telle cathode est donnée sur la figure 1.8. Typiquement, la durée de vie d'une cathode M émettant 1-2A/cm^2 est de 15 ans et se ramène à quelques années pour une émission à 10A/cm^2.
- **Les cathodes MM ("Mixed Metal")** : Elles ont également été développées sur le même modèle mais avec une matrice poreuse de tungstène iridiée. Comme le montre la figure 1.7a, ce sont les cathodes les plus performantes en comparaison des cathodes B, S et M.



(a) (b)

FIGURE 1.7 – (a) Comparaison des cathodes de type B,S, M et MM en terme de densité de courant et durée de vie , (b) décroissance du courant émis par une cathode de type M en fonction du temps et de la température [4]

La figure 1.6b montre également que les cathodes thermoïoniques peuvent atteindre des densités de courant très élevées. Le record mondial est détenu par Philips depuis 1997 avec 400A/cm^2 à 965°C pour une cathode au Scandate [3]. Mais le principal problème de ces cathodes reste leur dégradation au cours du temps qui impose un compromis entre le temps de vie, la densité de courant mais aussi la température de fonctionnement. Ce dernier point est illustré par la figure 1.7b pour les cathodes de type M.

Le canon électronique : Pour des courants de l'ordre de 1 à 2 A/cm^2, l'émission d'une cathode de type M se trouve en régime de charge d'espace. Les densités électroniques localement plus fortes à proximité de la surface ont alors tendance à écranter le champ appliqué à la cathode et réduire localement la source de leur émission. Ce mécanisme équilibre la densité de courant émise et rend l'émission plus homogène à la surface de la cathode. Néanmoins, sous l'effet de la charge d'espace, le faisceau a naturellement tendance à diverger. Pour compenser cela, J.R. Pierce [6] eu l'idée d'adapter un venelt faisant un angle de 67.5° à proximité de la cathode (voir électrode de Pierce sur la figure 1.8). Grâce à cette électrode, un champ légèrement convergent est produit au voisinage de la cathode et aide à la collimation du faisceau. Un autre avantage de cette cathode réside dans les faibles vitesses transverses à l'émission qui sont typiquement inférieures à 1eV.

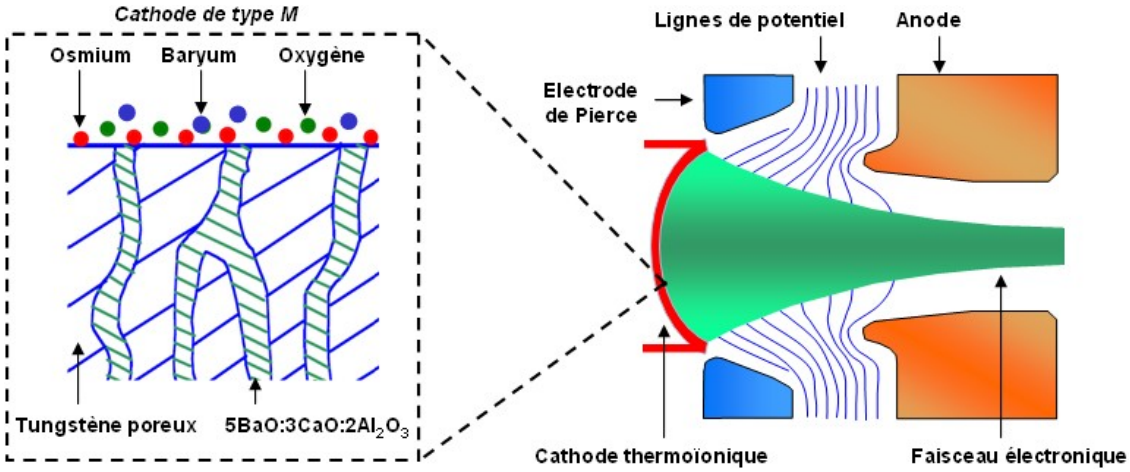


FIGURE 1.8 – Canon électronique intégrant une cathode thermoïonique

La grande homogénéité du faisceau et les faibles vitesses transverses ont permis de concevoir des canons électroniques possédant de grandes convergences. Pour cela, J.R. Pierce a proposé que la cathode et l'anode soient hémisphériques afin de rendre le potentiel électrique inter-électrode convergent.

La figure 1.8 montre un exemple de canon basé sur les principes de Pierce. Dans ces conditions, le faisceau peut être focalisé avec des taux de convergences de 50 à 75 [1]. Cela signifie que les densités de courant dans les TOP à cathode thermoïonique peuvent atteindre des densités de courant variant de 50 à 150A/cm^2. Une fois passé le canon électronique, le faisceau entre dans la ligne à retard et se retrouve collimaté sous l'action d'un champ magnétique axial. Cela conduit notamment à la rotation du faisceau autour de l'axe du tube le long de la ligne.

1. Le taux de convergence est défini comme le rapport des surfaces entre deux coupes transverses du faisceau électronique

1.2.3 Les cathodes froides

1.2.3.1 L'émission de champ

Un autre phénomène, appelé émission de champ, peut également permettre d'obtenir une émission électronique à travers une jonction métal-vide. Il s'agit d'un mécanisme purement quantique puisqu'il correspond au passage des électrons dans le vide par effet tunnel, sous l'action d'un champ électrique très intense[1]. La figure 1.9 décrit la géométrie particulière du potentiel au voisinage de cette jonction. On remarque que la décroissance du potentiel électrostatique en $-eFx$, avec F le champ électrique, permet la formation d'une barrière étroite à proximité de la surface. Lorsque celle-ci est suffisamment fine, la nature quantique des électrons autorise leur passage par effet tunnel dans le vide et donc l'établissement d'un courant tunnel.

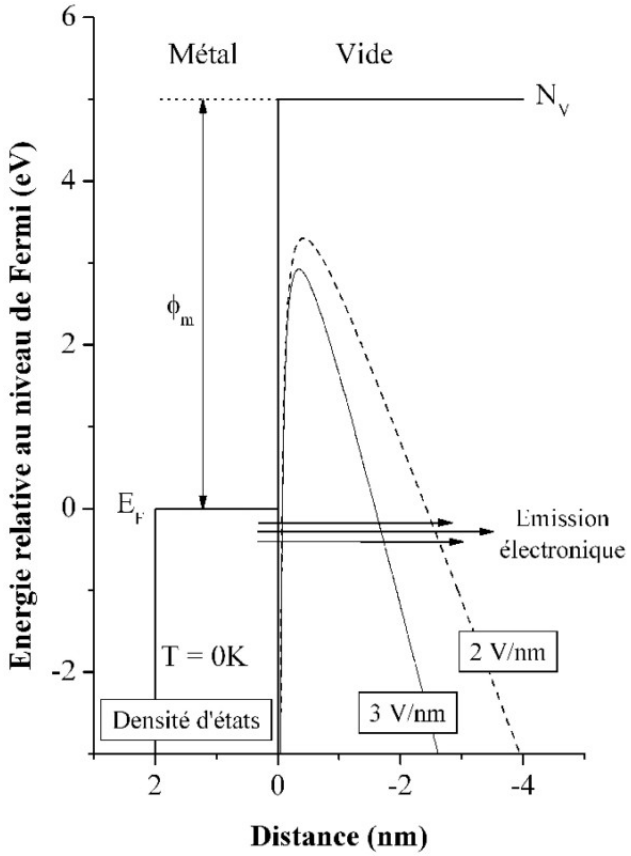


FIGURE 1.9 – Diagramme de la jonction métal/vide en régime d'émission de champ

En 1928, les travaux théoriques de Fowler et Nordheim sur ce type de jonction [7] ont permis de donner une forme analytique approchée de ce courant. Pour résoudre ce problème, il est nécessaire de calculer les solutions de l'équation de Schrodinger à une dimension d'espace au voisinage d'une interface metal-vide. Si la barrière de potentiel du problème était strictement triangulaire, la résolution serait purement analytique (fonctions d'Airy). Mais lorsqu'un électron se trouve à une distance $+x$ de la surface d'un métal, une charge positive est induite à la surface du métal. Elle correspond à une charge virtuelle positive située en $-x$ que l'on nomme charge image. Comme nous le voyons sur la figure 1.9 l'attraction

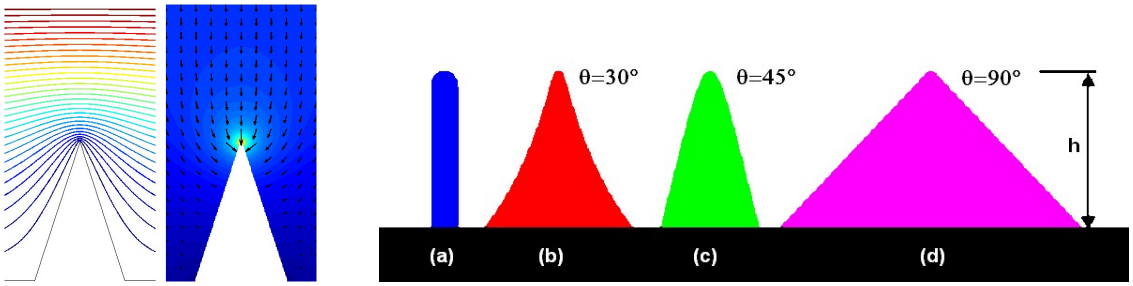
1. Cette émission ne nécessite pas d'apport de chaleur et sera ainsi nommé émission "froide" en comparaison à l'émission thermoïonique. Elle sera aussi désigné par émission "de champ" pour rappeller qu'elle est engendrée par l'application d'un champ électrique

électrostatique entre ces deux particules tend alors à réduire la barrière de potentiel. La barrière n'est donc plus triangulaire et le problème doit être résolu par l'approximation Wentzel-Kramers-Brillouin. Pour un électron se propageant selon Ox et d'énergie E, cette approximation permet d'expliciter la probabilité $P(E)$ qu'il traverse cette barrière par effet tunnel. Pour calculer la densité du courant d'émission, on intègre la loi d'Ohm : $j = nev$ sur l'ensemble des énergies des électrons de la bande de conduction et on obtient la formule suivante :

$$J(F) = A_{FN} F^2 exp(-\frac{B_{FN}}{F}) \tag{1.2}$$

Avec A_{FN} et B_{FN} des paramètres qui seront explicitées dans le chapitre 3 et F le champ électrique appliqué sur la surface. D'après cette équation, nous voyons que le courant traversant la jonction croit exponentiellement avec le champ électrique appliqué. Typiquement, pour des métaux ($\phi_m \approx 4.5eV$), l'émission de champ se produit lorsque la barrière possède une épaisseur de quelques nanomètres sous un champ électrique de quelques V/nm.

1.2.3.2 L'effet de pointe



(a) (b)

FIGURE 1.10 – Écrantage du champ électrique par une pointe : (a) équipotentielles (gauche) et amplitude (droite) du champ électrique, (b) Classification des émetteurs d'Utsumi.

Les valeurs du champ électrique nécessaires à l'émission de champ sont difficilement envisageables sans le recours à l'effet de pointe. Cet effet fût d'ailleurs utilisé dès l'origine des activités expérimentales en émission de champ [8]. En utilisant une pointe ayant un fort rapport d'aspect, il est en effet possible de produire une amplification du champ macroscopique au voisinage son apex. La figure 1.10a illustre cet effet en montrant la distribution du potentiel et du champ électrique au voisinage d'une pointe conique. Le tassement des équipotentielles au sommet engendre un gradient de potentiel localement plus intense et donc un champ électrique accru. Selon la géométrie employée, il est typiquement possible d'obtenir des facteur d'amplification de quelques centaines à quelques milliers. Les pointes sont ainsi devenues d'une utilité courante en émission de champ de sorte qu'elles sont souvent identifiées comme des "*émetteurs de champ*".

Une étude détaillée du facteur d'amplification dans le cas des nanotubes de carbone sera donné dans le chapitre 3. Mais afin d'aborder une revue de la technologie des cathodes froides, nous donnons sur la figure 1.10b une classification de l'importance de l'amplification du champ macroscopique en fonction de la géométrie de la pointe. Cette étude, effectuée par Utsumi en 1991, classe plus particulièrement les émetteurs en fonction de leur angle

d'ouverture θ du sommet. Ainsi, la configuration d'amplification va de la plus favorable à la moins favorable en partant de la gauche. En regard de ce classement, nous allons maintenant passer en revue les différents types d'émetteurs utilisés pour former les cathodes à émission de champ.

1.2.3.3 Les cathodes Spindt

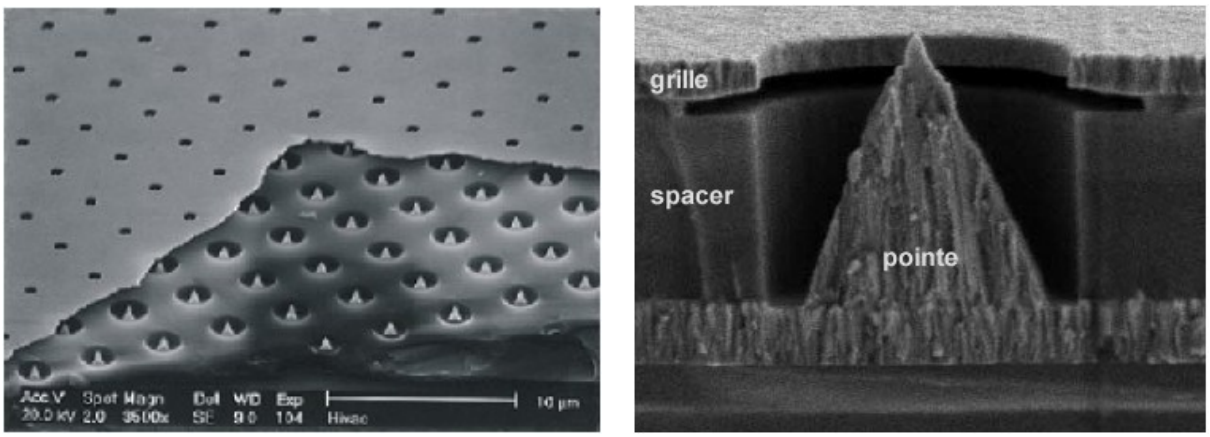


FIGURE 1.11 – Dispositif de pointe en Molybdène et grille intégrée de C.A. Spindt.

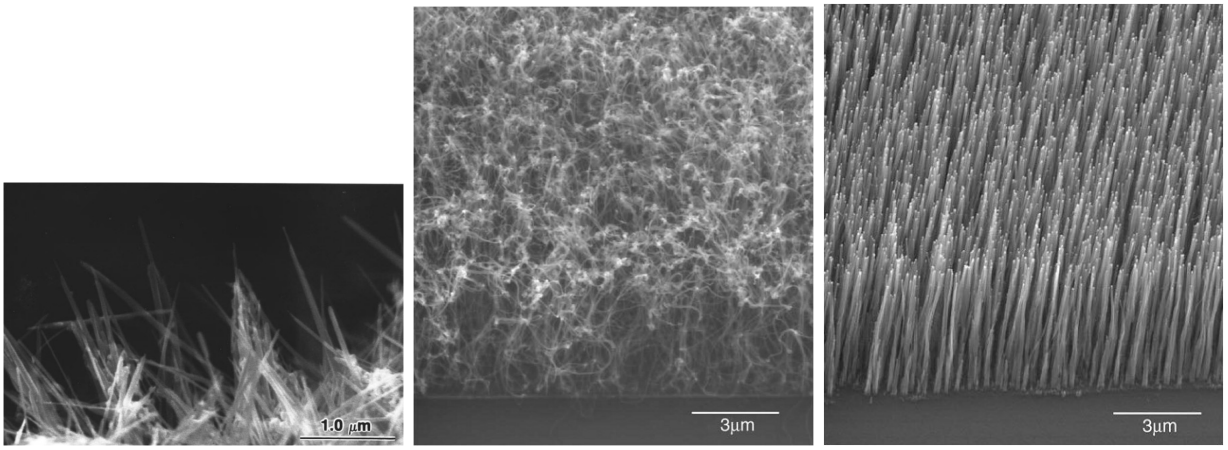
Avec l'avènement des micro-technologies, la fabrication de réseaux de pointes microscopiques est devenue possible. Dès les années 1960, elle offrit la perspective d'accroître fortement les densités de courant émises tout en réduisant la taille des cathodes et des systèmes qui les intégraient. L'aboutissement le plus marquant de cette période fût le travail de C.A. Spindt au Stanford Research Institute en 1968 [9] montrant qu'un réseau de pointes pouvait être réalisé avec une grille d'extraction directement intégrée sur le substrat de la cathode (voir figures 1.11). Ce procédé de fabrication permet le dépôt de pointes à l'intérieur de micro-cavités de manière auto-alignée avec l'ouverture de la grille. Les premières cathodes consistaient en une structure multicouches avec une grille en molybdène sur 1µm d'isolant en silice sur un substrat de silicium, les pointes étant également en molybdène. La technique de fabrication utilisée, issue des technologies de dépôt de couches minces, permettait de fabriquer des réseaux de plusieurs milliers de pointes avec des densités de plusieurs millions par centimètre carré. Cela permit d'atteindre les champs nécessaires à l'émission de champ au sommet de chaque pointe tout en conservant des tensions d'extraction électronique très faibles (<100V).

Depuis le début des années 1990, la constante amélioration de leur fabrication a permis d'atteindre les performances suivantes :

- une densité de courant record de 2000A/cm^2 pour un courant d'émission de 8mA obtenu sur un réseau de pointes [10]
- un courant maximum par pointe de 100 µA en régime continu et pouvant atteindre 1mA en régime pulsé [11]
- 8 années de fonctionnement continu avec un courant par pointe de 20µA [12]
- la densité d'émetteurs typique se situe à 10^8 pointes/cm^2 et un record a été établi à une densité de 10^9 pointes/cm^2 [13]

Si les performances de ces cathodes paraissent excellentes, elles souffrent aussi de quelques inconvénients. Les pointes sont notamment sensibles à un effet d'emballement thermique provenant de l'élévation de température par effet joule. Comme la surface de ces pointes comporte un certain nombre de liaisons pendantes, un mécanisme de diffusion de surface assisté par le champ électrique se met en place durant l'émission de champ et affine progressivement le profil de l'émetteur [14, 15]. La pointe voit ainsi le champ électrique d'apex augmenter et donc l'électromigration s'accélérer. Tant que la pointe n'est pas trop fine, l'ajustement de la tension est possible et permet de limiter le phénomène. Des techniques d'affinage de pointes s'appuient d'ailleurs sur ce principe. Mais lorsque l'affinement est trop important, le phénomène n'est plus contrôlable et on assiste à un emballement qui se termine par la destruction de l'émetteur. Un dernier problème pour l'application de ces émetteurs concerne leur procédé de fabrication qui est peu compatible avec de grands substrats. Nous verrons que cela a empêché leur commercialisation dans le domaine des écrans plats grand public.

1.2.3.4 Les cathodes à nanotubes de carbone



(a) Résultat d'une croissance de nanotubes par arc [16]

(b) Résultat d'une croissance de nanotubes par CVD [17]

(c) Résultat d'une croissance de nanotubes par PECVD [18]

FIGURE 1.12 – Les différentes méthodes de croissance des nanotubes de carbone

Les propriétés d'émission de champ : Comme l'émission de champ est un mécanisme imposant de fortes contraintes thermiques à la pointe, les premiers matériaux employés pour la fabrication des pointes furent des métaux à haute température de fusion comme le Molybdène ou le Tungstène. Mais dès 1972, Baker [19] rapporta que les courants d'émission de champ provenant de pointes de graphite présentaient également une grande stabilité. Les scientifiques s'intéressèrent donc aux structures carbonées (fibres, films et pointes en diamant) puis aux nanotubes de carbones à partir de 1991, date de leur découverte par Iijima [20]. A la suite des premières expériences d'émission de champ [21, 22], les propriétés électroniques de ces nanostructures carbonées se révélèrent très intéressantes :

- Ces nanostructures sont composées de feuillets de graphène enroulés autour de l'axe du tube. Cela leur confère d'excellentes propriétés de conduction électronique y compris à température ambiante.

- Les nanotubes ont de très grands rapports d'aspect. D'après la classification d'Utsumi de la figure 1.10, leur géométrie est de catégorie (a), ce qui représente la forme optimale pour l'amplification du champ. La figure 1.12b illustre cette géométrie particulière avec différents types de croissances.
- Les nanotubes sont des émetteurs de champ très stables jusqu'à de hautes températures. S. Purcell a démontré qu'un nanotube de carbone multifeuillets pouvait supporter des températures de 2000K [23] durant l'émission. Cette remarquable stabilité est liée à l'absence d'emballement thermique (voir 1.2.3.3) grâce aux caractéristiques physico-chimiques des nanotubes. En effet, la résistance des pointes métalliques augmente avec la température tandis qu'elle diminue avec la température pour les nanotubes multifeuillets. Ceci limite donc l'électromigration à fort courant et cela d'autant plus que la surface des nanotubes est très stable chimiquement en raison de l'hybridation sp2 du carbone (absence de liaisons pendantes).
- En conséquence de ces propriétés exceptionnelles, des nanotubes multi-parois ont atteint des courants de l'ordre de 100 à 200µA [24, 25].

La fabrication des cathodes à nanotubes : Pour la fabrication d'une cathode à nanotubes, il existe principalement deux voies.

La première approche consiste à réaliser une croissance en choisissant parmi les mécanismes connus (décharge électrique, vaporisation laser, décomposition haute-pression du CO, dépôt chimique en phase vapeur (en anglais *Chemical Vapor Deposition = CVD*)). Ensuite les nanotubes sont déposés sur le substrat de la cathode qui est généralement à température ambiante. Parmi les différentes équipes ayant travaillé sur cette approche, nous pouvons remarquer les résultats de Calderon-Colon et al [26] avec des densités de courant supérieures à 1.5A/cm^2 en mode pulsé (pulses de 10ms à 1Hz).

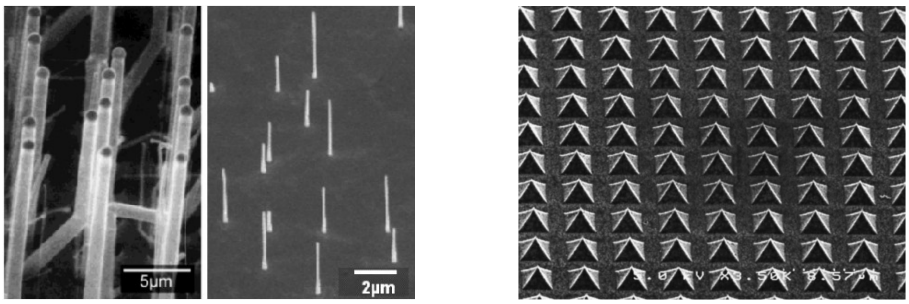
Dans la seconde approche, le substrat de la cathode est chargé dans un bâti CVD et la croissance est directement effectuée sur le substrat. Dans ce cas, de hautes températures (500°C à 700°C) sont requises. Les équipes travaillant sur cette approche ont plus particulièrement étudié la croissance verticale de nanotubes multi-parois. Deux méthodes différentes ont ainsi été étudiées :

1. Les nanotubes crûs par la méthode de dépôt chimique en phase vapeur assistée par plasma (en anglais *Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition = PECVD*). Les nanotubes sont alors directement exposés au plasma. Bien que Bower et al. [27] aient montré l'effet du champ électrique sur l'alignement des nanotubes par un plasma hyperfréquence, le mécanisme n'est toujours pas très bien compris [28]. Cette méthode permet d'obtenir des réseaux idéaux qui minimisent l'effet d'écrantage électrostatique entre premiers voisins [29]. Cependant, les nanotubes sont soumis au bombardement ionique du plasma durant la croissance. Ceci engendre des défauts cristallins qui affaiblissent la conductivité du nanotube.
2. La croissance des nanotubes est effectuée dans un réacteur CVD ou PECVD dans lequel les nanotubes ne sont pas exposés au plasma. Pour obtenir une orientation verticale de la croissance, les catalyseurs de croissances sont arrangés en microréseaux denses. Dans ce cas, l'alignement vertical des nanotubes est obtenu par un effet d'orientation collectif dû à la force de Van Der Walls. Cette méthode mène à une croissance de meilleure qualité cristalline mais avec un effet d'écrantage électrostatique important.

Parmi les réalisations de ce type de cathode, nous pouvons remarquer l'expérience de Chen et al [30] dans laquelle de forte densité de courant ont été obtenues. Avec des pulses de 10µs à 1kHz, leur densité de courant pic atteignit 3.5A/cm^2. Utilisant une cathode avec grille intégrée, Hsu et Shaw [31] du Naval Research Laboratory ont également obtenu une densité de courant de 3.5A/cm^2.

En partenariat avec l'Université de Cambridge, notre laboratoire a réussi à obtenir la croissance de réseaux de nanotubes individuels émettant de 80µA-120µA [25] ainsi que des réseaux de nanotubes émettant un courant de 1A/cm^2 [32] en mode continu. Il est d'ailleurs important de remarquer que l'utilisation de faibles pulses de tension et de faibles taux de répétition permet de limiter l'accumulation de chaleur par effet Joule au niveau des émetteurs. Il est ainsi possible d'atteindre de plus grandes densités de courant qu'en mode continu. Pour illustrer cela, notre laboratoire a obtenu sur le même type de cathode, des densités de courant pic de 12A/cm^2 en mode pulsé.

1.2.3.5 Les autres types de cathodes froides



(a) Nanofils de silicium [33] (gauche) et de colbalt (droite)

(b) Pointes diamants [34]

FIGURE 1.13 – Les autres types de cathodes

Cathodes à nanofils métalliques ou silicium : Les cathodes à base de nanofils métalliques [35] et silicium ont été étudiées en émission de champ. Nous présentons une illustration de ces structures sur la figure 1.13a. Nous voyons que ces pointes possèdent, comme les nanotubes, la géométrie idéale de la classification d'Utsumi. De la même manière que les nanotubes, ces émetteurs permettent donc de maximiser le phénomène d'effet de pointe. Néanmoins, leur caractère métallique ou semiconducteur les exposent au phénomène d'emballement thermique que connaissent les pointes Spindt.

Cathodes à matériau présentant une faible affinité électronique : Comme nous l'avons précédemment mentionné, les nanotubes n'ont pas été les premières structures carbonées à être étudiées pour l'émission électronique. Les fibres de carbones, les films et pointes de diamant furent également observés en émission sous champ. Au début des années 1990, il était possible de séparer en 2 catégories les matériaux carbonés selon le mécanisme d'émission électronique :

- les structures graphitiques (carbone sp2), comme les nanotubes, émettant par émission de champ à partir d'une structure conductrice
- les structures type diamant (carbone sp3) qui présentent une affinité électronique négative (exemple de pointes diamants sur la figure 1.13b)

Le diamant est une des principales formes allotropiques du carbone. Elle se forme à haute pression et cristallise dans un système cubique à face centrée. Le concept de départ qui a mené à utiliser les matériaux à grand gap comme le diamant était que son affinité électronique était négative ou faible. L'affinité électronique est un concept équivalent au travail de sortie mais dans le cas des semiconducteurs. Il définit alors la différence d'énergie entre le bas de la bande de conduction et le niveau du vide. L'idée était alors d'utiliser ces matériaux afin de réduire les champs électriques appliqués aux cathodes métalliques en déposant un film de diamant à leur surface. Les électrons auraient alors été émis dans la bande de conduction du diamant avant de voir la barrière tunnel réduite du fait de la faible affinité électronique. Mais si plusieurs équipes ont effectivement observé une émission électronique de ces structures, il est probable que cela ne provienne pas par de leur faible affinité électronique.

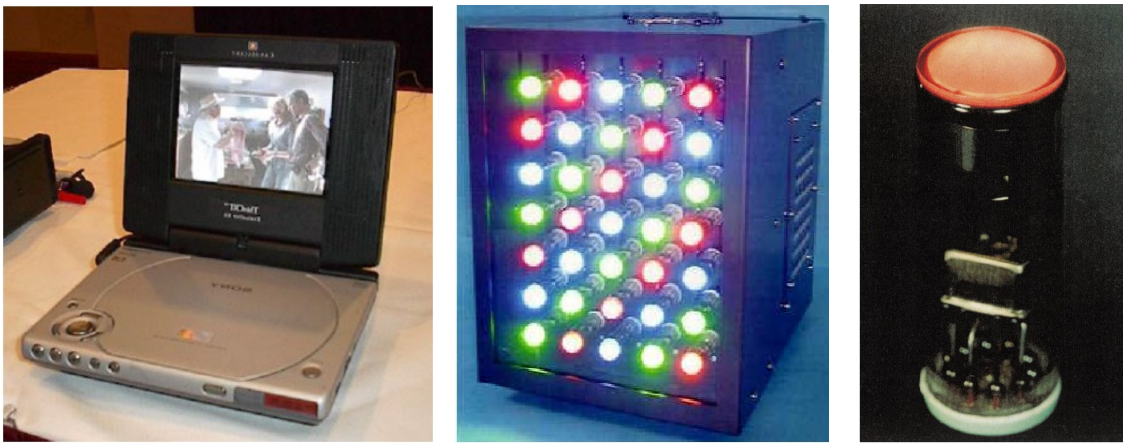
Plusieurs résultats expérimentaux ont étayé cette certitude. Tout d'abord, des expériences de photoémission ont été réalisées sur des films de diamants déposés par CVD et de carbone amorphe hybridé sp3. Durant l'émission de champ, il fût démontré que les électrons émis provenaient d'énergies de 5 à 6eV sous le niveau du vide et que les champs d'émission étaient de 2 à 3V/nm [36]. Ces valeurs sont caractéristiques de l'émission de champ. Des observations par sondage local ont montré que les sites d'émission pouvaient venir d'inclusions graphitiques dans les joints de grain du diamant [37], de micro-cratères produit par claquage du film de diamant [38] ou plus simplement de micro-particules graphitiques de surface [39].

Ces études portant sur les matériaux à faible affinité électronique démontrèrent en réalité, l'intérêt des micro/nano structures carbonées pour l'émission électronique.

1.2.3.6 Les applications des cathodes froides

Avec leur propriétés atypiques, les cathodes froides devinrent très attractives et particulièrement étudiées pour des applications dans les écrans plats à émission de champ ainsi que dans des tubes électroniques.

Les écrans plats : Dans les écrans à émission de champ (en anglais *Field Emission Display = FED*), comme dans les tubes cathodiques conventionnels, un faisceau électronique excite des poudres phosphorescentes qui produisent ensuite de la lumière. La seule différence pour les FED, est que chaque pixel possède sa propre source électronique composée de plusieurs émetteurs de champ. Les densités de courant requises pour produire l'excitation des poudres sont de quelques mA/cm^2. Si les premiers prototypes n'ont vu le jour qu'à la fin des années 1990s, le développement de cette technologie avait été envisagée dès le début du développement des cathodes Spindt. Nous voyons sur la figure 1.14a une réalisation très aboutie



(a) (b) (c)

FIGURE 1.14 – Dispositifs lumineux à émission de champ avec (a) Lecteur DVD intégrant un FED à pointes Spindt, (b) Panneau lumineux à nanotubes, (c) Lampe à nanotubes [40].

avec le premier lecteur DVD portable intégrant un FED. Ces écrans n'ont pour autant pas convaincu les investisseurs puisque les coûts de fabrication restent trop élevés en comparaison des écrans à cristaux liquides ou des écrans plasmas. Cette absence de commercialisation a entrainé l'arrêt de l'activité pour beaucoup d'acteurs du domaine (Pixtech, Candescent, Field Emission Technologies, Motorola).

Néanmoins, les développements des FED se poursuivent car ils possèdent certains avantages pour se démarquer. Ils présentent notamment, comme les tubes cathodiques, un bon contraste et des temps de réponse très rapides. Les FED sont aussi beaucoup moins sensibles à leur environnement (pression, chaleur, contraintes mécaniques) et consomment moins d'énergie que leurs concurrents.

Profitant de ces caractéristiques, les sociétés Futaba (pointes Spindt) et Noritake (nanotubes de carbone) développent ces écrans pour des applications en milieux difficiles (aviation, automobile, industrie). La technologie à base de nanotubes, étant adaptée à de larges surfaces, permet d'équiper les panneaux d'affichages à faible consommation. Mais l'aventure n'est peut être pas terminée pour les écrans plats conventionnels car Canon s'intéresse toujours à une variante de cette technologie : le SED (Surface-conduction Electron-emitter Display).

Les tubes électroniques : Les motivations initiales dans ce domaine furent le remplacement des cathodes thermoïoniques en bande X (8GHz-12GHz) des TOP de façon à réduire les dimensions des tubes. Le principe de fonctionnement des cathodes froides permet également de pouvoir fonctionner à température ambiante et ainsi d'éliminer la puissance de chauffage que consomme la cathode thermoionique. Ces cathodes permettent aussi le démarrage instantané du tube ainsi que la prémodulation du faisceau électronique. Nous développerons plus loin les avantages de la prémodulation à hautes fréquences que les cathodes froides sont les seules à pouvoir effectuer. Nous regroupons dans le tableau 1.2 quelques exemples d'intégration de cathodes Spindt dans les tubes électroniques et les performances associées à ces

(a) (b) (c)

FIGURE 1.15 – Les différents types de tubes électroniques à cathodes froides avec : (a) le tube 5GHz et 100W de L3 communications avec une cathode Spindt [41], (b) le tube RX de Oxford Instruments avec une cathode à nanotubes, (c) le dispositif commercial de scan RX intégrant le tube Oxford Instruments.

démonstrateurs.

Années	Organisme	Type	Fréquence	Mode	Courant	Puissance
fin 1990	NEC	TOP	10.5GHz	3% duty cycle	58mA	27.5W
1998	US Naval Lab	Klystrode	10GHz	cathode modulée	4mA	4mW
1999-2002	Northrop-Grumman	TOP	4.5GHz	single pulse	91mA	55W
2002	Northrop-Grumman	Twystrode	6.75GHz	cathode modulée	5mA	280mW
2007	L3 communications	TOP	4.1GHz	1% duty cycle	30mA	18W
2008	L3 communications	TOP	5GHz	single pulse	120mA	100W

TABLE 1.2 – Tableau des performances des tubes à cathodes froides

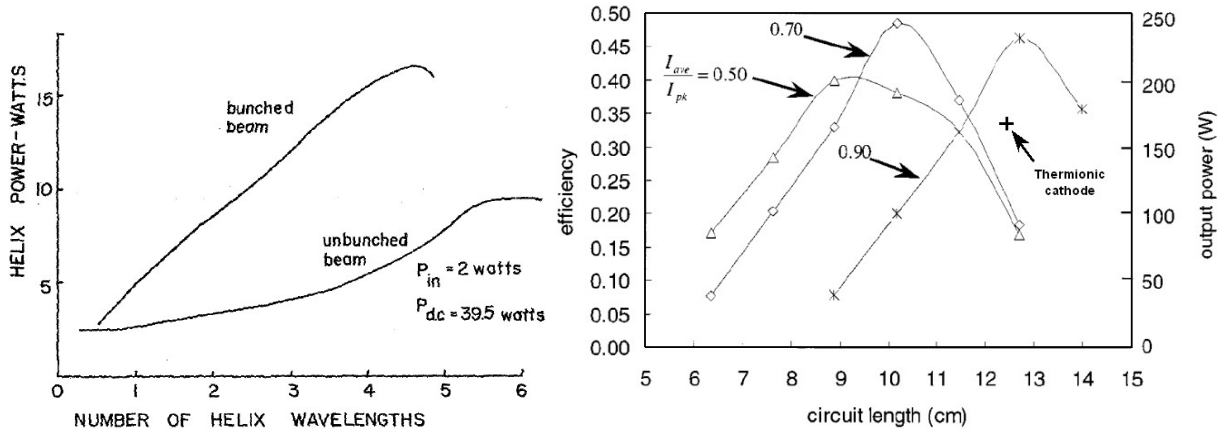
Pour les cathodes froides à nanotubes, aucune intégration commerciale en tube n'a été conduite à ce jour pour l'amplification hyperfréquence. Néanmoins, elles ont connu une percée plus rapide dans les dispositifs à rayons X où elles ont atteint le stade de la commercialisation comme le montre la figure 1.15c.

1.2.4 La prémodulation du faisceau électronique

1.2.4.1 Introduction

Le principe d'un tube à ondes progressive est basé sur le transfert d'énergie entre un faisceau électronique et une onde électromagnétique au sein de la ligne à retard. Au cours de cette l'interaction, nous avons vu précédemment que le faisceau subissait une modulation de vitesse provoquant un regroupement, une mise en paquet, des électrons. L'idée de la prémodulation est de produire une partie de cette modulation électronique avant l'entrée du faisceau électronique dans la ligne à retard afin de rendre le tube plus efficace et/ou plus court.

Dans cette partie, nous allons présenter les différentes techniques disponibles pour effectuer cette prémodulation. En particulier, nous mettrons leurs limites fréquentielles en évidence afin d'aboutir à la présentation de notre solution pour atteindre le régime THz.



(a) (b)

FIGURE 1.16 – Illustration du gain apporté par la prémodulation du faisceau électronique dans un TOP avec (a) étude de Lichtenberg [42] en 1962, (b) étude de Whaley et al. en 2000 [43] en fonction de la profondeur de modulation (I_{av} et I_{pk} respectivement les intensités moyennes et pics du courant modulé).

1.2.4.2 La prémodulation par grille externe

L'intérêt de la prémodulation pour l'amplification haute-fréquence s'est imposé dès les années 1940 dans les tubes électroniques. La première démonstration [44] consista à injecter un faisceau prémodulé dans une cavité Klystron. Un signal RF fût injecté sur la grille placée devant la cathode thermoïonique, ce qui permit de prémoduler le faisceau en densité et en vitesse. Dans ce montage, le faisceau subit ensuite une post accélération entre la grille et l'anode du tube (largement supérieure à la tension de grille), puis est transmis dans le trou de l'anode et injecté dans le bec de la cavité de sortie. La prémodulation permit ainsi de retrouver les conditions de fonctionnement bien connues sur les tubes à grille (classe A, B, AB, ...), permettant d'ajuster la valeur crête du courant à la puissance visée, conduisant à un rendement beaucoup moins dépendant de la puissance. Ce système permit également de parvenir à une meilleure accordabilité sur de larges bandes spectrales.

La perspective d'augmenter les performances des tubes avec ce principe motiva les recherches. Il fût appliqué au TOP une dizaine d'années après l'invention de ce tube. La prémodulation fût d'abord envisagée à l'aide de la théorie de Pierce [45]. Ensuite Lichtenberg montra expérimentalement qu'une augmentation de 75% de la puissance de sortie était possible avec l'emploi d'un faisceau prémodulé (voir figure 1.16a).

Le principe de modulation d'une cathode thermoïonique par grille externe possède cependant une limite fréquentielle associée à l'espace cathode-grille. En effet, le temps de transit inter-électrodes des électrons limite les fréquences de modulation accessibles. Une solution consiste à rapprocher la grille pour réduire le temps de transit mais la chaleur dégagée par la cathode (≈1000°C) limite la distance à 100µm et les modulations à quelques GHz [46].

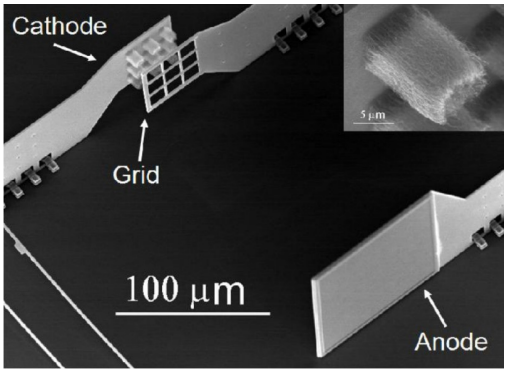


FIGURE 1.17 – Montage avec grille externe [47].

En utilisant une cathode froide, il est en principe possible d'éliminer cette difficulté. A l'aide d'une technologie de type MEMS, Bower et al ont réussi à incorporer la cathode, la grille et l'anode sur une même puce pour créer un tube électronique miniature [47]. Dans ce cas, la limite vient de la fréquence de coupure associée aux courants capacitifs du système. La formule de la fréquence de coupure d'un tel dispositif est donc déterminée par $f_c = g_m/(2\pi C_{cg})$. Avec g_m la transconductance ($g_m = \Delta I_{anode}/\Delta V_{cathode-grille}$) et C_{cg} la capacité cathode-grille. La transconductance, de 1.3 µS dans leur cas, est assez faible et limite leur dispositif a une fréquence de coupure estimée à 234MHz.

1.2.4.3 La prémodulation par grille intégrée

Comme nous avons précédemment pu le voir, les cathodes Spindt ont résolu le problème de l'éloignement de la grille en intégrant celle-ci directement sur le substrat. Dans ce cas, l'espace cathode-grille est de l'ordre de 1µm et élimine la limitation associée au temps de transit électronique.

Différents types d'amplificateurs hyperfréquences ont donc été envisagés et conçus avec des cathodes Spindt modulées. Jensen [48] montra qu'un TOP intégrant une cathode Spindt modulé à 10GHz pourrait utiliser une hélice courte avec un gain élevé (15dB). Ce concept de tube combinant un TOP et une cathode prémodulée fût alors nommé Twystrode. Cependant, la capacité cathode-grille reste importante pour ces cathodes et pose un problème à hautes fréquences. La vitesse de propagation du signal n'est alors pas suffisante pour que le champ électrique de l'onde soit homogène sur toute la surface de la cathode [49]. Ce phénomène empêche ainsi d'adresser simultanément tous les émetteurs de la cathode. Ceci entraîna la conception de cathodes annulaires qui furent intégrées dans des Klystrodes à 10GHz pour une puissance de sortie de 4mW.

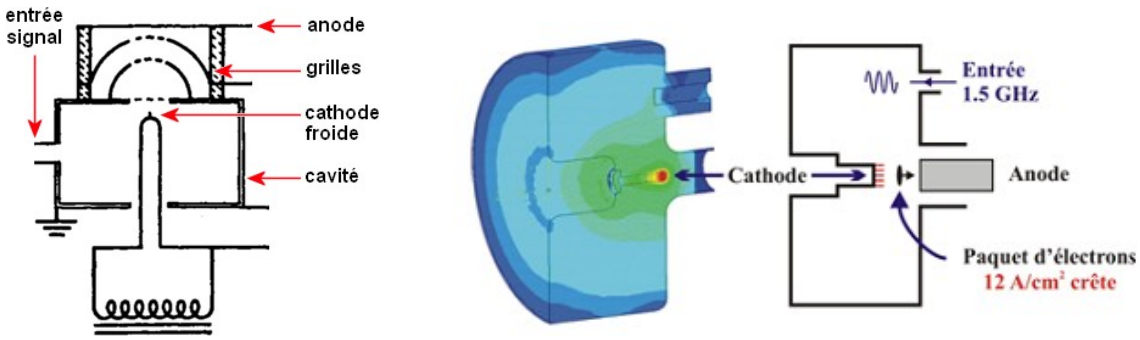
En 2002, Whaley et al. [43] ont étudié la modulation des cathodes Spindt pour réduire la taille des TOPs dans la gamme hyperfréquence. La figure 1.16b montre le calcul des puissances de sortie de leur système pour différentes profondeurs de modulation. Le tube avec la prémodulation semble pouvoir atteindre des puissances de sorties plus importantes que dans la configuration continue avec cathode thermoïonique. Il est aussi intéressant de voir que les profondeurs de modulation les plus fortes ($I_{av}/I_{pk} = 0.5$) peuvent être moins profitables que des profondeurs plus modestes ($I_{av}/I_{pk} = 0.9$). Avec cette configuration, ils démontrèrent une puissance de sortie de 280mW à 6.75GHz.

Les nanotubes de carbone ont également été utilisés dans des montages à grille intégrée. Dans le cas où un seul émetteur est disposé par ouverture de grille, le courant obtenu est faible. En effet, comme les nanotubes sont flexibles et que l'alignement avec la grille est rarement parfait, les nanotubes sont soumis à un champ latéral et tendent à toucher la grille. Pour délivrer de fortes densités de courant, une autre solution a été utilisée par Hsu et al. [31] en intégrant la grille sur un réseau de microcathodes. La densité de courant atteignit 3.5A/cm^2. Mais comme la capacité cathode/grille est de l'ordre du nF/cm^2 et la transconductance proche de 0.5S.cm^2, la fréquence de coupure de ce système n'excède pas 100MHz.

Nous voyons donc que les limites fréquentielles du système à grille intégré se situent entre 100MHz et 10GHz. Ils ne pourront satisfaire à la réalisation d'un tube électronique émettant dans la gamme THz. Ces systèmes sont néanmoins intéressant dans la gamme hyperfréquence où ils peuvent notamment satisfaire les besoins des communications par satellites jusqu'en bande X (8-12GHz).

1.2.4.4 La prémodulation par cavité résonante

Dans ce cas, l'idée est de disposer la cathode dans une cavité et de moduler le champ appliqué à sa surface à l'aide d'un mode résonant. Cette technique est historiquement la première qui fût employée pour moduler une cathode à émission de champ jusqu'au GHz avec l'expérience de Charbonnier et al [50] en 1963. Ils modulèrent le courant émis par une pointe en tungstène jusqu'en bande X à l'aide du montage reporté sur la figure 1.18a. Des expériences similaires furent entreprises beaucoup plus récemment sur des cathodes à nanotubes de carbone. Avec cette méthode, notre laboratoire associé à l'Université de Cambridge est parvenu à moduler une cathode à nanotubes jusqu'à 1.5GHz et 32GHz.



(a) Montage cavité en 1963 [50]

(b) Montage cavité en 2005 [51]

FIGURE 1.18 – La modulation des cathodes froides par cavité résonante.

La modulation à 1.5GHz a été effectuée en configuration diode par Teo et al. [51]. Le mode résonant ainsi que la cavité de cette expérience sont représentés sur la figure 1.18b. Dans cette configuration, un courant pic de 12A/cm^2 et un courant moyen de 1.2A/cm^2 ont été démontrés. Ces valeurs ont été améliorées par la suite 15A/cm^2 et 1.5A/cm^2 [52] (taux de modulation de 100%). En utilisant une cathode à nanotubes similaire Hudanski et al. [53] ont démontré une modulation à 32GHz d'un faisceau. Un courant pic de 1.4A/cm^2 avec un taux de modulation de 70% fûrent obtenus dans ce cas.

A la différence des techniques utilisant des grilles, la modulation du faisceau par l'intermédiaire d'une cavité n'est pas limitée en fréquence. Elle dépend uniquement de la dimension de la cavité résonante. Ainsi, pour satisfaire la condition de résonance au THz, les dimensions du système devront être de l'ordre de quelques dizaines de microns. Comme nous le faisions remarquer précédemment, ceci devient particulièrement contraignant pour la fabrication du dispositif. Par ailleurs, les champs électriques hyperfréquences injectés dans la cavité doivent atteindre des valeurs proche de 10 V/µm. L'obtention de telles valeurs pose donc un problème lié au faibles puissances entrées qui sont disponibles dans la gamme THz. Tout en nous démarquant de cette approche, nous verrons que notre choix technologique est cependant inspiré par cette technique.

1.2.4.5 La photomodulation

Dans cette nouvelle approche, le champ électrique macroscopique appliqué sur la cathode est constant et l'émission est modulée optiquement. L'idée est d'associer à chaque émetteur de champ une photodiode polarisée en inverse. Dans ce cas, l'application du champ électrique induit la formation d'une zone de déplétion dans la photodiode située au pied de l'émetteur de champ. Celle-ci limite le courant circulant dans l'émetteur à moins qu'un laser ne l'éclaire à la longueur d'onde du gap de la jonction. Dans ce cas, la photodiode agit comme une source de courant et délivre un courant qui est proportionnel à la puissance lumineuse incidente. En modulant la source lumineuse, il devient alors possible de moduler le courant émis par la cathode.

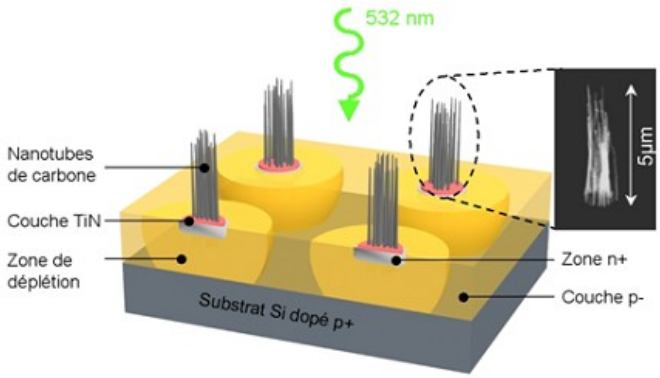


FIGURE 1.19 – Présentation du substrat d'une photocathode à nanotubes [54]

Hudanski et al. [54] ont démontré le fonctionnement ON/OFF d'une telle photocathode basée sur des photodiodes silicium. Comme le montre la figure 1.19, la cathode est composée d'un réseau de micro-cathodes, chacune associée à une photodiode. La photocathode délivre un courant pic de 500µA avec un rapport d'intensité ON/OFF de 30. Dans les travaux suivants cette première démonstration, une modulation jusqu'à 1GHz fût démontrée à partir de photodiodes avec matériaux III/V.

Dans le cas de ce système, la limitation fréquentielle de la modulation dépend de la fréquence de coupure de l'élément photodiode/nanotube. Cette limite est dépendante de plusieurs paramètres comme le temps de vie des porteurs et la résistance de charge du nanotube. Les études en cours [55] semblent indiquer que les performances de ce système ne peuvent excéder 20GHz.

1.3 La cathode THz

1.3.1 Introduction

Nous avons pu montrer que la prémodulation du faisceau électronique est une caractéristique intéressante pour les tubes électroniques car elle offre la perspective d'augmenter le rendement du tube de manière importante. Elle intéresse ainsi le domaine hyperfréquence avec la perspective d'augmenter la puissance de sortie des tubes et/ou de réduire leur taille et leur poids. Comme précédemment évoqué, les tubes électroniques travaillant dans le domaine THz sont affectés par de fortes pertes qui pénalisent leur efficacité. Ces tubes sont donc particulièrement intéressés par la possibilité de prémoduler faisceau.

Le but de notre étude sera donc de travailler sur la réalisation d'une cathode dont l'émission électronique pourra être modulée au THz. Pour cela, il est nécessaire de développer une technique nouvelle permettant de dépasser les limites des méthodes précédentes. En effet, nous avons vu que les fréquences de coupures des dispositifs à grille, à cavité et des photocathodes n'excèdent pas quelques dizaines de GHz. Nous ne pourrons pas adresser la gamme THz avec ces dispositifs.

Cette dernière partie va donc poser les bases d'une nouvelle approche. Celle-ci repose sur l'application du phénomène non-linéaire de mélange sur une cathode à nanotubes. En procédant à l'interaction de deux ondes émises par un laser avec une cathode à nanotubes, il est possible de générer un courant modulé à 1THz si les ondes sont séparées de 1THz en fréquence. Pour présenter une compréhension générale de cette méthode, nous nous appuierons dans un premier temps sur un état de l'art de la modulation de l'émission de champ par mélange optique. Ensuite, nous transposerons ce concept dans le cas de la modulation d'une cathode à nanotubes de carbone multi-parois.

1.3.2 La prémodulation à 1THz par mélange de fréquences

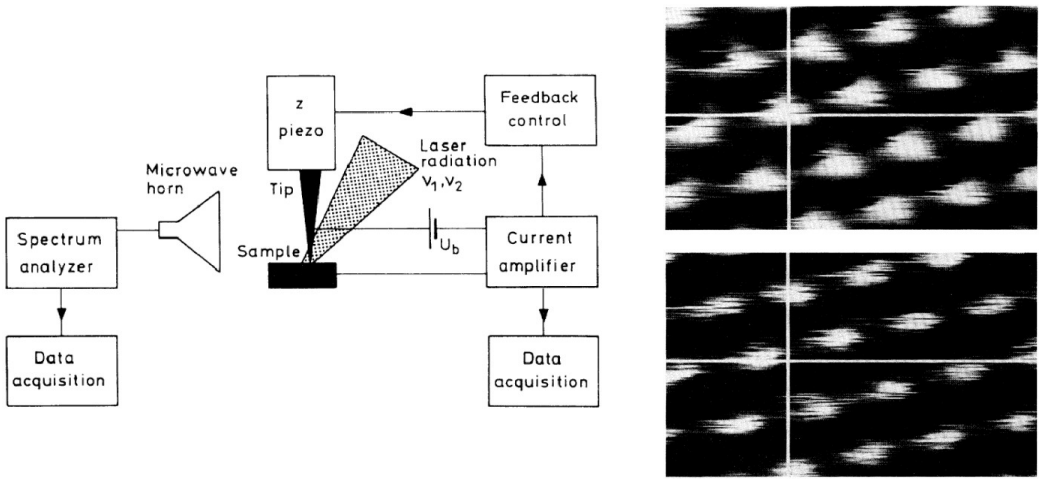
Pour accéder à des régimes plus rapides que le domaine hyperfréquence, plusieurs équipes ont utilisé le contrôle direct de l'émission de champ par la modulation haute fréquence d'une porteuse optique. A travers un état de l'art de ces expériences, nous allons présenter les principes généraux associés à cette méthode.

1.3.2.1 Émission de champ modulée par mélange de fréquences

Principe : Les jonctions tunnel composées d'une interface métal-isolant-métal formée d'une pointe en contact avec une surface oxydée (diode MIM) ont été longtemps utilisées pour produire et mesurer les fréquences de battements des lasers [56]. Dans ces systèmes la jonction tunnel est toujours caractérisée par une relation non-linéaire entre le champ électrique et le courant. En présence d'un champ oscillant appliqué sur le gap de la jonction, il est possible de générer des courants à des fréquences harmoniques de l'oscillation fondamentale. On peut ainsi obtenir une composante continue dite de rectification et des fréquences de mélange si plusieurs oscillations sont utilisées.

Inspirés par l'analogie entre la diode MIM et la jonction d'un Microscope à Effet Tunnel (en anglais *Scanning Tunneling Microscope = STM*), Arnold et al. [58, 59] ont effectué des expériences de mélange sur un STM en détectant des courants à la fréquence de battement de

deux lasers CO_2 ($\lambda = 9.3\mu m$). Dans ces premières expériences, des fréquences de battement de 100kHz à 90MHz furent détectées entre des pointes de tungstène et des substrats de graphites et d'or. Néanmoins, ces fréquences de battement étaient petites voire comparables aux constantes de temps associées à la dilatation thermique des pointes. Ces expériences permirent ainsi de mettre en évidence la composante thermique du signal et d'analyser sa dépendance en fonction de la fréquence de battement.



(a) (b)

FIGURE 1.20 – (a) Dispositif expérimental de Krieger et al. [57] (b) Images des sites atomiques à surface du graphite obtenues en mesurant le courant tunnel (haut) et en mesurant le signal différence de fréquence (bas).

Pour dépasser les fréquences associées aux effets thermiques, des fréquences de battement plus élevées ont ensuite été considérées comme par exemple à 5GHz, à 9GHz et même 5THz [57, 60]. Le schéma du dispositif expérimental utilisé pour ces mesures est donné sur la figure 1.21a. Dans ce cas, 2 lasers CO_2 sont focalisés sur la pointe d'un STM. Le spot issu des 2 faisceaux copropageant est ajusté sur le sommet de la pointe en platine iridié. Les fréquences des 2 lasers sont ajustés de manière à obtenir la fréquence de battement désirée. La jonction tunnel agit alors comme un élément rayonnant dont le champ lointain peut être détecté à l'aide d'une antenne cornet.

En proche connection avec les expériences effectuées sur les jonctions MIM, une compréhension globale s'est progressivement dégagée de ces expériences [57, 61, 62]. Comme la pointe métallique possède respectivement un diamètre fin et une longueur grande devant la longueur d'onde, elle agit comme une antenne optique. Les champs électriques des deux faisceaux lasers sont donc couplés aux électrons de la pointe et produisent deux champs électriques oscillant F_1 et F_2 sur le gap de la jonction tunnel. Ces champs engendrent la formation d'un courant tunnel modulé dont les composantes s'expriment par le développement suivant :

$$I = I(F_0) + \left.\frac{dI}{dF}\right|_{F_0} (F_1 + F_2) + \frac{1}{2}\left.\frac{d^2I}{dF^2}\right|_{F_0} (F_1 + F_2)^2 + ... \tag{1.3}$$

Avec F_0 le champ électrique continue appliquée sur la jonction et $I(F_0)$ le point de fonctionnement champ-courant de la jonction. Les champ F_1 et F_2 oscillent respectivement aux

fréquences ω_1 et ω_2. Aussi, le terme associé à la dérivée seconde de cette expression permet de générer des termes de mélange comme la somme et la différence des fréquences : $\omega = 0$, $2\omega_1$, $2\omega_2$, $(\omega_1 + \omega_2)$ et $(\omega_1 - \omega_2)$. Une expérience mesurant simultanément le courant DC et le signal de différence de fréquence a permis de vérifier la validité de cette relation [57]. Durant cette expérience, un signal rectifié (terme à ω=0) de 660pA a été mesuré pour une puissance laser incidente de 30mW.

Plus récemment, des expériences de mélange ont été rapportées dans le proche infrarouge. Dans une série d'expériences réalisées avec deux diodes laser de 1.3µm et d'une puissance de 20mW, Gutjahr-Löser et al. [63] ont observé une modulation à 6.8GHz et précisé le mécanisme de couplage du rayonnement électromagnétique avec la pointe. En remarquant que le signal rayonné avait diminué proportionnellement à λ^2 par rapport à leur précédente expérience à 9.3µm, ils montrèrent que le couplage du rayonnement à la pointe obéissait à un couplage d'antenne classique régi par l'équation de Friis [64]. Outre la confirmation du comportement d'antenne de la pointe, cette étude a montré que la formule 1.3 est également valide dans le proche infrarouge.

Mais la question de la validité de cette équation est un point de controverse dans la communauté scientifique. En effet, dans une expérience à 1.3µm, nous voyons que la demi-période du rayonnement est de 2.6fs et se rapproche de l'ordre de grandeur de la durée de l'effet tunnel qui est de 1 à 2 femtosecondes en régime d'émission de champ (voir référence [65] p325). Ainsi le champ électrique du rayonnement n'est pas strictement appliqué de manière quasi-statique sur le potentiel de la jonction durant le transit des électrons dans la barrière. Aussi, la formule 1.3 ne peut plus être considérée comme strictement valide dans ce cas.

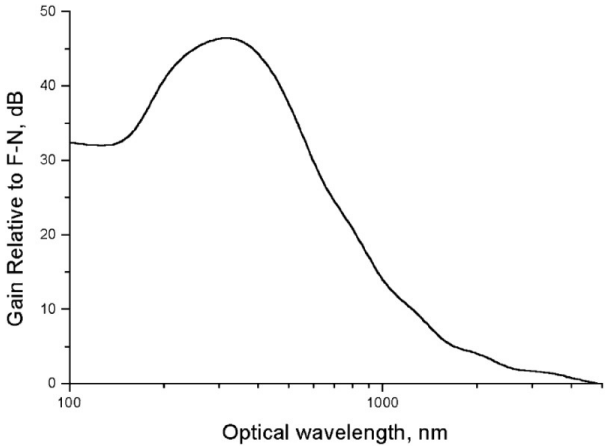


FIGURE 1.21 – Variation du gain sur le courant de mélange de l'équation 1.3 pour une pointe en tungstène en fonction de la longueur d'onde [66].

Pour décrire spécifiquement ce régime transitoire, Hagmann [66] a développé un formalisme permettant de rendre compte de la perturbation temporelle de la barrière de potentiel durant l'effet tunnel. Son calcul montre que le régime des fréquences optiques correspondrait à l'émergence d'un effet tunnel résonant qui conduit à l'accroissement de l'amplitude du courant de mélange. Pour corriger les termes du second ordre de l'équation 1.3, un gain doit être utilisé pour tenir compte de l'effet de la résonance. Le calcul de la variation de ce gain en fonction de la longueur d'onde est présenté sur la figure 1.21b pour une pointe de tungstène en régime d'émission de champ. On constate que des gains appréciables sont à attendre dans

le régime du visible. Toutefois, des expériences ont été tentées pour confirmer cet effet, leur interprétation est restée difficile puisque les fréquences de battement sont restées trop faibles pour s'affranchir des effets thermiques [67, 68].

Applications de l'interaction laser-pointe polarisée : L'étude de l'interaction entre une pointe polarisée et un faisceau laser date des années 1980. Parmi les voies de recherche explorées, dont certaines sont récemment apparues, nous pouvons citer quelques exemples :

1. **STM photoassisté** : L'interaction laser-pointe polarisée a été longtemps étudiée dans l'objectif de réaliser un STM photoassisté [69]. En référence à la partie précédente, on notera l'utilisation des effets non-linéaire pour améliorer les fonctionnalités du STM. Comme le signal rayonné par le courant de mélange est fortement dépendant de la distance entre la pointe et l'échantillon, il fournit un moyen alternatif au courant tunnel pour contrôler la distance pointe-substrat. La figure 1.20b présente la mise en oeuvre de cette technique par Volcker et al. [70] pour imager la surface d'un échantillon de graphite. Leur dispositif démontra une résolution équivalente à la méthode usuelle.
2. **Sonde atomique tomographique assistée par laser** : cette application repose sur le principe de la sonde atomique tomographique inventée par E.W. Müller en 1967. Dans sa version originale, un champ électrique est appliqué sur une pointe conductrice pour provoquer l'évaporation progressive des atomes localisés à l'apex de la pointe. En contrôlant cet effet et en détectant les espèces évaporées avec un spectromètre de masse, il devient possible de remonter à la composition du matériau de la pointe. Avant l'émergence d'un contrôle par laser, les échantillons étudiés étaient limités aux matériaux conducteurs. Mais l'utilisation d'impulsions ultrabrèves de fortes énergies permet aujourd'hui de provoquer l'évaporation localisée de pointes semiconductrices et isolantes. Grâce à l'interaction pointe-laser, cette technique de mesure s'est ouverte à une plus large gamme de matériaux [71].
3. **Émission électronique ultrarapide** : L'émission ultrarapide de paquets d'électrons est étudiée pour son intérêt en microscopie électronique afin d'augmenter la résolution temporelle des observations. Pour produire ces paquets d'électrons ultracourts, un laser impulsionnel femtoseconde est focalisé sur une pointe métallique en régime d'émission de champ. Grâce à la non-linéarité de l'équation de Fowler-Nordheim, il est alors possible de produire des impulsions électroniques plus courtes que la durée de l'impulsion laser, typiquement 1fs pour un pulse de 8fs [72].

1.3.3 Présentation de la cathode THz

Dans cette étude, nous allons transposer le concept du mélange optique à l'échelle d'une cathode à nanotubes orientés dans l'objectif de prémoduler un faisceau électronique à 1THz. Pour cela, un nouveau concept de cathode a été proposé et sera étudié dans ce travail. Avant d'en fournir une analyse détaillée, nous allons en donner tout d'abord les principales caractéristiques.

1.3.4 La cathode THz

Cette cathode, que l'on nommera "**cathode THz**", est présentée sur le schéma de la figure 1.22. Elle se compose de plusieurs éléments que nous allons présenter sur la base des conditions requises pour obtenir l'effet de mélange.

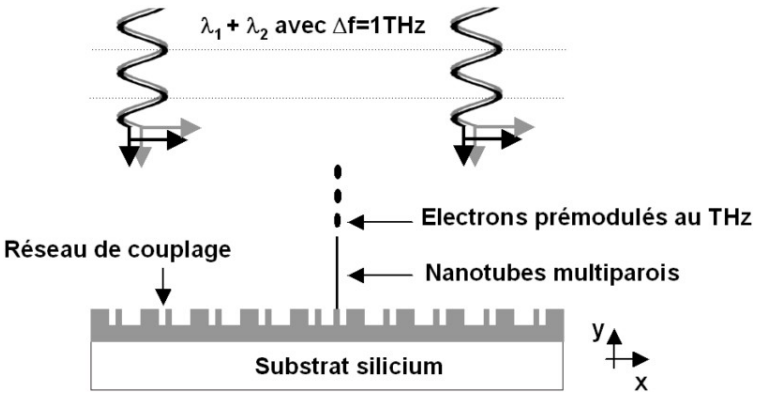


FIGURE 1.22 – Schéma de la cathode THz

La non-linéarité du courant : Le courant émis par cette cathode sera assuré par l'émission de champ d'un **réseau de nanotubes de carbone** orientés. Leurs excellentes qualités d'émission de champ devraient permettre l'obtention de fortes densités de courant ainsi que de grandes durées de vie. Le courant émis suivra la loi de Fowler-Nordheim qui présente une forte non-linéarité. Celle-ci assure que le battement de deux ondes aux sommets des nanotubes permettra la génération d'une composante modulée à la fréquence de battement, conformément aux expériences de Krieger et al. [57].

La variation quasi-statique du potentiel : La barrière de potentiel qui est traversée par l'électron doit se comporter de manière quasi-invariante pendant la durée de l'effet tunnel. Cela impose nécessairement une limite inférieure à la longueur d'onde qui sera utilisée pour effectuer la modulation. Elle sera discutée plus en détail dans notre chapitre 3 en se basant sur l'utilisation d'un **laser bi-fréquence** de 1W fonctionnant à une longueur d'onde de 1.55µm et permettant de produire des fréquences de battement jusqu'à 1THz. Celui-ci est développé parallèlement à cette étude au sein du laboratoire d'optique de THALES.

Le couplage d'antenne : Ce battement dans le proche infrarouge devra être transmis aux électrons circulant dans les nanotubes. Ce transfert énergétique est nécessaire pour que le battement soit convertie en une composante de mélange du courant. Toutefois, cela implique que les nanotubes multiparois se comportent comme des **nano-antennes métalliques** dans la gamme du proche infrarouge. La validation de cette condition sera discutée dans le chapitre 3 de cette étude.

Le couplage global et la concentration : Il sera également nécessaire que la polarisation du laser soit alignée avec l'axe vertical de chaque nanotube de la cathode. En effet, le champ électrique du rayonnement laser doit pouvoir s'ajouter à la composante du champ électrique permettant l'extraction électronique. Cependant, cette condition impose un éclairage en incidence rasante de la cathode qui est défavorable à un couplage homogène et en

phase de tous les émetteurs de champ. Aussi, pour résoudre ce problème, un éclairage en incidence normale de la cathode THz a été retenu. Comme le montre la figure 1.22, l'alignement de la polarisation est alors assurée par la présence d'un **réseau de couplage** métallique. Ce réseau permet de coupler le rayonnement incident à des ondes de surface dont la polarisation est correctement alignée avec l'axe des nanotubes. Ces réseaux remplissent également une fonction de concentration du champ électromagnétique au voisinage de chaque nanotube. Ils garantiront ainsi un accroissement de l'efficacité de la conversion du battement optique en courant modulé. Pour cette raison, nous appellerons cette structure "**concentrateur de surface**". Celui-ci sera développé et optimisé dans le chapitre 2.

1.3.5 Le tube THz

Le concept du tube électronique THz qui intégrera notre cathode est schématisé sur la figure 1.22. On présente ici une vue de principe donnant les positions relatives des éléments importants du tube. Outre la cathode, nous pouvons distinguer la ligne à retard, le collecteur, les ports d'entrée et de sortie.

La ligne à retard présentera une structure ouverte afin de faciliter sa réalisation. Usuellement, la fabrication de ces lignes est obtenue à partir d'un moule en résine de polymères qui est insolée par une technique de lithographie par rayon X où LIGA (en allemand *Röntgen**li**thographie, **G**alvanoformung, **A**bformung*, soit en français *Lithographie par rayon X, formage galvanique, moulage*). Après le développement de la résine, le métal est déposé dans le moule au sein d'un bain électrolytique pour finalement constituer la ligne. Cette technique permet ainsi de réaliser la ligne en une seule étape de gravure dans le cas d'une ligne ouverte.

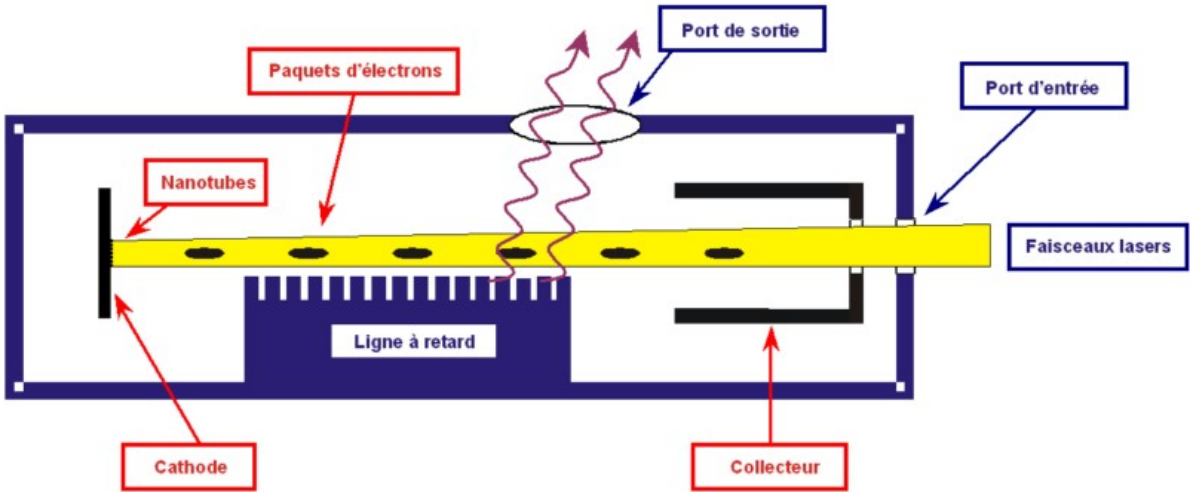


FIGURE 1.23 – Configuration du TOP initialement envisagée dans notre étude

Le faisceau laser doit éclairer la cathode en incidente normale et passera au voisinage des éléments du tube. Cette intégration conduira donc à une modification des caractéristiques usuelles des éléments du tubes. La figure 1.23 donne une solution initialement envisagée qui nécessite l'utilisation d'un collecteur possédant une partie postérieure transparente à 1.55µm. Mais la présence du système de focalisation électronique disposé au voisinage de la cathode (non représenté sur la figure 1.23) mène aujourd'hui à discuter la faisabilité d'une telle configuration.

La fabrication de ce tube électronique et de la cathode THz sont envisagées depuis le 1er avril 2008 au sein du projet OPTHER (Optically Driven Terahertz Amplifiers) pour réaliser une source THz d'une puissance comprise entre 10mW et 100mW. L'échéance de ce projet est fixée au 31 mars 2011.

1.4 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons présenté la problématique de cette étude en développant son contexte technologique. Nous avons ainsi positionné l'apport des tubes électroniques dans la compétition pour combler le gap THz. Parmi ces tubes, nous avons plus particulièrement discuté du tube électronique à ondes progressives (TOP). Celui-ci a été initialement envisagé comme le système permettant d'accéder à la gamme de puissance 10mW-100mW à l'aide de la prémodulation du faisceau électronique.

Parmi les sources électroniques disponibles pour les tubes, cette prémodulation à hautes fréquences ne peut être envisagée qu'à partir d'une cathode froide. Afin de permettre une extraction stable, performante et durable du courant, ces cathodes nécessitent l'utilisation de nanotubes de carbone orientés verticalement. L'état de l'art de la prémodulation électronique sur ce type de cathode nous a montré que plusieurs alternatives existent mais qu'elles sont limitées à des fréquences inférieures à quelques dizaines de GHz. Par conséquent, une nouvelle approche a été envisagée menant au concept de la cathode THz. Celle-ci utilise le battement de deux longueurs d'ondes à 1THz et la non-linéarité du phénomène d'émission de champ pour produire une composante de courant modulé à 1THz. Cette cathode nécessite l'intégration d'un réseau de nanotubes de carbone à la surface d'un réseau concentrateur métallique.

Dans la suite de l'étude, nous allons successivement envisager le fonctionnement des différentes parties de cette cathode. Nous distinguerons tout d'abord le réseau concentrateur dont la structure devra être précisée et les performances évaluées, le réseau de nanotubes dont les dimensions devront s'adapter à la problématique du couplage électromagnétique.

Références

[1] M. Cooke. Filling the THz gap with new applications. *Semiconductor Today*, 2(1) :39–43, 2007.

[2] JR Pierce. Traveling Wave Tubes. *Bell Syst. Tech. J*, 29 :390–460, 1950.

[3] G. Gartner, P. Geittner, H. Lydtin, and A. Ritz. Emission properties of top-layer scandate cathodes prepared by LAD. *Appl. Surf. Sci.*, 111 :11–17, 1997.

[4] RT Longo, EA Adler, and LR Falce. Dispenser cathode life prediction model. In *Electron Devices Meeting, 1984 International*, volume 30, 1984.

[5] P. Zalm and AJA Van Stratum. Osmium dispenser cathodes. *Philips Technical Review*, 27(3/4) :69–75, 1966.

[6] JR Pierce. Rectilinear electron flow in beams. *J. Appl. Phys.*, 11 :548, 1940.

[7] RH Fowler and L. Nordheim. Electron emission in intense electric fields. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 119 :173–181, 1928.

[8] J.E. Lilienfeld. Autoelectronic Device, 1922.

[9] CA Spindt. A Thin-Film Field-Emission Cathode. *J. Appl. Phys.*, 39 :3504, 1968.

[10] CA Spindt, CE Holland, PR Schwoebel, and I. Brodie. Field emitter array development for microwave applications. I. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 16 :1986, 1996.

[11] CA Spindt, CE Holland, A. Rosengreen, I. Brodie, SRI Int, and M. Park. Field-emitter arrays for vacuum microelectronics. *IEEE T. Electron. Dev.*, 38(10) :2355–2363, 1991.

[12] W. Zhu. *Vacuum microelectronics.* Wiley-Interscience, 2001.

[13] C.O. Bozler, C.T. Harris, S. Rabe, D.D. Rathman, M.A. Hollis, and H.I. Smith. Arrays of gated field-emitter cones having 0.32 μm tip-to-tip spacing. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 12 :629, 1994.

[14] M. Benjamin and RO Jenkins. The Distribution of Autelectronic Emission from Single Crystal Metal Points. I. Tungsten, Molybdenum, Nickel in the Clean State. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, 176 :262–279, 1940.

[15] V.T. Binh, N. Garcia, and ST Purcell. Electron field emission from atom-sources : fabrication, properties, and applications of nanotips. *Advances in Imaging and Electron Physics*, 95 :63–155, 1996.

[16] QH Wang, TD Corrigan, JY Dai, RPH Chang, and AR Krauss. Field emission from nanotube bundle emitters at low fields. *Appl. Phys. Lett.*, 70 :3308, 1997.

[17] KBK Teo, RG Lacerda, MH Yang, AS Teh, LAW Robinson, SH Dalal, NL Rupesinghe, M. Chhowalla, SB Lee, DA Jefferson, et al. Carbon nanotube technology for solid state and vacuum electronics. *IEE Proceedings-Circuits, Devices and Systems*, 151(5) :443–451, 2004.

[18] KBK Teo, M. Chhowalla, GAJ Amaratunga, WI Milne, P. Legagneux, G. Pirio, L. Gangloff, D. Pribat, V. Semet, V.T. Binh, et al. Fabrication and electrical characteristics of carbon nanotube-based microcathodes for use in a parallel electron-beam lithography system. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 21 :693, 2003.

[19] FS Baker, AR Osborn, and J. Williams. Field Emission from Carbon Fibres : A New Electron Source. *Nature*, 239 :96–97, 1972.

[20] S. Iijima. Helical microtubules of graphitic carbon. *Nature*, 354(6348) :56–58, 1991.

[21] W.A. De Heer, A. Chatelain, and D. Ugarte. A carbon nanotube field-emission electron source. *Science*, 270(5239) :1179, 1995.

[22] AG Rinzler, JH Hafner, P. Nikolaev, P. Nordlander, DT Colbert, RE Smalley, L. Lou, SG Kim, and D. Tomanek. Unraveling nanotubes : field emission from an atomic wire. *Science*, 269(5230) :1550, 1995.

[23] ST Purcell, P. Vincent, C. Journet, and V.T. Binh. Hot nanotubes : Stable heating of individual multiwall carbon nanotubes to 2000 K induced by the field-emission current. *Phys. Rev. Lett.*, 88(10) :105502, 2002.

[24] J.M. Bonard, F. Maier, T. Stockli, A. Chatelain, W.A. de Heer, J.P. Salvetat, and L. Forro. Field emission properties of multiwalled carbon nanotubes. *Ultramicroscopy*, 73(1-4) :7–15, 1998.

[25] E. Minoux, O. Groening, K.B.K. Teo, S.H. Dalal, L. Gangloff, J.P. Schnell, L. Hudanski, I.Y.Y. Bu, P. Vincent, P. Legagneux, et al. Achieving high-current carbon nanotube emitters. *Nano Lett.*, 5(11) :2135–2138, 2005.

[26] X. Calderon-Colon, H. Geng, B. Gao, L. An, G. Cao, and O. Zhou. A carbon nanotube field emission cathode with high current density and long-term stability. *Nanotechnology*, 20(325707) :5pp, 2009.

[27] C. Bower, W. Zhu, S. Jin, and O. Zhou. Plasma-induced alignment of carbon nanotubes. *Appl. Phys. Lett.*, 77 :830, 2000.

[28] M. Meyyappan, L. Delzeit, A. Cassell, and D. Hash. Carbon nanotube growth by PECVD : a review. *Plasma Sources Science and Technology*, 12(2) :205–216, 2003.

[29] L. Nilsson, O. Groening, C. Emmenegger, O. Kuettel, E. Schaller, L. Schlapbach, H. Kind, JM Bonard, and K. Kern. Scanning field emission from patterned carbon nanotube films. *Applied Physics Letters*, 76 :2071, 2000.

[30] Z. Chen, Q. Zhang, P. Lan, B. Zhu, T. Yu, G. Cao, and D. Engelsen. Ultrahigh-current field emission from sandwich-grown well-aligned uniform multi-walled carbon nanotube arrays with high adherence strength. *Nanotechnology*, 18(26) :265702–265702, 2007.

[31] D.S.Y. Hsu and J.L. Shaw. Open aperture microgated carbon nanotube FEAs. *20th International Vacuum Nanoelectronics Conference*, 8-12 July 2007 :80–81, 2007.

[32] WI Milne, KBK Teo, GAJ Amaratunga, R. Lacerda, P. Legagneux, G. Pirio, V. Semet, and V. Thien Binh. Aligned carbon nanotubes/fibers for applications in vacuum microwave devices. *Current Applied Physics*, 4(5) :513–517, 2004.

[33] L. Gangloff, E. Minoux, KBK Teo, P. Vincent, VT Semet, VT Binh, MH Yang, IYY Bu, RG Lacerda, G. Pirio, et al. Self-aligned, gated arrays of individual nanotube and nanowire emitters. *Nano Lett.*, 4(9) :1575–1579, 2004.

[34] WP Kang, JL Davidson, A. Wisitsora-At, DV Kerns, and S. Kerns. Recent development of diamond microtip field emitter cathodes and devices. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 19 :936, 2001.

[35] S. Xavier, S. Matefi-Tempfli, E. Ferain, S. Purcell, S. Enouz-Védrenne, L. Gangloff, E. Minoux, L. Hudanski, P. Vincent, J.P. Schnell, et al. Stable field emission from arrays of vertically aligned free-standing metallic nanowires. *Nanotechnology*, 19(21) :215601–215601, 2008.

[36] O. Groening, OM Kuttel, P. Groening, and L. Schlapbach. Field emission properties of nanocrystalline chemically vapor deposited-diamond films. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 17 :1970, 1999.

[37] AV Karabutov, VD Frolov, SM Pimenov, and VI Konov. Grain boundary field electron emission from CVD diamond films. *Diamond and related materials*, 8(2-5) :763–767, 1999.

[38] O. Groening, OM Kuttel, E. Schaller, P. Groning, and L. Schlapbach. Vacuum arc discharges preceding high electron field emission from carbon films. *Applied Physics Letters*, 69 :476, 1996.

[39] JTH Tsai, KBK Teo, and WI Milne. Using a self-structured thin-film edge emitter to improve the field emission from tetrahedral amorphous carbon. *Materials Science & Engineering A*, 353(1-2) :56–61, 2003.

[40] Y. Saito and S. Uemura. Field emission from carbon nanotubes and its application to electron sources. *Carbon*, 38(2) :169–182, 2000.

[41] D.R. Whaley, R. Duggal, C.M. Armstrong, C.L. Bellew, C.E. Holland, and C.A. Spindt. 100 W Operation of a Cold Cathode TWT. *IEEE T. Electron. Dev.*, 56(5) :896–905, 2009.

[42] AJ Lichtenberg. Prebunched beam traveling-wave tube studies. *IEEE T. Electron. Dev.*, 9(4) :345–351, 1962.

[43] DR Whaley, BM Gannon, CR Smith, CM Armstrong, and CA Spindt. Application of field emitter arrays to microwave power amplifiers. *IEEE T. Plasma. Sci.*, 28(3) :727–747, 2000.

[44] AV Haeff and LS Nergaard. A wide-band inductive-output amplifier. *Proceedings of the IRE*, 28(3) :126–130, 1940.

[45] JE Rowe and JG Meeker. Interaction of Premodulated Electron Streams with Propagating Circuits. *International Journal of Electronics*, 9(6) :439–466, 1960.

[46] JA Morton and RM Ryder. Design factors of the Bell Telephone Laboratories 1553 triode. *Bell Syst. Tech. J*, 29 :496–517, 1950.

[47] C. Bower, D. Shalom, W. Zhu, D. Lopez, GP Kochanski, PL Gammel, S. Jin, A. Syst, and M. Hill. A micromachined vacuum triode using a carbon nanotube cold cathode. *IEEE T. Electron. Dev.*, 49(8) :1478–1483, 2002.

[48] KL Jensen. An analytical model of an emission-gated Twystrode using a field emitter array. *J. Appl. Phys.*, 83 :7982, 1998.

[49] KL Jensen, RH Abrams, and RK Parker. Field emitter array development for high frequency applications. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 16 :749, 1998.

[50] FM Charbonnier, JP Barbour, LF Garrett, and WP Dyke. Basic and applied studies of field emission at microwave frequencies. *IEEE J PROC*, 51(7) :991–1004, 1963.

[51] K.B.K. Teo, E. Minoux, L. Hudanski, F. Peauger, J.P. Schnell, L. Gangloff, P. Legagneux, D. Dieumegard, G.A.J. Amaratunga, and W.I. Milne. Microwave devices : Carbon nanotubes as cold cathodes. *Nature*, 437(7061) :968, 2005.

[52] P. Legagneux, E. Minoux, L. Hudanski, K. Teo, O. Griening, F. Peauger, D. Dieumegard, JP Schnell, L. Gangloff, GAJ Amaratunga, et al. GHz modulation of carbon nanotube cathodes for microwave amplifiers. *5th IEEE conference on Nanotechnology*, 2 :865–867, 2005.

[53] L. Hudanski. *Modulation of the electron beam emitted by carbon nanotube based carthode, application to microwave tubes.* PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2008.

[54] L. Hudanski, E. Minoux, L. Gangloff, K.B.K. Teo, J.P. Schnell, S. Xavier, J. Robertson, W.I. Milne, D. Pribat, and P. Legagneux. Carbon nanotube based photocathodes. *Nanotechnology*, 19(10) :105201–105300, 2008.

[55] N. Le Sech. *Photocathode à base de nanotubes de carbone sur substrats semi-conducteurs de type III/V - Application aux amplificateurs hyperfréquences.* PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2010.

[56] TG Blaney, GJ Edwards, BW Jolliffe, DJE Knight, and PT Woods. Absolute frequencies of the methane-stabilized HeNe laser (3.39μm) and the CO2, R (32) stabilized laser (10.17μm). *Journal of Physics D : Applied Physics*, 9 :1323–1330, 1976.

[57] W. Krieger, T. Suzuki, M. Volcker, and H. Walther. Generation of microwave radiation in the tunneling junction of a scanning tunneling microscope. *Physical Review B*, 41(14) :10229–10232, 1990.

[58] L. Arnold, W. Krieger, and H. Walther. Laser-frequency mixing in the junction of a scanning tunneling microscope. *Appl. Phys. Lett.*, 51 :786, 1987.

[59] L. Arnold, W. Krieger, and H. Walther. Laser-frequency mixing using the scanning tunneling microscope. *Journal of Vacuum Science & Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films*, 6 :466, 1988.

[60] W. Krieger, H. Koppermann, T. Suzuki, and H. Walther. The generation of laser difference frequencies using the scanningtunneling microscope. *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, 38(5) :1019–1021, 1989.

[61] HQ Nguyen, PH Cutler, TE Feuchtwang, Z.H. Huang, Y. Kuk, PJ Silverman, AA Lucas, and TE Sullivan. Mechanisms of current rectification in an STM tunnel junction and the measurement of an operational tunneling time. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 36(11 Part 2) :2671–2678, 1989.

[62] M. Volcker, W. Krieger, and H. Walther. Laser-frequency mixing in a scanning force microscope and its application to detect local conductivity. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 12 :2129, 1994.

[63] T. Gutjahr-Loser, A. Hornsteiner, W. Krieger, and H. Walther. Laser-frequency mixing in a scanning tunneling microscope at 1.3 μm. *Journal of Applied Physics*, 85 :6331, 1999.

[64] CA Balanis. *Antenna theory : analysis and design.* Wiley New York, 1982.

[65] D.W. Pohl and D. Courjon. *Near field optics.* Kluwer Dordrecht, 1993.

[66] MJ Hagmann. Photomixing in resonant laser-assisted field emission-a new technique for wide-band-tunable terahertz sources. *IEEE T. Microw. Theory.*, 52(10) :2361–2365, 2004.

[67] M. Brugat and MJ Hagmann. Measurements of modulation of the total emitted current in laser-assisted field emission. *Ultramicroscopy*, 79(1-4) :181–188, 1999.

[68] T. Kokubo, A. Gallagher, and JL Hall. Optical heterodyne detection at a silver scanning tunneling microscope junction. *Journal of Applied Physics*, 85 :1311, 1999.

[69] S. Grafstrom. Photoassisted scanning tunneling microscopy. *Journal of Applied Physics*, 91 :1717, 2002.

[70] M. Volcker, W. Krieger, and H. Walther. Laser-driven scanning tunneling microscope. *Physical review letters*, 66(13) :1717–1720, 1991.

[71] B. Deconihout, F. Vurpillot, B. Gault, G. Da Costa, M. Bouet, A. Bostel, D. Blavette, A. Hideur, G. Martel, and M. Brunel. Toward a laser assisted wide-angle tomographic atom-probe. *Surface and Interface Analysis*, 39(2-3) :278–282, 2007.

[72] P. Hommelhoff, C. Kealhofer, and M.A. Kasevich. Ultrafast electron pulses from a Tungsten tip triggered by low-power femtosecond laser pulses. *Physical review letters*, 97(24) :247402, 2006.

Chapitre 2

Optimisation du couplage électromagnétique

Sommaire

2.1 Introduction **41**
2.2 Propriétés des ondes de surface **41**
2.2.1 Considérations historiques 41
2.2.2 Le champ proche optique 42
2.2.3 Le plasmon-polariton de surface 43
2.2.4 Le couplage radiatif 44
2.2.5 Les ondes lentes de surface 46
2.2.5.1 Introduction 46
2.2.5.2 La génération des ondes lentes 47
2.2.5.3 Le cas du métal parfait 51
2.2.6 Le couplage aux ondes lentes de surface 52
2.2.6.1 Le profil bipériodique 52
2.2.6.2 La simplification lamellaire du profil 54
2.2.7 Les cavités de surface unidimensionnelles 55
2.2.7.1 Introduction 55
2.2.7.2 La cavité 1D sans couplage 56
2.2.7.3 La cavité 1D avec couplage 58
2.2.8 Conclusion 59
2.3 Optimisation du concentrateur de surface **61**
2.3.1 Introduction 61
2.3.2 La méthode des Différences Finies dans le Domaine du Temps . . . 61
2.3.3 Identification des mécanismes de pertes 63
2.3.3.1 Les pertes par diffraction 64
2.3.3.2 Les pertes par absorption 65
2.3.3.3 Le couplage de mode 65
2.3.4 Optimisation du concentrateur 66
2.3.5 Conclusion 68
2.4 La caractérisation expérimentale en champ proche **69**
2.4.1 Introduction 69
2.4.2 Description du banc expérimental 70

2.4.3 Le champ proche sur le réseau de Bragg 71
2.4.3.1 Introduction 71
2.4.3.2 La cartographie des modes lents 71
2.4.4 Le champ proche sur le concentrateur 74
2.4.4.1 Introduction 74
2.4.4.2 Cartographie du mode concentré 74
2.4.5 Conclusion 76
2.5 Le concentrateur bidimensionnel 77
2.5.1 Introduction 77
2.5.2 Introduction de la composante de couplage 79
2.5.3 Le concentrateur 2D 80
2.5.4 Conclusion 81
2.6 Conclusion 82

2.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, la problématique du couplage électromagnétique à la surface de la cathode THz a été évoquée. Nous avons montré que dans l'intérêt d'un adressage homogène des nanotubes de carbone, une illumination perpendiculaire de la cathode par le laser bifréquence avait été choisie. Mais la polarisation du faisceau laser est alors orientée perpendiculairement au champ d'extraction d'électronique appliqué sur la cathode. Dans ce cas, l'addition des composantes optique et statique du champ électrique ne peut pas avoir lieu, ce qui rend cette configuration impropre à la modulation de l'émission électronique.

L'objet de ce chapitre porte sur la conception d'une micro-structuration 1D diffractant le faisceau laser incident afin de générer des ondes de surface. Par nature, celles-ci possèdent une composante du champ électrique perpendiculaire au substrat. Cette nouvelle orientation est donc alignée avec le champ électrique statique et autorisera donc le transfert d'énergie du battement bi-fréquence du laser vers le faisceau électronique.

Dans la première partie de ce chapitre, les propriétés de ces ondes seront introduites et envisagées dans le cas des surfaces structurées périodiques 1D. Nous détaillerons alors une démarche qui conduira à la présentation du design du réseau concentrateur. Ensuite, nous procéderons à une optimisation numérique de la réponse électromagnétique de ce composant. La méthode utilisée pour réaliser cette étude paramétrique sera alors détaillée.

Après avoir déterminé les dimensions du réseau, nous aborderons la phase de caractérisation expérimentale. Une méthode de caractérisation sera alors mise en oeuvre pour effectuer la mesure du champ électrique à proximité du réseau. Dans une dernière partie, nous traiterons d'une étude numérique prospective qui portera sur l'utilisation des surfaces structurées 2D pour obtenir l'effet de concentration.

2.2 Propriétés des ondes de surface

2.2.1 Considérations historiques

La première observation indirecte des ondes de surface remonte aux expériences que Wood rapporte au début du 19ème siècle [1, 2]. Après avoir observé la diffraction par des réseaux métalliques, il constata que des anomalies d'intensité étaient présentes dans certains ordres diffractés. Rayleigh tenta d'expliquer ces défauts mais ne justifia leur présence que pour une excitation Transverse Electrique (TE). En 1941, Fano analysa théoriquement ces anomalies en terme d'ondes de surface se propageant à la surface du réseau [3].

Dans les années 1950, des expériences de spectroscopie de pertes d'énergie électronique (en anglais EELS = Electron Energy Losses Spectroscopy) s'intéressèrent au bombardement électronique de films métalliques. Des pics d'absorptions furent observés et associés à l'excitation collective des électrons de conduction du métal. Par analogie avec la physique des plasmas, le terme de "plasmon" fut introduit en 1956 par Pines pour décrire ces oscillations [4]. La même année Fano introduisit le terme "polariton" pour décrire le couplage résonant entre les électrons et la lumière dans un milieu transparent [5]. L'année suivante, Ritchie montra que les plasmons pouvaient exister à la surface des métaux [6] et en 1968 avec son équipe, il interpréta les observations de Wood en terme de plasmon de surface [7].

Plusieurs expériences s'intéressèrent alors à la réflexion de la lumière sur un film métallique disposé sur une face de prisme. En 1968, Otto [8] ainsi que Kretschmann et Raether [9] montrèrent que les oscillations plasma du métal pouvaient être excitées grâce à la réflection totale interne. Les propriétés des plasmons de surface furent ensuite associées aux propriétés optiques des nanoparticules métalliques [10]. Leur capacité à exhalter localement le champ optique fut alors utilisé dans le cadre de l'effet Raman exalté de surface (en anglais SERS = Surface Enhanced Raman Spectroscopy) découvert en 1974 par Fleischmann [11].

Dans les années 1980, la science des plasmons de surface connut un tournant avec la première détection de gaz et de molécules réalisé par Liedberg [12]. Ces études mènent aujourd'hui à l'intégration des plasmons de surface dans des systèmes de détection biologique comme les biopuces à ADN. Les plasmons de surface sont également utilisés dans beaucoup d'autres domaines. On peut citer l'exemple des détecteurs thermiques et les sources laser état solide dans lesquels les ondes de surface sont couramment utilisées afin d'augmenter respectivement la sensibilité et le gain.

Des découvertes fondamentales ont été effectuées depuis une quinzaine d'années dans le domaine de la plasmonique. En utilisant les matériaux structurés à des échelles inférieures à la longueur d'onde, elles permettent de concevoir des éléments d'optique plasmonique tels que des coupleurs [13], des cubes séparateurs [14, 15] ou des guides d'onde [16] mais aussi des éléments plus singuliers tels que des lentilles à focalisation parfaite [17]. En permettant la manipulation de la lumière à de petites échelles, ces travaux intéressent beaucoup d'applications comme le stockage de données, la lithographie optique, la microscopie ou encore la biophotonique [18].

2.2.2 Le champ proche optique

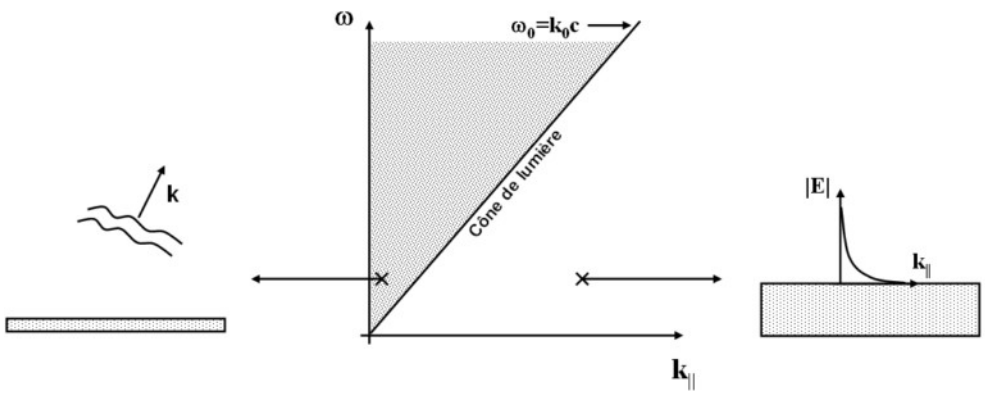


FIGURE 2.1 – Représentation des ondes électromagnétiques au voisinage d'un plan dans l'espace réciproque . La composante du vecteur d'onde parallèle au plan est noté $k_{\|}$.

Les ondes qui seront étudiées dans ce chapitre sont évanescentes et définies dans le champ proche d'une surface métallique. Avant de détailler leur nature, nous allons préciser la définition du champ proche et de l'évanescence qui sont deux notions intimement liées. La méthode usuelle pour vérifier cette relation est d'introduire le spectre angulaire d'une onde monochromatique se propageant au voisinage d'une surface plane à $z = 0$. En utilisant le formalisme de l'optique de Fourier, l'onde est décomposée sur une base d'ondes planes et l'expression générale du champ électrique se propageant pour tout $z > 0$ s'écrit sous la forme

suivante [19] :

$$E\left(r_{\parallel}, z\right) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}\left(k_{\parallel}, z=0\right) exp(ik_{\parallel}.r_{\parallel} + ik_z z) dk_{\parallel}$$

avec

$$k_z = \sqrt{k_0^2 - k_{\parallel}^2} \quad si \quad \left|k_{\parallel}\right| \leq k_0 \quad et \quad k_z = i\sqrt{k_{\parallel}^2 - k_0^2} \quad si \quad \left|k_{\parallel}\right| > k_0$$

Avec $r_{\parallel} = (x, y)$, $k_{\parallel} = (k_x, k_y)$, $k_z = \sqrt{k_{\parallel}^2 - k_0^2}$, $k_0 = \omega_0/c$ et $\tilde{E}$ la transformée de Fourier du champ électrique.

Dans cette expression, la variable $k_{\parallel}$ apparaît comme la fréquence spatiale associée aux variations du champ dans les plans parallèles à $z = 0$. Nous représentons sur la figure 2.1 la situation qui découle des deux régimes qui peuvent être distingués :

- $\left|k_{\parallel}\right| \leq k_0$: cette zone correspond aux basses fréquences spatiales dans le plan $z = 0$. Dans ce cas, k_z est réel et forme ainsi un facteur de phase dans l'exponentielle. Les ondes composant le spectre sont ainsi propagatives dans la direction définie par le vecteur d'onde k.
- $\left|k_{\parallel}\right| > k_0$: Dans ce cas, k_z est un imaginaire pur et l'exponentielle est un facteur d'atténuation. Les ondes associées sont donc évanescentes et ne se propagent pas dans la direction z. Cette décroissance est déterminée par $1/k_{\parallel}$ et caractérise la zone de "champ proche" de la surface.

Lorsque la figure 2.1 est représentée selon les deux composantes de $k_{\parallel}$, la séparation entre entre les domaines de propagation et d'évanescence forme le "cône de lumière".

2.2.3 Le plasmon-polariton de surface

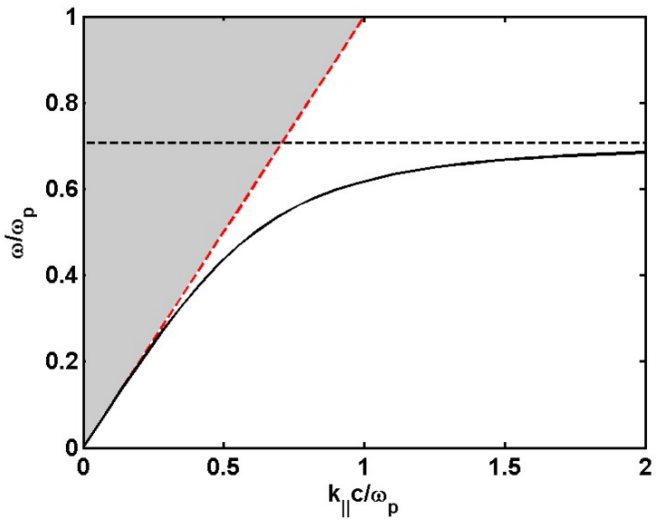


FIGURE 2.2 – Dispersion des plasmons de surface dans l'espace réciproque (ligne continue noire), le cône de lumière (ligne pointillée rouge)

Comme évoqué dans notre introduction historique, l'interface entre un diélectrique et un métal autorise l'existence d'un mode de résonance correspondant au couplage d'une onde électromagnétique de surface à une oscillation du plasma électronique. Cet état d'excitation est appelé "Plasmon Polariton de Surface" (en anglais Surface Plasmon Polariton = SPP),

le terme polariton caractérisant le couplage entre un mode du champ électromagnétique et un mode d'excitation de la matière. L'onde de surface associée au SPP est évanescente de part et d'autre de l'interface et polarisée selon le mode Transverse Magnétique [1]. Étant évanescentes, ces ondes sont décrites dans l'espace réciproque par des états qui se trouvent sous le cône de lumière.

Les équations de Maxwell permettent d'exprimer la condition d'existence des plasmons de surface. La propagation d'une onde TM décroissante de part et d'autre d'une interface entre deux milieux impose la condition suivante :

$$\frac{\epsilon_1}{k_{z1}} + \frac{\epsilon_2}{k_{z2}} = 0 \tag{2.1}$$

avec k_{zi} la composante du vecteur d'onde perpendiculaire à l'interface dans le matériau i et ϵ_i la permittivité du matériau i. L'existence d'une telle onde est donc vérifiée si $\epsilon_1\epsilon_2 < 0$, c'est à dire si l'interface sépare deux milieux de permittivités opposées ce qui est bien le cas avec un diélectrique ($\epsilon_1 > 0$) et un métal ($\epsilon_2 < 0$). En combinant la relation 2.1 avec l'équation de dispersion des ondes dans chacun des deux milieux, on obtient la relation de dispersion des plasmons de surface :

$$k_{sp} = \frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\epsilon_1\epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}} \tag{2.2}$$

La description du métal en terme de plasma électronique est établie à travers le modèle de permittivité de Drude. Celui-ci attribut aux électrons du métal une pulsation plasma ω_p ainsi qu'une fréquence de collisions ν. L'expression de la permittivité du métal peut ainsi se mettre sous la forme :

$$\epsilon_2 = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega\left(\omega + i\nu\right)} \tag{2.3}$$

La substitution de cette formule dans la relation 2.2 pour une interface vide/métal ($\epsilon_1 = 1$) conduit à la relation de dispersion des plasmons de surface. Celle-ci est tracée dans le diagramme $\left(\omega, k_{\|}\right)$ présenté sur la figure 2.2.

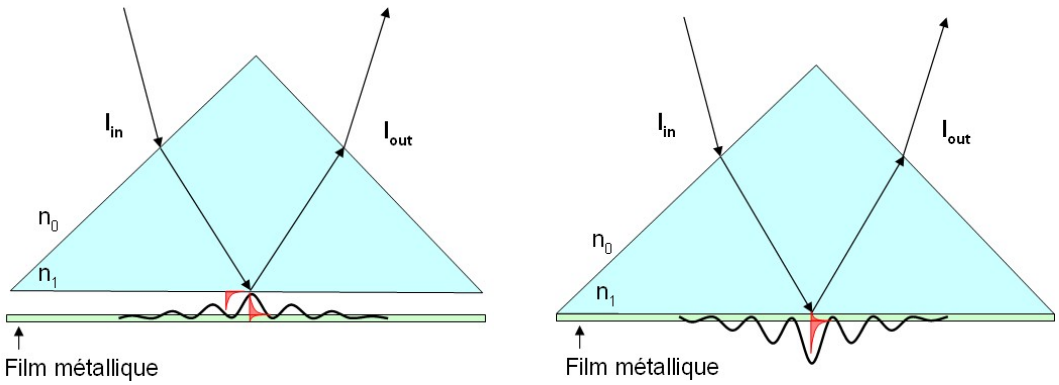
2.2.4 Le couplage radiatif

La précédente analyse a montré que le couplage d'une onde radiative aux plasmons de surface ne peut pas être direct. Les ondes radiatives ne possèdent pas de fréquences spatiales suffisamment grandes. Néanmoins, notre rappel historique a présenté plusieurs techniques qui ont été développées au cours du 20ème siècle pour fournir la quantité de vecteur d'onde manquante. Parmi elles, on s'intéressera principalement aux deux schémas de couplages suivants : le couplage par prisme et le couplage par réseau.

Le couplage par prisme : Cette technique de couplage utilise le phénomène de réflexion totale interne et l'effet tunnel optique pour exciter les plasmons de surface. En utilisant 2 milieux d'indices n_0 et n_1 avec $n_1 > n_0$, lorsque l'éclairement dans le prisme se produit au delà de l'angle critique, l'énergie du faisceau incident se répartit entre le faisceau réfléchi et des ondes évanescentes qui sont transférées par effet tunnel optique à l'interface entre le métal et le milieu d'indice n_0. Dans ce cas, le vecteur d'onde dans le prisme ($n_1 k_0 sin\left(\theta\right)$) est

1. Elle possède donc une composante du champ électrique perpendiculaire à l'interface qui est aligné avec le champ d'extraction électronique appliqué sur les nanotubes de carbone.

plus grand que le bord du cône de lumière dans le milieu extérieur ($n_0 k_0 sin\,(\theta)$). Il devient alors possible de trouver la condition d'accord de phase avec les plasmons de surface qui se propagent à l'interface du métal et du milieu d'indice n_0. Les deux principaux schémas de couplage utilisant cette méthode sont présentés sur la figure 2.3. La configuration de Kretchmann est très utilisée pour sa simplicité de mise en oeuvre et notamment pour la détection d'espèces biologiques. Dans ce cas, la surface métallique est fonctionnalisée avec des molécules réceptrices. Lorsque les molécules cibles viennent s'accrocher aux récepteurs, l'indice à la surface du métal est modifié, l'angle d'excitation change et fournit ainsi la condition de détection.



(a) Configuration Otto

(b) Configuration Kretchmann

FIGURE 2.3 – Dispersion des plasmons de surface

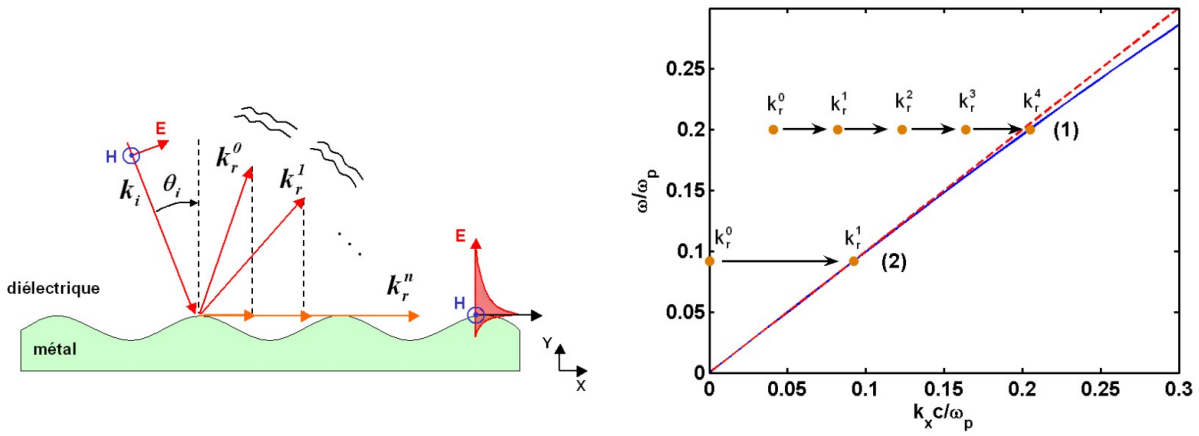
Toutefois, nous n'avons pas choisi d'employer cette technique. L'utilisation d'un prisme qui serait disposé en face arrière d'une cathode pose en effet des problèmes importants d'intégration dans notre montage. Celle d'un réseau de diffraction est au contraire plus simple à réaliser puisqu'il est possible de le graver directement sur le substrat de la cathode.

Le couplage par réseau de diffraction : Pour expliquer le principe du couplage dans le cas du réseau métallique, nous considérons le schéma de la figure 2.4a. L'accord de phase avec les plasmons de surface est alors réalisé en utilisant la loi de diffraction des réseaux. Nous rappelons que la projection du vecteur d'onde selon la direction (Ox) parallèle à la surface s'écrit :

$$k_{rx}^{n} = k_i sin\,(\theta_i) + nK \tag{2.4}$$

Avec k_i le vecteurs d'onde incident, k_{rx}^{n} la composante selon Ox du vecteur d'onde réfléchi dans l'ordre n et K la fréquence spatiale du réseau. L'angle θ_i est angle entre la direction du vecteur d'onde incident et la direction normale à la surface. Cette relation est illustrée avec les deux chemins (1) et (2) présentés sur le graphe de la figure 2.4b. Dans le cas de la progression (1), l'angle d'incidence est fixé arbitrairement et la longueur d'onde du faisceau incident est plus petite que 5 périodes du réseau. Nous voyons qu'en augmentant l'ordre n et ainsi la projection du vecteur d'onde de l'onde incidente dans la direction (Ox), les fréquences spatiales des ordres diffractés successifs parviennent finalement à se coupler aux plasmons de surface. Néanmoins, ce diagramme ne précise pas l'orientation de la polarisation incidente. Les plasmons de surface, qui sont des ondes transverses magnétiques, seront effectivement

excitées si le faisceau posséde une composante du champ électrique dans la direction perpendiculaire aux sillons du réseau. Ceci est mentionné sur le schéma récapitulatif de la figure 2.4a dans le cas d'une polarisation transverse magnétique (TM).



(a) (b)

FIGURE 2.4 – (a) Illustration du principe de couplage aux plasmons de surface par réseaux de diffraction. (b) Diagramme de dispersion (cône de lumière en ligne pointillée rouges et dispersion des SPP en ligne continue bleue) illustrant l'effet de la diffraction.

A partir de cette discussion, nous pouvons brièvement analyser la situation à la surface de notre cathode. Nous rappelons que nous cherchons à obtenir un couplage en incidence normale ($\theta_i = 0$) à la longueur d'onde de 1.55µm sur une surface métallique que nous choisissons en or. L'ordre de grandeur de la pulsation plasma de l'or ($\omega_p = 1.3210^{16}$rad.s^{-1}) nous amène dans un régime où $\omega_0/\omega_p = 0.092 << 1$. En combinant les équations 2.2 et 2.3 dans ce régime, nous voyons que la relation de dispersion des plasmons de surface est alors presque linéaire et tangente au cône de lumière avec $k_{sp} \approx \omega_0/c$. Par conséquent, si nous choisissons le pas du réseau comme égal à la longueur d'onde incidente λ_0, nous pouvons alors écrire l'égalité suivante pour le premier ordre diffracté : $K = 2\pi/\lambda_0 = k_{sp}$. Cette situation est indiquée sur le chemin (2) de la figure 2.4a. Ainsi, un réseau en or de période $\lambda_0 = 1.55$µm, éclairé en incidence normale par notre laser bi-fréquence en polarisation TM, permet un couplage aux plasmons de surface par le premier ordre diffracté.

2.2.5 Les ondes lentes de surface

2.2.5.1 Introduction

Nous allons introduire un concept important pour notre étude qui est celui des ondes lentes de surface, c'est à dire des ondes possédant une faible vitesse de groupe. Ce ralentissement des ondes est intéressant car il permet d'augmenter le temps de vie des modes résonant à la surface du métal. Ceci est illustré par la relation $\Delta\omega = (d\omega/dk)\Delta k$, dans laquelle si la configuration de couplage est donnée (Δk fixé), la diminution de la vitesse de groupe conduit à une plus grande finesse spectrale. Le temps de vie de photon, étant proportionnel à $\omega_0/\Delta\omega$, s'en trouve ainsi augmenté. Les ondes lentes sont donc favorables à une augmentation de la

densité d'énergie électromagnétique et fourniront ainsi un moyen pour accroître la composante du champ électrique optique au sommet des nanotubes.

La génération des ondes lentes de surface est rendue possible par une structuration périodique des surfaces métalliques. Nous allons maintenant détailler les propriétés générales de propagation sur ces surfaces.

2.2.5.2 La génération des ondes lentes

Empilement périodique de couches diélectriques : La réduction de la vitesse de groupe nécessite l'utilisation de milieux périodiques. Dans ce cas, les propriétés de propagation sont modifiées comme peut l'illustrer la propagation des ondes planes dans un milieu diélectrique périodique. En effet, si nous considérons un tel milieu, unidimensionnel, de période Λ, formé d'une alternance de couches diélectriques de permittivité $\epsilon_m + \epsilon$ et $\epsilon_m - \epsilon$, nous savons que la propagation sera interdite sur un ensemble continu de pulsations centré en $\omega_0 = \pi c/\Lambda\sqrt{\epsilon_m}$. Dans cet intervalle de fréquences, la période de la structure satisfait à la condition de diffraction de Bragg et agit comme un miroir dit de Bragg. L'apparition de cette bande interdite peut se comprendre par une approche heuristique. Alors que le milieu est encore homogène ($\epsilon = 0$), toutes les ondes peuvent se propager indifféremment dans les deux sens opposées. Si la perturbation périodique ϵ apparaît, cela modifie en particulier la propagation des ondes dont la distribution d'intensité est de périodicité équivalente. Plus précisément, cette structuration tend à accorder en phase les ondes co- et contra-propageante à la fréquence $c/\left(2\Lambda\sqrt{\epsilon_m}\right)$. Elle engendre ainsi la formation de deux ondes stationnaires différentes : la première avec les extrema localisés dans les zones de faible indice et la seconde avec les extrema localisés dans les zones de fort indice. Étant localisés dans des zones d'indices différents ces deux modes, dit de Bloch, n'ont pas la même énergie et il en résulte la formation d'une Bande Interdite Photonique (BIP) au voisinage de laquelle les ondes possèdent par continuité de faibles vitesses de groupe. Ce phénomène est à la base de la physique des cristaux photoniques et, comme l'ont montré Barnes et al [20], est transposable à la propagation des plasmons de surface sur les surfaces métalliques périodiques.

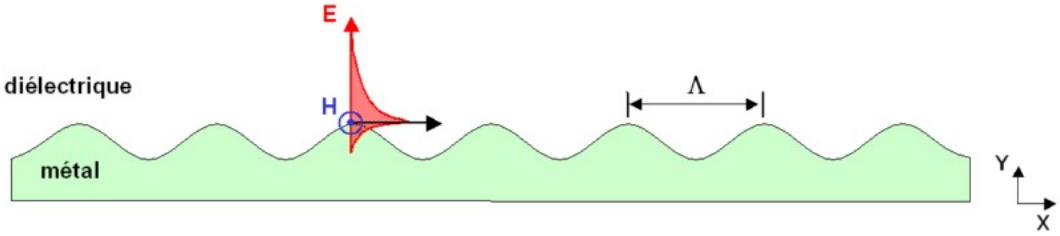
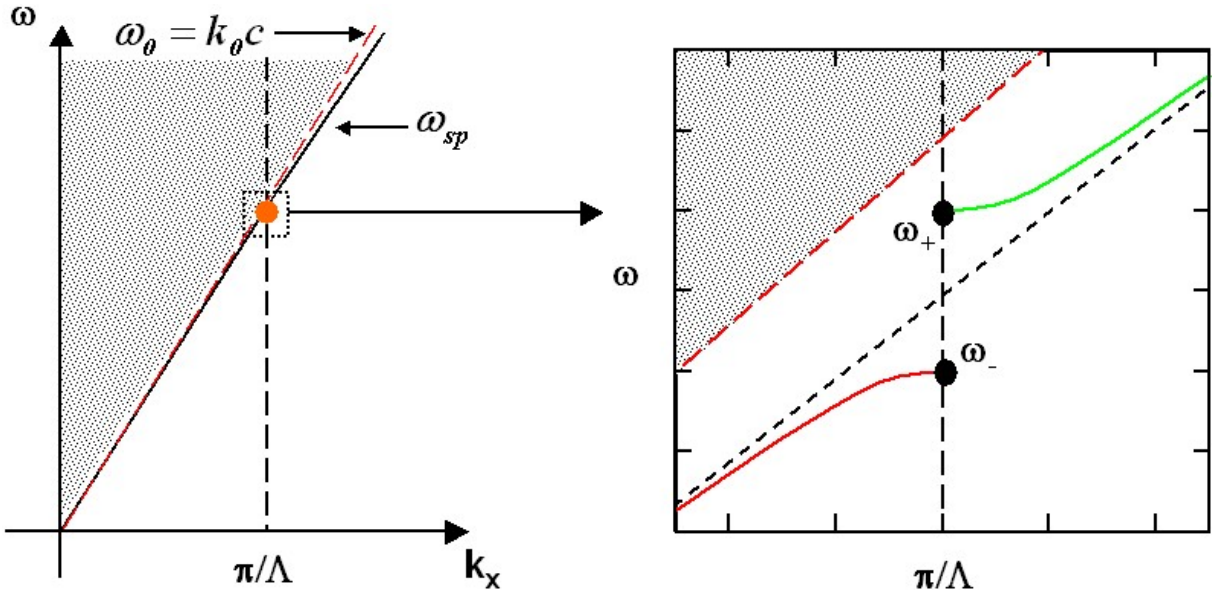


FIGURE 2.5 – Réseau métallique de période Λ

Structuration périodique d'une surface métallique : Une telle situation est considérée sur la figure 2.5. La dispersion des ondes de surface correspondante est détaillée sur la figure 2.6. Le graphe (a) montre la zone dans laquelle nous travaillons, c'est-à-dire la zone dans laquelle la dispersion des plasmons est approximativement linéaire. L'effet de la corrugation périodique est visible au voisinage du bord de la première zone de Brillouin [1] tel que le grossissement (b) peut le montrer. Nous voyons qu'une BIP est ouverte interdisant

1. La première zone de Brillouin est définie comme la maille élémentaire de l'espace réciproque.

la propagation des plasmons de surface entre les fréquences ω_- et ω_+. Ces deux fréquences identifient respectivement le bord de la bande de valence et de la bande de conduction [1].



(a) (b)

FIGURE 2.6 – Dispersion à la surface du réseau de la figure 2.5

Les propriétés générales de cette BIP ont été étudiées dans le cas des réseaux peu profonds par Barnes et al [20] à l'aide de la méthode de Chandezon. Cette méthode consiste à exprimer le problème dans un nouveau système de coordonnées dans lequel l'interface est plane. La résolution de l'équation de Helmoltz est ensuite effectuée en développant les solutions en série de Fourier sur la base des harmoniques spatiales du réseau. En limitant le développement au premier ordre propagatif, Barnes a exprimé sous forme analytique les principales caractéristiques d'un réseau métallique d'extension infinie. L'ouverture de la BIP a notamment été explicitée tel que :

$$\left(\frac{\omega_+}{c}\right)^2 - \left(\frac{\omega_-}{c}\right)^2 = \frac{4dK^3}{\sqrt{-\epsilon_1\epsilon_2}}\left(1 - 3\left(Kd\right)^2\right) \tag{2.5}$$

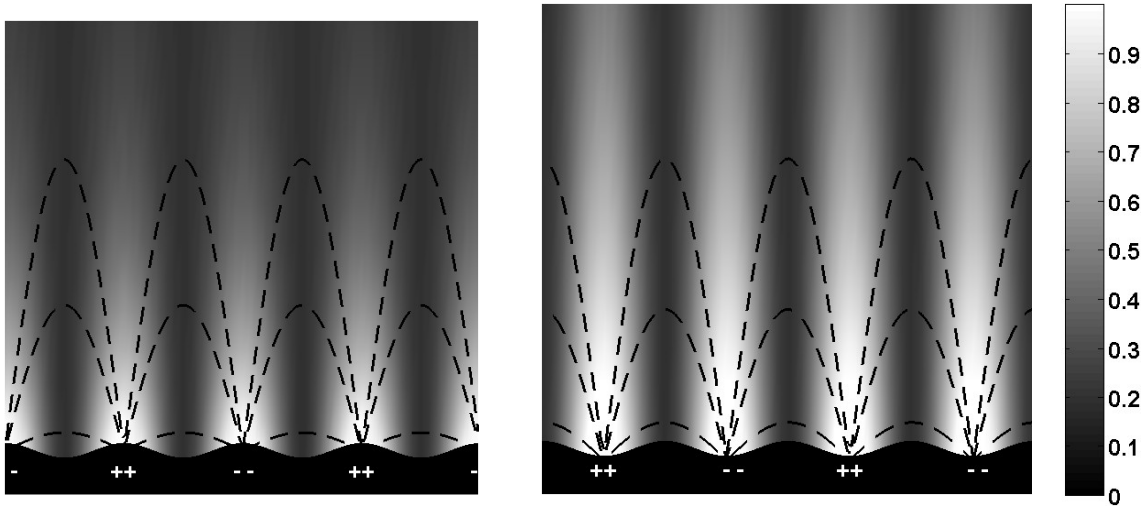
$$\left(\frac{\omega_c}{\omega_0}\right)^2 = \frac{1}{2}\frac{\omega_+^2 + \omega_-^2}{\omega_0^2} = 1 - 2\left(Kd\right)^2 \tag{2.6}$$

Avec ϵ_i la permittivité du milieu i, le milieu 1 étant le diélectrique et le milieu 2 le métal. On note d l'amplitude du profil sinusoïdal de fréquence spatiale K.

Dans ces équations, il est intéressant de noter que l'ouverture de la BIP augmente avec la profondeur de manière linéaire. Cette dépendance était attendue par analogie avec l'accroissement de la différence d'indice dans des milieux diélectriques périodiques. Mais il est à noter que cette différence d'énergie entre états de bord de bande n'a pas la même origine dans le cas des surfaces métalliques. Pour illustrer cela, nous présentons sur la figure 2.7 les

1. Nous emprunterons ces deux termes à la physique du solide par analogie avec l'apparition des bandes d'énergie lors de la propagation des électrons dans le potentiel cristallin. Notons que cette analogie n'est pas fortuite puisqu'elle est construite sur des bases théoriques équivalentes.

cartographies de la composante du champ électrique normal à la surface qui sont associées respectivement à ces deux modes. Le mode ω_- possède ses extrema sur les sommets de la composante périodique et le mode ω_+ dans les creux. L'origine de la différence d'énergie s'exprime ici dans la répartition du champ électrique. En effet, les lignes de champs du mode ω_+ sont plus contraintes par la géométrie du réseau et portent ainsi une plus grande quantité d'énergie.



(a) Mode ω_- (b) Mode ω_+

FIGURE 2.7 – Distribution du champ électrique E_y des modes ω_- et ω_+. Les lignes pointillées représentent les isolignes du champ électrique total.

D'après l'analyse de Barnes, nous présentons également les inverses des longueurs de décroissances η des deux modes dans le métal et dans l'air :

$$\eta_1^{\pm} = K\left(1 - 2\left(Kd\right)^2\right)\sqrt{\frac{\epsilon_1}{\epsilon_2}} \mp K^2 d\left(1 - 3\left(Kd\right)^2\right) \tag{2.7}$$

$$\eta_2^{\pm} = K\left(1 - 2\left(Kd\right)^2\right)\sqrt{\frac{\epsilon_2}{\epsilon_1}} \pm K^2 d\left(1 - 3\left(Kd\right)^2\right) \tag{2.8}$$

On constate que le mode ω_- possède une plus forte pénétration de l'onde dans le métal que le mode ω_+. Cette pénétration sera donc à l'origine de pertes par absorption plus importantes pour le mode ω_-. Dans le diélectrique, on constate que le mode ω_+ est moins confiné que le mode ω_-, ce qui est attendu pour un mode qui est plus proche du cône de lumière.

Structure finie : Par définition, la propagation des ondes de surface sur un réseau d'extension infinie est déterminée sur un ensemble continu de vecteurs d'onde. Cependant, dès lors que la fabrication d'une telle structure est envisagée, elle conduit à poser des limites spatiales à l'extension du champ dans la direction périodique et dans la direction invariante du plan. Ces modifications géométriques ont des conséquences importantes sur la dispersion des ondes de surface.

La discontinuité d'indice produite au bord du réseau induit une diffusion des ondes de surface incidentes depuis le métal. Lors de cette interaction, une partie de l'énergie incidente

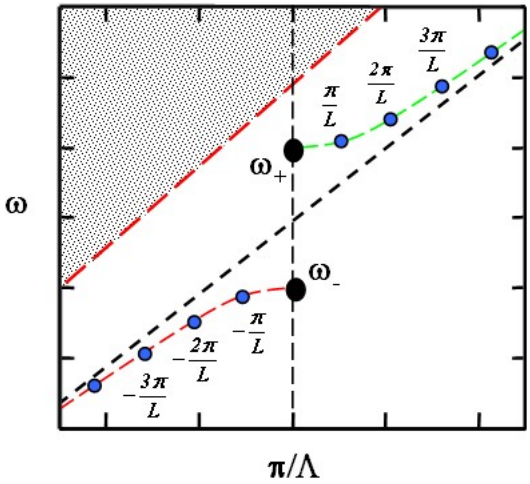
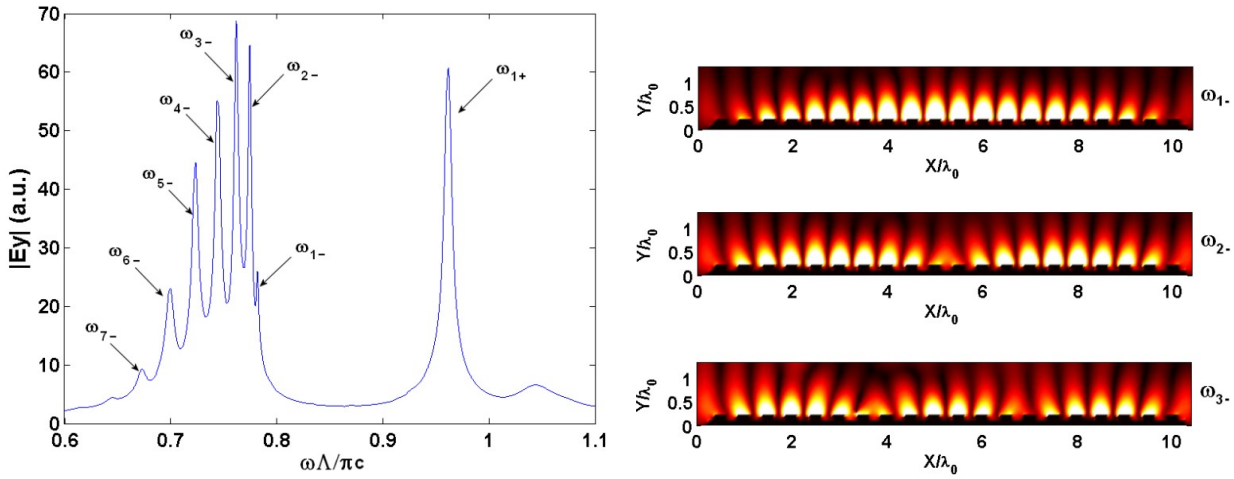


FIGURE 2.8 – Modification de la dispersion pour un réseau de taille finie.

est transmise et l'autre réfléchie. Ainsi, pour les ondes réfléchies, un réseau périodique limité par deux bords parallèles distants d'une longueur L forme une cavité conduisant à la quantification du vecteur d'onde en multiples de π/L. Dans ce travail, on s'intéresse plus particulièrement au bord de la première zone de Brillouin tel que représenté sur la figure 2.8. Dans ce cas, le vecteur d'onde de bord de bande $k_x = \pm\pi/\Lambda$ indique la condition de stationnarité de l'onde de Bloch qui correspond donc à l'absence de réflexions. L'existence de ce point n'est donc plus possible dès lors qu'une taille finie est considérée. Depuis ce point, la discrétisation engendrée par la cavité impose que les vecteurs d'onde prennent les valeurs $k_x = \pm\pi/\Lambda \pm n\pi/L$ dont les positions sont représentées dans le graphe de la figure 2.8. Par ailleurs, on doit noter que le champ est limité spatialement et qu'il ne peut plus être strictement représenté par un état ponctuel dans l'espace réciproque.



(a) $\omega/\omega_p = 0.3$, $h = 0.12\Lambda$, $L = 50\Lambda$

(b) $\omega/\omega_p << 1$, $h = 0.24\Lambda$, $L = 20\Lambda$

FIGURE 2.9 – Étude de $|E_y|$ à la surface d'un réseau taille finie : (a) spectre de la valeur moyenne de $|E_y|$ à Y=cst au dessus du réseau, (b) cartographies de $|E_y|$ à la surface du réseau

Plusieurs simulations de structures possédant une taille finie ont été envisagées dans ce travail à l'aide d'un algorithme développé au laboratoire et qui sera détaillé plus loin

dans cette partie. La figure 2.9 en donne deux exemples caractéristiques dans le cas d'un réseau binaire de période Λ. Dans le cas du graphe (a), celui-ci présente la moyenne spatiale du spectre de la composante du champ électrique normale à la surface. La présence des multiples pics résonant illustre bien la quantification du vecteur d'onde ainsi que la présence de la BIP. On remarque le pic isolé à hautes fréquences illustrant l'état fondamental de la bande de conduction. Cet isolement provient du fait qu'il se trouve à proximité du cône de lumière. Les états correspondant à des vecteurs d'onde plus grands sont ainsi directement couplés au champ rayonné. Le groupe de pics à basses fréquences correspond aux états de la bande de valence. Les cartographies présentées en (b) ont été choisies pour illustrer les distributions modales du champ électrique selon Oy associées aux 3 premiers pics du bord de bande de valence. Comme attendu et explicité dans un cas un peu différent [21] (modulation diélectrique à la surface d'un métal), on voit ainsi que le champ électrique est le produit de la variation d'un mode de Bloch par la variation de l'enveloppe du mode de cavité :

$$E_y(x) = E_0 cos\left(\frac{\pi x}{\Lambda}\right) sin\left(\frac{n\pi x}{L}\right)$$

2.2.5.3 Le cas du métal parfait

Nous avons jusqu'à maintenant considéré la propagation des plasmons sur la surface de la figure 2.5 dans le cas où leur fréquence est relativement proche de la pulsation plasma. Ce régime correspond typiquement à celui des fréquences optiques et à des valeurs faiblement négatives de la permittivité ($\epsilon > -100$). Nous allons maintenant nous intéresser à un autre régime, celui des fréquences plus faibles telles que $\omega/\omega_p << 1$. Dans ce cas, la permittivité du métal tend vers des valeurs fortement négatives et la pénétration de l'onde dans le métal devient alors très limitée. Si nous considérons simplement le problème d'une l'interface plane, la description mathématique du plasmon de surface tend alors vers celle d'une onde plane qui se propage parallèlement à la surface. Les équations 2.7 et 2.8 semblent également confirmer cette constatation. Relativement à ces remarques, la question de l'existence des modes localisées ω_- et ω_+ sur une interface périodique parfaitement métallique semble se poser.

Cette question revêt une double importance dans ce travail. En premier lieu, elle concerne naturellement la physique de la progapation des ondes à la surface de notre cathode. Comme nous l'avons précédemment noté, l'utilisation d'une surface en or et d'un rayonnement à $\lambda = 1.55\mu$m nous place dans une condition où $\omega/\omega_p << 1$. Mais cette problématique concerne également un second composant du tube électronique pour lequel la périodicité est cruciale. Il s'agit de la ligne à retard dont le fonctionnement repose également sur le concept d'onde lente. Dans la présente étude, on considère plus particulièrement les lignes dites à cavités couplées comme celle représentée sur la figure 1.23 représentant schématiquement notre tube THz ou encore celle de la figure 2.10. Leurs géométries sont analogues aux réseaux périodiques traités sur la cathode. Ce type de lignes est envisagé par le fait qu'elles sont ouvertes et ainsi plus faciles à fabriquer aux petites échelles comme dans la gamme THz.

Nous rappelons que le rôle d'une ligne à retard est de supporter et ralentir les ondes qui interagissent avec le faisceau électronique circulant dans le tube électronique. Les fréquences auxquelles ces lignes fonctionnent se situent le plus souvent dans la gamme hyperfréquence et dans notre cas dans la gamme THz. A ces fréquences, la profondeur de pénétration de l'onde dans le métal de la ligne est négligeable. En effet, à 30GHz ($\lambda_0 = 1$cm) et 1.5THz ($\lambda_0 = 200\mu$m) les profondeurs de pénétration dans le cuivre sont de 379nm et 54nm [22]. On utilisera

ainsi le terme "onde de surface" pour traiter généralement des plasmons de surface dans le domaine optique et des ondes de surface dans les domaines GHz et THz. Les formalismes qui ont précédemment été employés pour calculer la dispersion de ces lignes utilisent des représentations en schéma électriques équivalents. Cela fut illustré dans le chapitre 1 avec la présentation de la théorie de Pierce du TOP. Nous donnons un sens à cette simplification sur les schémas successifs de la figure 2.10. Dans cette description, les charges accumulées aux sommets des créneaux du réseau circulent de manière équivalente dans un réseau de capacités en série aux bornes desquelles le chemin électrique autorisant l'inversion de polarité tous les demi-cycles forme une série d'inductances en dérivation.

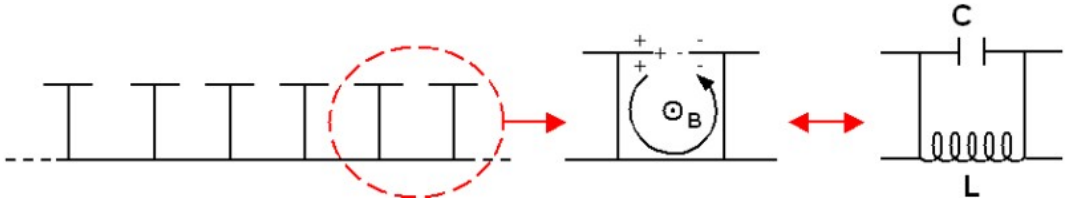


FIGURE 2.10 – Ligne à retard à cavités couplées aussi appelée surface à haute impédance. La représentation de droite montre le schéma électrique équivalent d'un élément de la ligne

Ces approches équivalentes ont permis de comprendre justement la physique de ces composants et de les développer dans les TOP. Toutefois, elles ne fournissent pas une compréhension générale en terme d'onde de surface qui serait connectée avec le domaine optique. Ce point étant déterminant pour le sens de notre étude, nous avons effectué le calcul de la variation des fréquences de bord de bande ω_- et ω_+, depuis le domaine visible jusque dans le domaine radio. Une méthode numérique, basée sur la décomposition modale des champs et spécialement adaptée pour traiter des ondes de surface a été utilisée pour réaliser ce calcul. Ce calcul a été effectué dans le cas d'un réseau lamellaire de période Λ et de profondeur 0.12Λ. Le résultat est présenté sur la figure 2.11. Dans le domaine optique, nous voyons qu'une BIP est ouverte dans la dispersion des ondes de surface. Les structures modales associées montrent que nous obtenons alors deux modes en quadrature de phase comme attendu d'après l'analyse précédente des ondes de surface. Néanmoins, il est intéressant de voir que le mode de la bande de conduction disparaît dans le cône de lumière au-delà d'une valeur critique de la permittivité. Dans ce cas, le mode de la bande de valence est toujours localisé sous le cône de lumière et maintient la présence d'une BIP. Au delà de cette valeur, le seul mode qui reste confiné à la surface est donc le mode ω_- possédant ses maxima au sommet des créneaux du réseau. Par conséquent, dans le cas des permittivités fortement négatives, la BIP à la surface d'un réseau métallique de période Λ n'est assurée que par la différence fréquentielle entre les fréquences ω_0 et ω_-.

2.2.6 Le couplage aux ondes lentes de surface

2.2.6.1 Le profil bipériodique

La problématique du couplage aux ondes de surface et celle des modes lents ont été abordées jusqu'ici de manière indépendantes. Il est maintenant possible de les réunir afin de parvenir à la construction d'un réseau capable de coupler le rayonnement incident à un mode lent. Le fonctionnement de ce nouveau réseau se base sur une combinaison astucieuses des deux composantes périodiques que nous avons précédemment introduites. Cette approche a été initialement développée en 1996 par Barnes et al. [20].

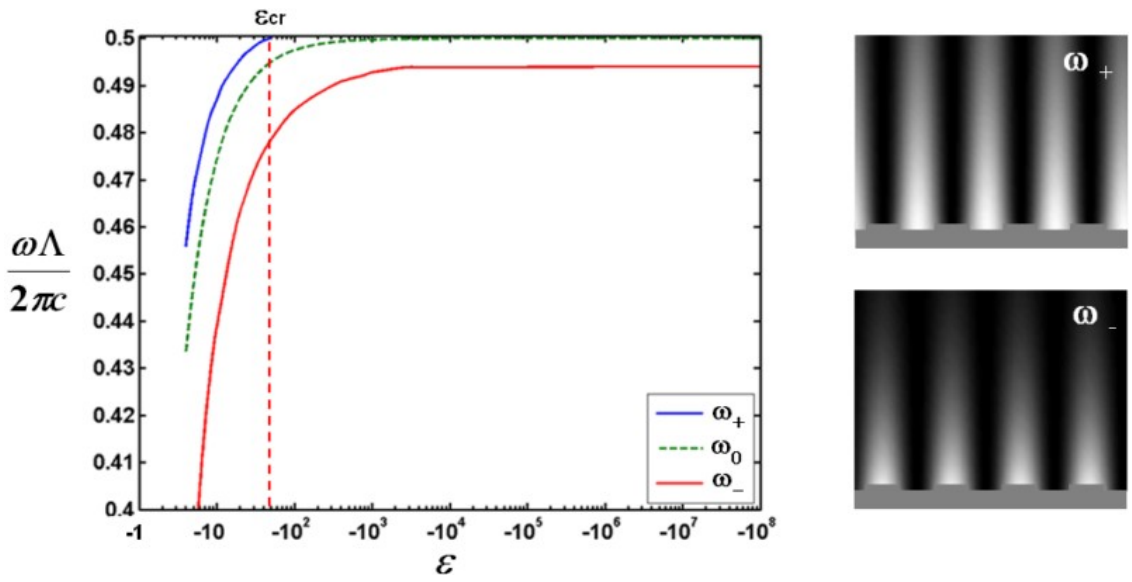


FIGURE 2.11 – Dispersion des fréquences du bord de la 1ère zone de Brillouin en fonction de la permittivité du métal pour un réseau lamellaire de période Λ et profondeur 0.12Λ. La dispersion d'un plasmon sur une surface plane est représentée en pointillés.

Pour construire ce réseau nous considérons deux composantes périodiques d'un réseau analogique infini. La première est une composante de période égale à la longueur d'onde incidente. Par son intermédiaire, il a été montré précédemment qu'une onde plane en incidence normale est couplée aux ondes de surface au voisinage du cône de lumière. Étant donné le rôle de cette composante, elle sera appelée au cours de notre exposé la composante de "couplage" ou de "diffraction". En additionnant à cette première composante, une seconde composante d'une période deux fois plus petite, on ouvre une BIP au voisinage de ces états excités. Cette périodicité respecte la loi de diffraction de Bragg et sera donc appelée la composante de "Bragg". Il est ainsi possible d'obtenir un couplage aux ondes lentes à la surface du réseau bi-périodique résultant de l'addition des deux composantes. La situation globale est synthétisée dans le graphe replié de la figure 2.12. Dans cette représentation une BIP est ouverte dans la relation de dispersion des ondes de surface à la fréquence spatiale $2K$. La composante de diffraction engendre ensuite un repliement à la fréquence K qui autorise le couplage en incidence normale avec les fréquences de bord de bande.

L'addition des deux composantes peut être écrite telle que :

$$s\,(x) = a_1 sin(Kx) + a_2 sin(2Kx + \phi)$$

avec a_i l'amplitude de la composante i et ϕ le déphasage entre les deux composantes. En utilisant cette formulation, Barnes et al. ont montré que l'expression de la composante normale du champ électrique pouvait alors se mettre sous la forme analytique suivante pour les modes ω_+ et ω_- :

$$E_y^{\pm} = sin\,(Kx + \phi/2 \pm \pi/4) \tag{2.9}$$

Dans cette étude, seul le couplage au mode de la bande de valence ω_- sera envisagé. En effet, d'après la permittivité de l'or à 1.55µm ($\epsilon_{Au} = -131.95 + 12.65i$ [23]) et la dispersion des fréquences en bord de bande illustrée sur le graphe 2.11, le régime de cette étude se situe au delà de ϵ_{cr}) (les profondeurs explorées dans cette étude seront supérieures à 0.12Λ).

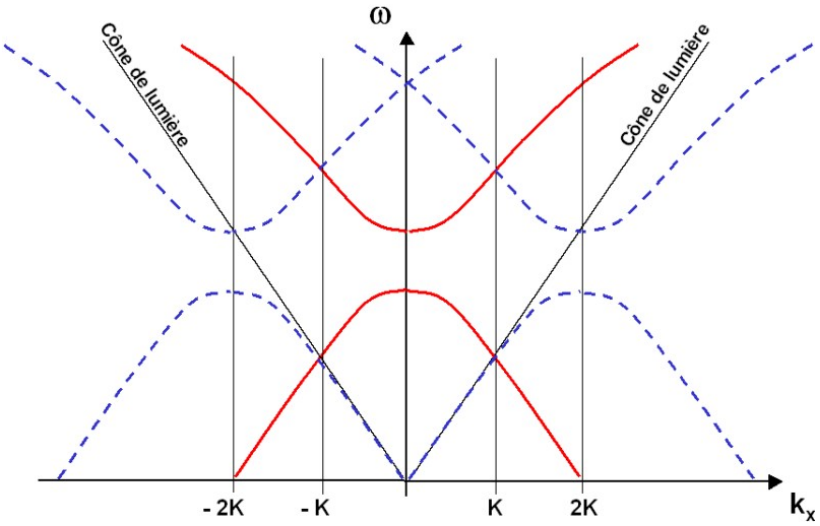


FIGURE 2.12 – Représentation de la dispersion des ondes de surface avec le repliement sur les composantes K et $2K$ (ligne 1 : composante de couplage en ligne pointillée et composante de Bragg en ligne continue)

D'après l'équation 2.9, pour maximiser l'intensité de ce mode à la surface des créneaux du réseau, il est nécessaire d'imposer le déphasage $\phi = \pi/2$. Cela correspond à l'alignement présenté sur la figure 2.13. Cet alignement permet d'aligner les extrema du gradient de la composante de diffraction avec les maxima de la composante de Bragg. Les forts gradients permettent ainsi d'obtenir une projection maximale du champ électrique incident selon Oy à l'endroit où la densité de charge du mode ω_- est maximale.

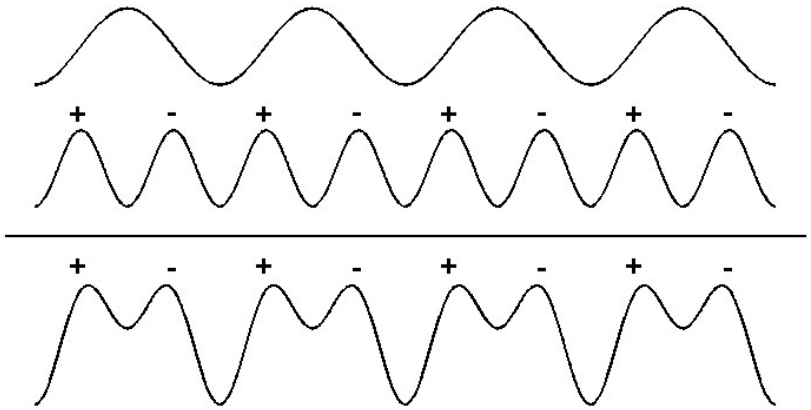
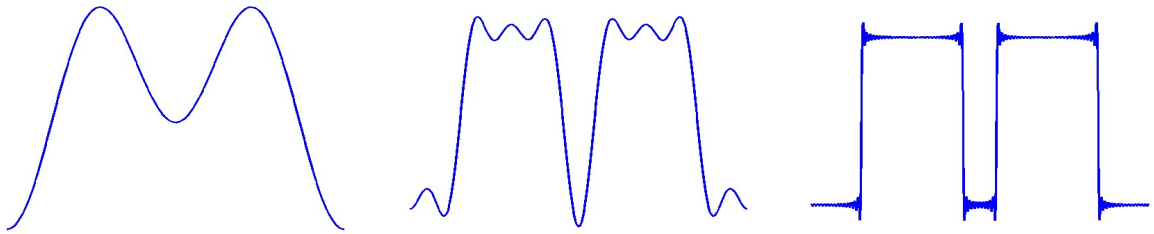


FIGURE 2.13 – Alignement des composantes de couplage et de Bragg pour l'excitation du mode ω_-

2.2.6.2 La simplification lamellaire du profil

Le profil du réseau de la figure 2.13 présente une variation continue de la surface. La fabrication une telle structure est usuellement envisagée dans le régime optique où elle est obtenue par projection de motifs d'interférentiels sur des résines photosensibles UV. Néanmoins, dans l'infrarouge, il n'existe pas de technique analogue pour obtenir ces profils continus. Dans ce travail, nous envisagerons donc les profils dit binaires ou lamellaires qui sont plus simples à réaliser notamment grâce aux techniques de lithographie électronique.

Mais la décomposition d'un profil lamellaire en série de Fourier nécessite de prendre en compte un nombre infini d'harmoniques spatiales. Il est donc nécessaire d'imposer certaines contraintes à cette série de Fourier afin qu'une équivalence puisse avoir lieu avec le profil analogique. Pour illustrer le propos, prenons comme exemple la structure de la figure 2.13. Pour préserver les propriétés fondamentales de ce réseau, il est nécessaire de maintenir la condition $\phi = \pi/2$ entre les deux premiers harmoniques de la série. Ensuite, il est important de minimiser les harmoniques d'ordre supérieur pour éviter la perturbation des deux premières harmoniques. Une fois que cette démarche a été effectuée, il devient alors possible de tendre vers le motif présenté sur la figure 2.14 en utilisant les 100 premiers termes de la série retenue. Le profil prend alors une forme binaire qui sera exploitable du point de vue de la fabrication des structures. Sans conséquence sur notre approche, il est intéressant de remarquer l'apparition d'un phénomène de ressaut, connu sous le nom de phénomène de Gibbs, qui se produit aux bords des créneaux.



(a) N=2 (b) N=10 (c) N=100

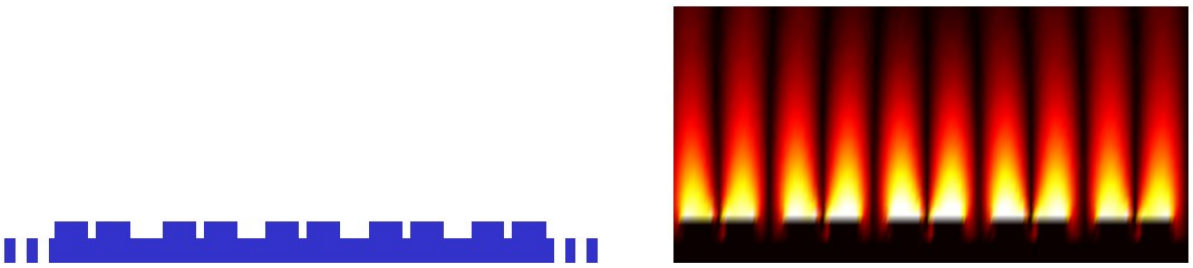
FIGURE 2.14 – Evolution du profil en fonction du nombre d'harmonique

Ce réseau intègre donc sur un seul niveau toutes les fonctionnalités précédemment discutées. Pour s'assurer de sa validité, une simulation par la méthode des différences finies dans le domaine du temps (en anglais *Finite Difference in Time Domain method = FDTD method*) a été réalisée. Le fonctionnement de cet algorithme sera présenté plus loin dans ce chapitre. Sans donner plus de détails, notons que sa formulation temporelle permet de traiter en une simulation la réponse d'un système sur un ensemble continu de fréquences. Dans le cas présent, une onde plane définie par un pulse gaussien possédant une largeur à mi-hauteur $\Delta\omega$ et centré sur ω_- a été propagée numériquement en incidence normale vers le profil métallique 2.15a. Cette simulation a permis ensuite de représenter le champ électrique normal à la surface du réseau pour le mode ω_-. Celui-ci est présenté sur la figure 2.15b où l'on peut distinguer sa répartition spatiale en conformité avec celle du mode de Bloch de bande de valence.

2.2.7 Les cavités de surface unidimensionnelles

2.2.7.1 Introduction

En utilisant les propriétés des ondes de surface, nous avons présenté une méthode pour réaliser des réseaux bipériodiques permettant le couplage d'une onde incidence à des modes lents de surface. L'énergie incidente qui est alors injectée dans un mode lent dont l'enveloppe est étendue sur l'ensemble de la cathode.



(a) structure proposée (b) simulation de la structure

FIGURE 2.15 – Excitation du mode ω_- par une onde plane en incidence normale sur un réseau lamellaire

Dans cette partie, nous allons proposer une approche permettant de concentrer cette répartition modale dans des zones précises où les nanotubes seront disposés. Les moyens pour parvenir à cette "concentration" seront présentés à travers le concept de microcavité de surface. En effet, l'utilisation d'une cavité présente un moyen intéressant d'améliorer le rapport entre le temps de vie des photons et le volume modal, menant ainsi au renforcement local du champ. Pour cela, nous traiterons d'abord des propriétés fondamentales de ces cavités avant d'en venir à la problématique du couplage avec une onde plane en incidence normale.

2.2.7.2 La cavité 1D sans couplage

Dispersion dans le gap : La structure de la cavité de surface qui va être présentée s'inspire des cavités Fabry-Pérot construites avec deux miroirs de Bragg déphasés l'un par rapport à l'autre. Ce principe est bien connu depuis les années 1970 et notamment appliqué dans les lasers DFB (en anglais Distributed FeedBack) depuis les années 1980 [24]. La compréhension des propriétés électromagnétiques des structures périodiques avec déphasage est basée sur les propriétés des ondes dans la région de la BIP. Le calcul de la dispersion des ondes de surface dans la BIP peut-être effectuée avec la méthode des ondes couplés [25] pour les milieux diélectriques périodique ou la méthode de Chandezon pour les surfaces métalliques périodique [26]. Dans le cadre de cette étude, nous avons mis en oeuvre cette méthode afin de calculer la dispersion des ondes dans la BIP pour différentes profondeurs. La figure 2.16 présente le résultat obtenu pour trois profondeurs différentes.

En se basant sur ce résultat, une représentation générale de la dispersion des ondes de surface au voisinage et dans la BIP est proposée sur la figure 2.17. Pour chaque diagramme, les 3 profondeurs de corrugation ont été envisagées ($d_1 < d_2 < d_3$) pour mesurer l'influence de ce paramètre en vu de l'étape d'optimisation.

Le diagramme de droite illustre la dispersion au voisinage de la première zone de Brillouin en fonction de la partie réelle du vecteur d'onde. Ces courbes décrivent donc une propagation sans atténuation des ondes à la surface du réseau. Comme précisée par les équations 2.5 et 2.6, la largeur de la BIP augmente et sa fréquence centrale reste constante en fonction de la profondeur de corrugation pour des réseaux peu profond.

Dans la BIP, la propagation des ondes se trouve exponentiellement atténuée dû aux

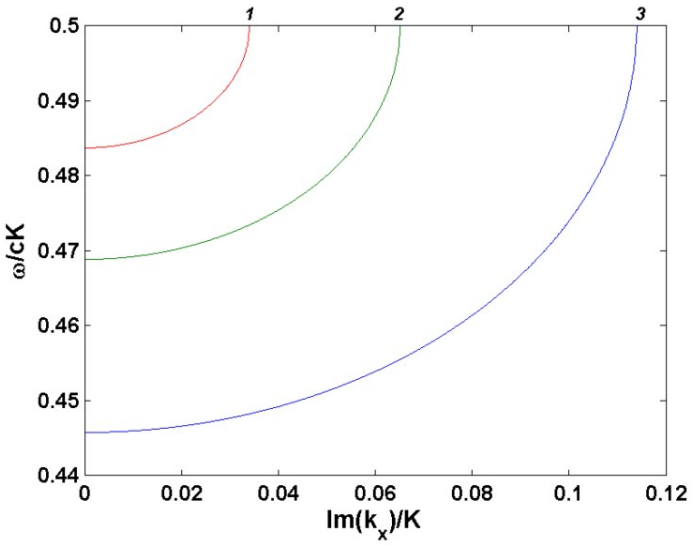
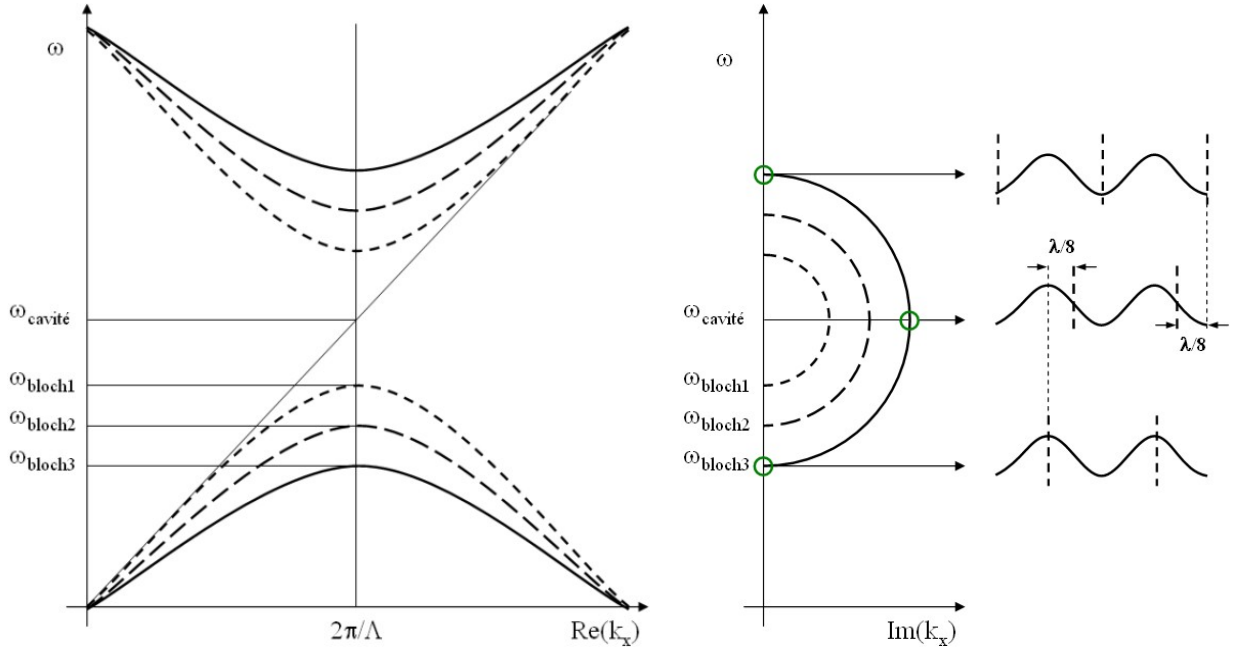


FIGURE 2.16 – Dispersion dans la BIP pour $\omega/\omega_p >> 1$ et pour les profondeurs (1) : 0.1Λ, (2) : 0.15Λ et (3) : 0.2Λ

valeurs imaginaires que prend alors le vecteur d'onde. L'allure typique de la dispersion présentée plus haut est reprise sur la figure 2.17b dans un cas général. Il est important de noter que les valeurs maximales de décroissance sont acquises au centre de la BIP. Par raccordement avec les bords de bande, ces valeurs sont d'autant plus grandes que la profondeur du réseau est importante. Cette caractéristique sera primordiale dans notre étude car elle fournit un moyen de contrôler la décroissance dans la direction de la périodicité. Ainsi, plus le réseau sera profond et plus la décroissance sera forte. Nous verrons que ce paramètre est particulièrement important pour la gestion des pertes associées au mode de cavité.

La position du profil d'intensité du champ électrique par rapport au profil du réseau est indiqué à droite de la figure 2.17b avec les lignes pointilées. Pour les deux modes de Bloch, ces répartitions modales suivent la description précédemment établie sur les propriétés des modes lents. Aussi les modes ω_- et ω_+ possèdent leur profil d'intensité respectivement en phase ($\phi = 0$) et en opposition de phase ($\phi = \pi$) avec le profil du réseau. Par symétrie, le champ électrique au milieu de la BIP possède ces maxima décalés de $\pi/2$. Comme la période du réseau correspond à la moitié de la longueur d'onde λ_0 du rayonnement incident, ce décalage correspond donc à $\lambda_0/8$.

Réalisation d'une cavité de Bragg : En s'appuyant sur les propriétés des ondes de surface dans la BIP, il est maintenant possible d'envisager la réalisation d'une cavité de surface. En effet, le comportement du réseau métallique dans la BIP est analogue à celui d'un miroir de Bragg pour les ondes de surface. Ainsi, raccordement de deux demi-réseaux permet la formation d'une cavité de Bragg pour les ondes de surface. Si nous souhaitons que le confinement du champ au centre de cette cavité soit maximum, il est nécessaire que la fréquence du mode de la cavité soit au centre de la BIP. On atteint alors la valeur maximale du vecteur d'onde imaginaire. Cela implique que les champs électriques soient déphasés de $\lambda/8$ selon deux sens opposés sur chacun des demi-réseaux. On obtient ainsi une décroissance exponentielle du champ électrique de part et d'autre du centre de la cavité sur chacun des demi-réseaux.



(a) Valeurs réelles de k_x

(b) Valeurs imaginaires de k_x

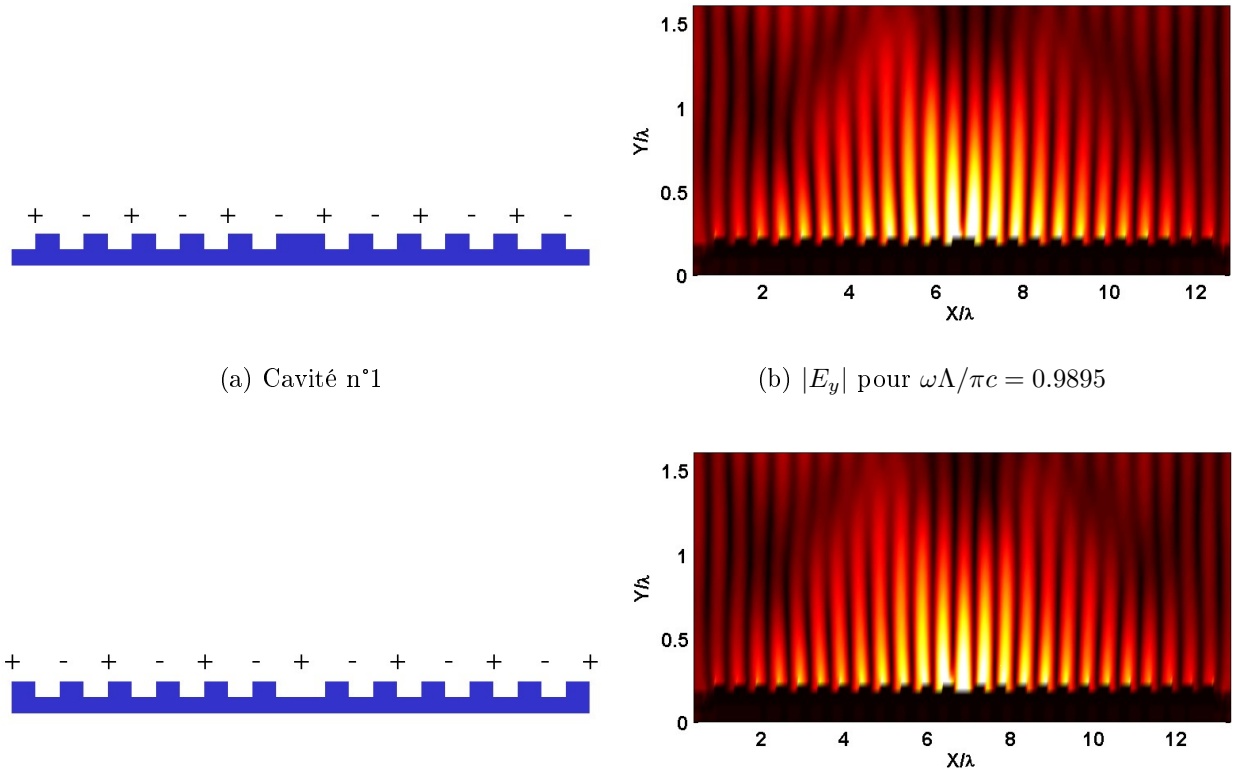
FIGURE 2.17 – Représentation de la dispersion des ondes de surface au voisinage de la BIP

Les figures 2.18a et c montrent qu'il existe deux manières d'effectuer ce raccordement. Les simulations correspondantes à ces deux réseaux sont présentées sur les figures 2.18b et d pour une profondeur de 0.05Λ. Pour ces deux simulations, l'excitation des modes localisés a été réalisée par une source ponctuelle disposée dans le champ proche du réseau. La nature commune de ces deux distributions de champ est évidemment manifeste par leur structure mais aussi par l'égalité de leur fréquence de résonance. Il est a noter qu'une caractérisation expérimentale en champ proche optique de la structure (c) a été réalisée en 2007 par Weeber et al. [27] pour différentes valeurs du déphasage central à l'aide d'un microscope à effet tunnel optique (en anglais *Photon Scanning Tunneling Microscope* = *PSTM*).

2.2.7.3 La cavité 1D avec couplage

Il est maintenant possible d'associer la cavité de surface avec un réseau de diffraction dans une approche lamellaire. La première étape de la conception consiste à considérer l'alignement permettant le couplage au mode ω_- puis à décaler le réseau de Bragg de $\lambda/8$ par rapport à sa position initiale. Cette opération est présentée sur la ligne 1 de la figure 2.19. L'addition du réseau de Bragg en décalage avec le réseau de diffraction forme alors le profil présenté sur la ligne 2. L'application de l'approche lamellaire explicitée plus haut mène ainsi au profil du réseau binaire associé qui est présenté sur la ligne 3. L'alignement entre les périodes des profils analogiques et binaires permet d'apprécier la similitude des variations de profondeur qui est caractéristique de l'alignement entre les deux premières composantes de Fourier.

Ce profil constitue un demi-réseau auquel doit être raccordé son symétrique miroir pour produire le déphasage $\lambda/4$ et assurer la continuité de la composante de diffraction. Parmi les deux réseaux (a) et (c) de la figure 2.18, seul le premier permet d'effectuer ce raccordement



(a) Cavité n°1

(b) $|E_y|$ pour $\omega\Lambda/\pi c = 0.9895$

(c) Cavité n°2

(d) $|E_y|$ pour $\omega\Lambda/\pi c = 0.9895$

FIGURE 2.18 – Présentation des raccordements compatibles avec le décalage $\lambda/8$ sur chaque demi-réseau.

de manière symétrique. En effet, lors de la conception du réseau 2.15a, il a été remarqué qu'il était nécessaire de faire correspondre les forts gradients de la composante de diffraction avec les extrema de la composante de Bragg. En respectant ce principe, il est impossible de produire un raccordement symétrique avec le profil (c). La solution avec le profil (a) est donc présentée sur la figure 2.20a. On constate que le raccord entre les deux demi-réseaux doit être choisi de façon à ce que la longueur de la zone incluant strictement les deux premiers créneaux soit égale à $\lambda/2$. Le résultat de la simulation de cette structure est présenté sur la figure 2.20b. A la différence des simulations 2.18b et d, la source d'excitation a ici été produite par une onde plane en incidente normale sur la structure pour confirmer la présence du couplage. On observe qu'un mode localisé, dont l'enveloppe est analogue aux résultats sans le réseau de couplage, est généré au niveau du défaut. La fréquence de résonance de cette structure est équivalente à celle des deux précédentes structures et prouve ainsi qu'il s'agit bien du mode attendu.

2.2.8 Conclusion

Dans cette partie, nous avons étudié la réalisation d'une structure métallique pour transférer l'énergie du faisceau laser bifréquence aux électrons des nanotubes notre cathode. Pour cela, nous avons utilisé la notion d'onde de surface dont la polarisation permet ce transfert. Nous avons alors successivement développé les concepts de couplage radiatif et de propagation sur réseau métallique périodique. Ceux-ci nous ont permis d'introduire la conception

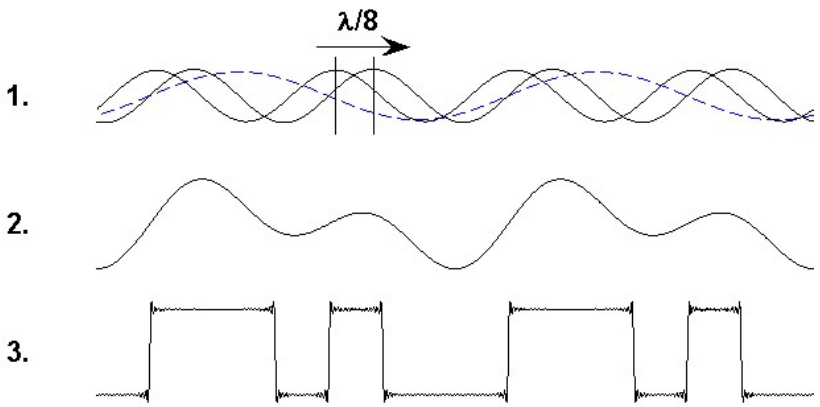
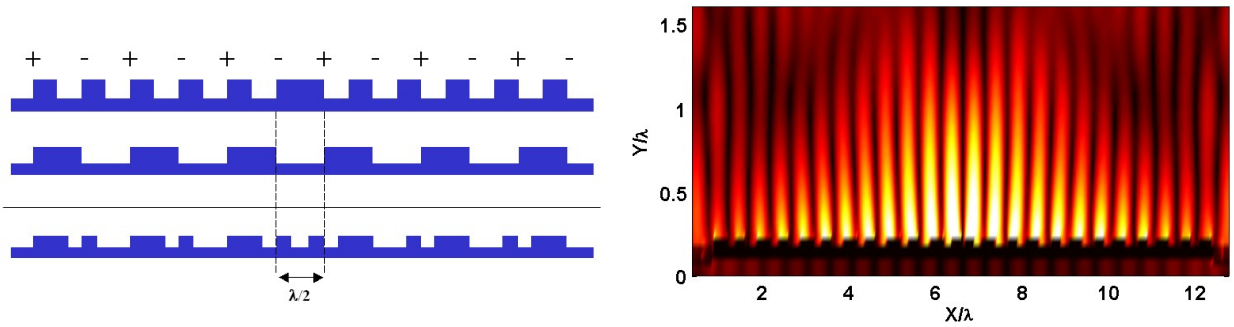


FIGURE 2.19 – Alignement des composantes de couplage et de Bragg pour l'excitation du mode de cavité : en (1) composante de diffraction en pointillées et composante de Bragg en continue avant et après le décalage, en (2) l'addition des deux premières composantes, en (3) profil binaire respectant la phase entre des deux premières composantes présentées en (2).



(a) Alignement de la composante de couplage et le profil a le la figure 2.18

(b) $|E_y|$ pour $\omega\Lambda/\pi c = 0.9895\lambda/c$

FIGURE 2.20 – Etude du profil permettant le couplage à la cavité de surface.

des structures bipériodiques lamellaire qui permettent de produire ces deux mécanismes tout en satisfaisant les contraintes des procédés de fabrication à l'échelle nanométrique.

Pour améliorer la concentration du champ électromagnétique sur ces structures, nous avons ensuite introduit la notion de cavité de surface. En analysant les propriétés fondamentales de propagation des l'ondes sur ces structures, nous avons abouti au concept de "concentrateur de surface". Celui-ci permet de coupler une onde plane en incidence normale à un mode de cavité dont l'énergie est fortement concentrée au centre de la structure.

Dans la suite de cette étude, nous allons procéder à l'optimisation numérique de cette localisation d'énergie. L'accroissement de la composante du champ électrique perpendiculaire au substrat qu'elle permet, conduira à maximiser le signal de mélange que nous souhaitons produire dans le faisceau électronique émis par la cathode THz.

2.3 Optimisation du concentrateur de surface

2.3.1 Introduction

Nous allons maintenant considérer l'optimisation de la structure qui vient d'être présentée. Dans un premier temps, la méthode numérique sera présentée dans un cas général puis dans le cas particulier de cette étude. Dans un deuxième temps, les fondements de la démarche d'optimisation seront présentés. Ils viseront à définir les mécanismes dégradant la qualité de résonance du mode de surface et à définir le facteur de mérite qui sera étudié dans la phase d'optimisation. Les résultats de l'étude paramétrique seront présentés dans une dernière partie.

2.3.2 La méthode des Différences Finies dans le Domaine du Temps

La méthode des Différences Finies Résolue en Temps (FDTD) est une méthode basée sur la décomposition des équations de Maxwell en différences finies à l'aide d'un schéma explicite. Cet algorithme est aujourd'hui largement employé pour traiter les problèmes d'électromagnétisme. Il est notamment très utilisé dans les domaines de l'optique intégré comme dans l'étude des cristaux photoniques, les matériaux plasmoniques, ...

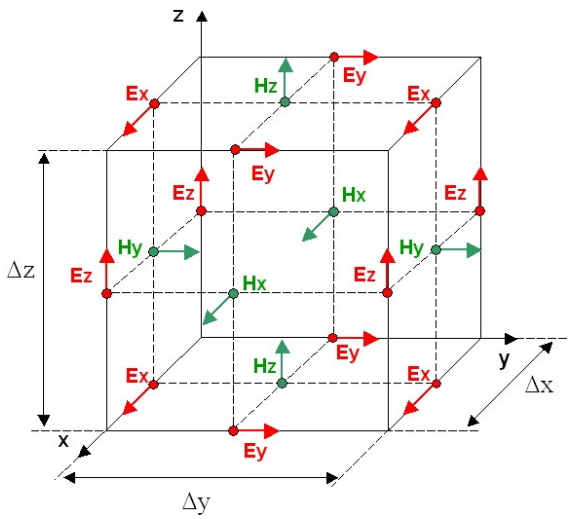


FIGURE 2.21 – Maillage de Yee utilisé dans l'algorithme de la méthode des différences finies résolues en temps

Le schéma numérique qui est utilisé dans cette méthode permet de connaître pour chaque pas temporel toutes les composantes des champs électromagnétiques de l'espace de calcul. Ceci présente un grand avantage puisque la description précise et complète de tous les phénomènes observés est alors possible. La maille unitaire de l'algorithme qui est présentée sur la figure 2.21 a été introduite en 1966 par Kane Yee. Elle se base sur un schéma de différenciation centré et précis à l'ordre deux pour les discrétisations spatiales et temporelles. Un champ électromagnétique $u(x, y, z)$ à l'instant t est représenté dans l'espace de calcul discrétisé par $u(x, y, t) = u(i\Delta x, j\Delta y, k\Delta z, n\Delta t)$ avec (i, j, k) les indices des noeuds et $(\Delta x, \Delta y, \Delta z)$ les dimensions de la maille unitaire. Le schéma numérique prend alors la forme suivante :

$$\partial u/\partial x|_{j,k,n} = \left(u^n_{i+1/2,j,k} - u^n_{i-1/2,j,k}\right)/\Delta x + O\left[(\Delta x)^2\right]$$
$$\partial u/\partial y|_{i,k,n} = \left(u^n_{i,j+1/2,k} - u^n_{i,j-1/2,k}\right)/\Delta y + O\left[(\Delta y)^2\right]$$

$$\partial u/\partial z|_{i,j,n} = \left(u^n_{i,j,k+1/2} - u^n_{i,j,k-1/2}\right)/\Delta z + O\left[(\Delta z)^2\right]$$

$$\partial u/\partial t|_{i,j,k} = \left(u^{n+1/2}_{i,j,k} - u^{n-1/2}_{i,j,k}\right)/\Delta t + O\left[(\Delta t)^2\right]$$

Ce schéma de base peut être modifié de manière à modéliser d'une grande variété de phénomènes comme le gain, l'absorption, les effets non-linéaire ou encore la dispersion. On voit que le champ électrique et le champ magnétique sont calculés en des points distincts. Comme le montre le schéma 2.21, chaque composante de **H** est calculée au milieu de deux composantes de **E**, et inversement. Cette disposition spécifique impose ainsi au maillage de respecter les contours de calculs des équations intégrales de Maxwell-Ampére et Maxwell-Faraday. Cette caractéristique est un point fort de la méthode puisqu'il permet ainsi de respecter à la fois les formes locales et macroscopiques des équations de Maxwell. Cet algorithme est stable si la condition suivante, entre le pas temporel et le pas spatial, est vérifiée :

$$\Delta t \leq 1/\left(c\sqrt{1/\Delta x^2 + 1/\Delta y^2}\right)$$

soit, si $\Delta = \Delta x = \Delta y$:

$$\Delta t \leq \Delta/\left(c\sqrt{2}\right)$$

Cette condition exprime ainsi la nécessité que le pas temporel soit suffisant pour décrire la propagation de l'onde entre deux noeuds voisins. Ainsi, le raffinement du pas spatial se traduira par une augmentation du nombre d'itérations pour décrire une durée de propagation des champs équivalente.

Bien que précise et polyvalente, cette méthode est pénalisée par la grande quantité de données qu'il est nécessaire de conserver durant des simulations qui peuvent être longues. Les progrès de l'informatique ont permis de repousser cette contrainte en améliorant les capacités de stockage et la rapidité des processeurs. Néanmoins, il reste nécessaire d'alléger au maximum les quantités de données sauvegardées et cela d'autant plus si une étude paramétrique est envisagée. L'exploitation des symétries du problème est un moyen efficace et usuel de parvenir à cela. Dans cette étude, les réseaux considérés à la surface de la cathode sont unidimensionnels et possèdent donc une dimension d'invariance. Il est ainsi possible de réduire l'espace de calcul à 2 dimensions. Par ailleurs, comme la polarisation des ondes de surface est transverse magnétique, seule la formulation des équations de Maxwell selon cette polarisation sera conservée.

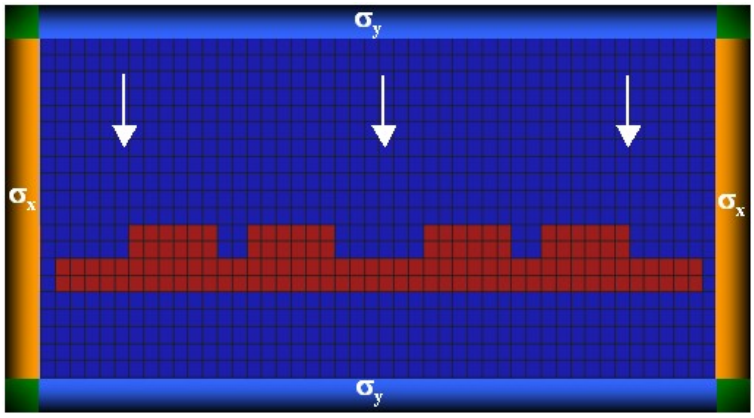


FIGURE 2.22 – Structure de l'espace de calcul

Dans cette étude, l'espace de calcul se présente typiquement comme sur la figure 2.22. Cette représentation est une cartographie de la permittivité sur laquelle on distingue le réseau métallique en rouge et le milieu environnant (le vide) en bleu. Au bord de cet espace 2D, des conditions aux limites absorbantes, σ_x et σ_y, sont fixées (en anglais PML = Perfectly Matched Layers). Cette région périphérique est constituée d'une succession de fines couches de conductivités croissances permettant une adaptation d'impédance aux ondes incidentes pour parvenir à leur absorption. Ces conditions sont très efficaces puisqu'elles permettent typiquement de descendre à des réflectivités de l'ordre de 10^{-10} sur une large gamme d'incidences et de fréquences. L'espace environnant l'objet étudié apparaît ainsi comme infini. Concernant l'excitation électromagnétique du réseau, trois flèches blanches sont reportées sur la figure 2.22 pour matérialiser l'incidence selon laquelle une onde plane sera numériquement propagée sur le réseau.

Le métal qui sera utilisé dans cette étude à 1.55µm sera de l'or dont la permittivité à cette longueur d'onde est égale à $\epsilon = -131.95 + 12.65i$. Pour connaître la valeur effective du champ sur le réseau, il sera donc nécessaire de prendre en compte le phénomène d'absorption associé à la valeur complexe de ϵ et à la légère pénétration de l'onde de surface dans le conducteur. Pour cela, nous avons considéré la description de ce métal d'après le modèle de Drude (explicité en introduction de ce chapitre) dont la formulation est établie dans le domaine fréquentiel. La méthode FDTD étant établie dans le domaine du temps, une approche temporelle a été utilisée [28] en reformulant l'induction électrique sur la base d'un produit de convolution dépendant du temps :

$$D(x,t) = \epsilon_0 E(x,t) + \epsilon_0 \int_{-\infty}^{t} \chi(\tau) E(x, t-\tau) d\tau$$

La version discrètisée de cette équation permet ensuite de reformuler la loi de Maxwell-Gauss dans l'algorithme FDTD tel que :

$$E^{n+1} = aE^n + b\nabla \times H^{n+1/2} \quad \overset{reformulation}{\rightarrow} \quad E^{n+1} = a'E^n + b'\nabla \times H^{n+1/2} + c'\phi^n$$

Avec a, a', b, b' et c' des constantes et ϕ un terme d'accumulation. Grâce à ce dernier terme, la permittivité est implicitement calculée pour chaque fréquence interagissant avec la structure. La pulsation plasma du métal étudié ω_p ainsi que la fréquence des collisions électroniques ν doit être précisé pour le calcul des constantes a à c'.

Cette modification de l'algorithme permet ainsi de prendre en compte l'évanescence de l'onde de surface dans le métal. Par conséquent, la précision de la simulation est dépendante de la densité du maillage relativement à la profondeur de pénétration de l'onde. Une évaluation de la convergence a ainsi été effectuée aux longueurs d'onde de 600nm et 1.5µm. Le nombre de points par période, nécessaire à un calcul fiable de la permittivité, a ainsi été évalué. La figure 2.23 présente ce résultat sous forme graphique. Il est intéressant de voir que pour des valeurs raisonnables du maillage 2D, par exemple 50 points par période, une précision relativement bonne est obtenue. Néanmoins, pour effectuer un calcul précis, il sera nécessaire d'investir des ressources informatiques plus importantes.

2.3.3 Identification des mécanismes de pertes

Le problème des pertes électromagnétiques à la surface du réseau est important. En identifiant précisément les différents mécanismes de perte, il sera possible d'agir sur leur cause et de définir au mieux le facteur de mérite de notre étude. La nécessité que cette identification

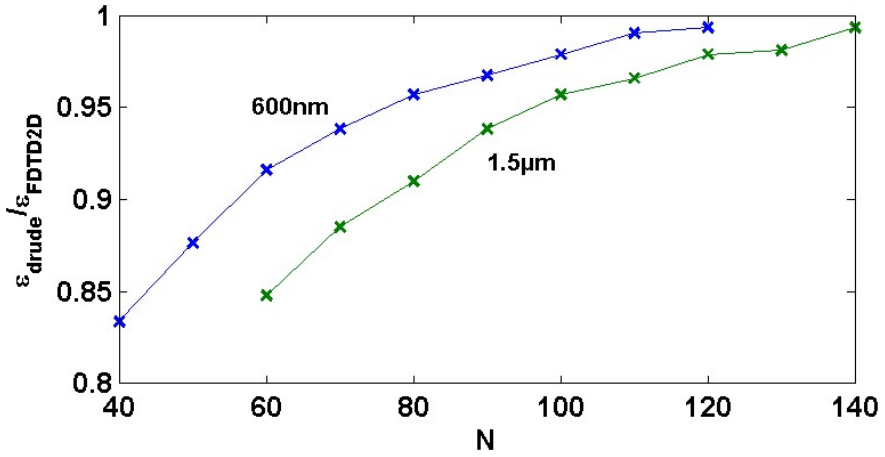


FIGURE 2.23 – Variation de la précision de l'algorithme sur le calcul de la permittivité en fonction du nombre de points par période à $\lambda_0 = 600\mu$m et $\lambda_0 = 1.5\mu$m.

soit exhaustive est importante. En effet, les pertes sont usuellement caractérisées par le facteur de qualité dont l'expression globale est liée aux facteurs de qualité particuliers (associés aux différents mécanismes de pertes) tel que :

$$\frac{1}{Q_{réel}} = \sum_i \frac{1}{Q_i}$$

Cette relation montre ainsi que toute démarche d'optimisation de cavité doit être globale. Il serait par exemple vain de réduire un mécanisme particulier si un ou plusieurs autres lui sont bien supérieurs. En regard de cette relation, nous allons maintenant établir la liste de ces différents mécanismes.

2.3.3.1 Les pertes par diffraction

Les pertes par diffraction sont dûs aux ruptures de périodicité de notre structure. Ces ruptures ont pour conséquence de favoriser l'expression locale d'harmoniques spatiales dont l'amplitude et la phase engendrent la dispersion des ondes de surface qui se propagent sur le réseau. Dans ces conditions, une onde de surface ne peut plus être caractérisée par un état strictement ponctuel (ω,k) dans l'espace réciproque mais plutôt par une certaine distribution ($\omega \pm \Delta\omega$,$k \pm \Delta k$) autour de celui-ci. Comme la courbe de dispersion des ondes de surface se situe à proximité du cône de lumière, cela engendre un couplage du champ confiné au champ rayonné. On parle alors de mode de fuite ou "leaky mode" en anglais.

La nature des ruptures de symétries sur notre réseau sont diverses. Nous pouvons mentionner tout d'abord le défaut central de la cavité ainsi que la taille finie du réseau. Les modes associés à ces deux ruptures de symétrie possèdent une extension spatiale finie et par conséquent une dispersion plus importante dans l'espace réciproque. Un équilibre existe néanmoins entre les pertes associés à ces deux ruptures. En effet, plus le mode sera localisé et moins il sera soumis aux pertes latérales au niveau des bords de la structure. Mais plus celui-ci sera localisé et plus sa dispersion dans l'espace réciproque sera importante. Ce point sera l'objet de l'optimisation que nous proposerons par la suite.

Nous pouvons également noter que les imperfections associées à la fabrication du composant induiront également une dispersion dans l'espace réciproque. Cet aspect du problème

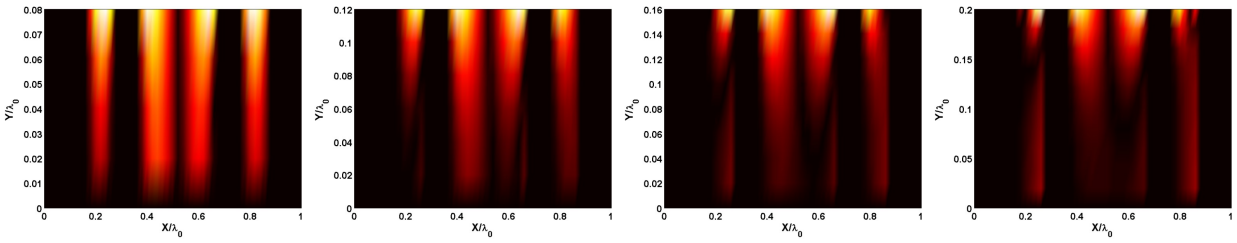
sera envisagé dans le chapitre 4 de ce manucrit. Parmi les problèmes qui seront recontrés, nous pouvons citer les rugosités d'interface, les effets de proximités associés à la technique de lithographie, ...

2.3.3.2 Les pertes par absorption

Comme précédemment évoqué, les pertes par absorption dans un métal sont proportionnelles à la partie imaginaire de la permittivité et dépendantes de la pénétration de l'onde dans le métal. Dans notre cas, ces pertes seront ainsi fortement liées à la géométrie du mode qui résonne à la surface du réseau. En exprimant analytiquement le facteur de qualité sur un réseau infini à partir de l'analyse de Barnes, il a été démontré que les pertes métalliques à la surface des réseaux métalliques peu profonds sont directement proportionnelles à la profondeur du réseau [29].

2.3.3.3 Le couplage de mode

Une source importante de perturbation des modes de surface provient du couplage avec les modes qui se développent entre les créneaux du réseau. En effet, lorsque la profondeur du réseau augmente, on observe un accroissement de l'instabilité du champ électrique entre les créneaux. Ce phénomène est illustré sur la figure 2.24 qui montre l'évolution de E_y à la fréquence du mode concentré, entre les créneaux au centre du réseau, pour des profondeurs de 0.16Λ à 0.4Λ.



(a) $h/\lambda_0 = 0.08$ (b) $h/\lambda_0 = 0.12$ (c) $h/\lambda_0 = 0.16$ (d) $h/\lambda_0 = 0.20$

FIGURE 2.24 – Cartographie du champ $|E_y|$ dans la zone du défaut et entre les créneaux pour différentes profondeurs.

Ces instabilités sont le résultat de l'expression du mode de créneau. En effet, l'espace entre deux créneaux forme une cavité rectangulaire ouverte qui offre une condition de résonance pour le champ E_y. La dispersion induite par cette cavité est dépendante de la hauteur h du réseau et de l'espace e entre créneaux. Indépendamment du couplage au mode concentré, la variation de la dispersion du mode de créneau d'ordre 1 peut se calculer simplement à partir de la dispersion des modes dans une cavité rectangulaire de largueur e et hauteur $2h$ telle que :

$$f = c\sqrt{\frac{1}{4h^2} + \frac{1}{e}}$$

L'influence de ce couplage sera d'autant plus fort que le mode d'ordre 1 sera excité. On constate ainsi qu'un maximum devrait être atteint pour $h = \lambda/4$. Cette progression est perceptible dans l'évolution présentée sur la figure 2.24 et a été constatée durant l'optimisation. Ce couplage de mode implique un transfert efficace de l'énergie du mode concentré vers le mode de créneau. On assiste alors à une localisation très proche de la surface de l'énergie comprise dans l'enveloppe du mode de surface. L'apparition d'un tel régime ne parait donc pas souhaitable. Cela sera démontré durant la phase d'optimisation qui va suivre.

2.3.4 Optimisation du concentrateur

Une étape préliminaire à l'optimisation d'un système consiste à définir un facteur de mérite qui permettra de quantifier le bénéfice associé à la variation d'un ou plusieurs paramètres. Dans cette étude, l'objectif est de parvenir à augmenter la composante normale à la surface du champ électrique au centre du concentrateur de surface, à l'endroit où le nanotube de carbone sera disposé. Une méthode usuelle pour quantifier cette mesure dans les microcavités est de considérer le rapport du facteur de qualité Q sur le volume modal V. On mesure ainsi le temps de vie des photons relativement à un certain volume modal donné. Néanmoins, il a été remarqué que le mode de surface peut se coupler avec un mode de créneau, soit des parties du mode qui n'intéressent pas le couplage avec le nanotube. Pour des profondeurs proches de $\lambda_0/4$, le mode de créneau est très résonant et domine le couplage avec le mode du réseau tout en affichant un volume modal faible. Dans ce cas, le rapport Q/V du mode est grand mais il ne reflète pas une situation optimale.

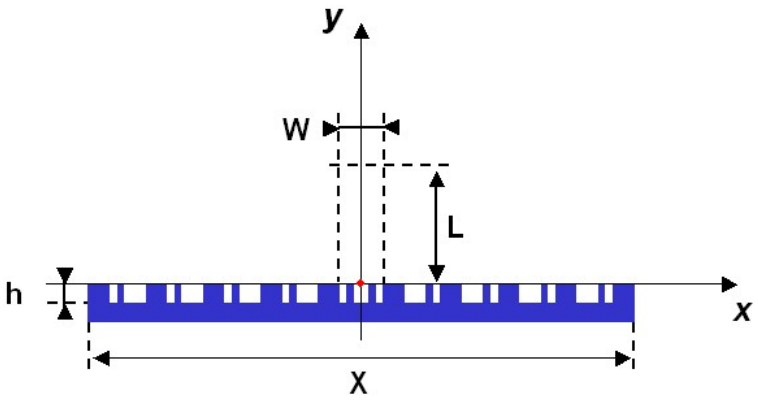


FIGURE 2.25 – Représentation du réseau et des grandeurs considérées pour le calcul du facteur de mérite

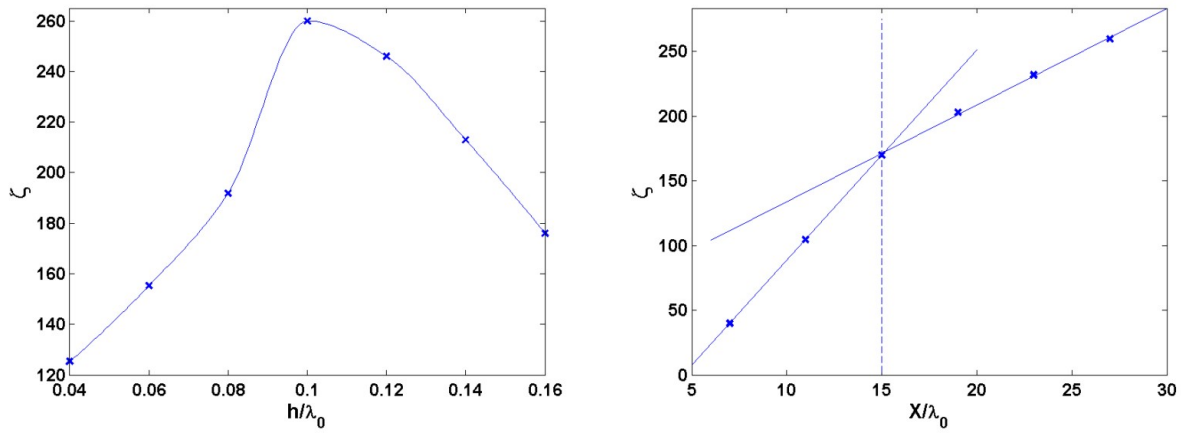
A la place de cette quantité, nous considérerons le paramètre ζ qui est défini sur le volume représenté sur la figure 2.25 :

$$\zeta(\omega) = \frac{1}{LW}\frac{1}{|E_i(\omega)|^2}\int_{-W/2}^{+W/2}\int_0^L |E_y(\omega)|^2\, dxdy$$

Avec W et L les dimensions définies sur la figure 2.25, E_y le champ électrique selon Oy, E_i le champ électrique incident sur le réseau. Ce paramètre représente formellement, pour une fréquence donnée et pour la zone définie sur le schéma 2.25, le rapport entre la densité d'énergie du champ électrique normal à la surface et la densité d'énergie incidente électrique sur la structure. La maximisation de cette quantité est précisément ce qui intéresse cette étude pour l'augmentation de la composante du champ électrique au sommet du nanotube.

Au vu des précédentes remarques sur l'algorithme FDTD et afin d'alléger la procédure d'optimisation, l'étude numérique de ce facteur de mérite sera effectuée pour un métal parfaitement conducteur avec la formulation 2D en polarisation TM de l'algorithme FDTD. On rappelle que la dispersion des fréquences des modes en bord de zone de Brillouin reste faible jusqu'à la longueur d'onde de 1.55µm dans le cas de l'or (voir le calcul effectué sur la figure 2.11). Aussi, cette approche paraît raisonnable et une seule simulation en FDTD dispersive sera effectuée à la fin de la procédure d'optimisation pour tenir compte des pertes par absorption.

Il est également nécessaire de définir le ou les paramètres géométriques du réseau qui seront étudiés dans cette optimisation. Concernant le taux de remplissage de la période, celui-ci a été fixé par l'analyse de Fourier précédemment effectuée. Ainsi, les seuls paramètres géométriques restant à notre disposition sont la largeur du réseau X et sa profondeur h.



(a) Pour $X/\Lambda = 52$

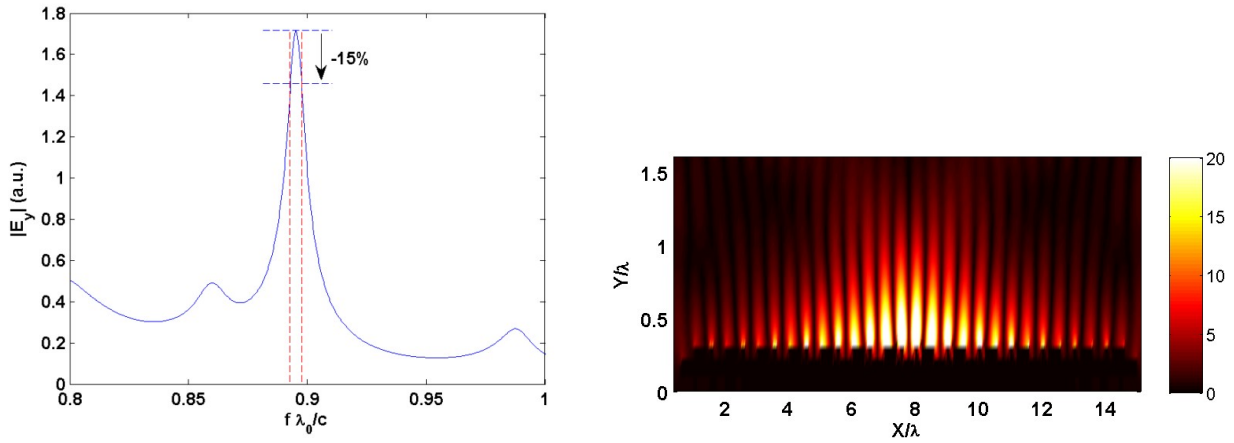
(b) Pour $h/\Lambda = 0.2$

FIGURE 2.26 – Variation de ζ en fonction de la largeur du réseau (a), en fonction de la profondeur du réseau (b) (on rappelle que $\lambda_0 = 2\Lambda$)

La profondeur est un paramètre important dont l'influence sur la distribution modale a été illustrée précédemment (voir commentaire du diagramme 2.17). L'augmentation de la profondeur du réseau doit donc permettre d'augmenter la localisation du champ au niveau du défaut. Pour analyser l'influence de ce paramètre avec une relative indépendance de la largeur du réseau, on fixe celle-ci à 52Λ. La figure 2.26a présente la variation de ζ en fonction de la profondeur. On constate que deux régimes peuvent être identifiés. Le premier jusqu'à la profondeur 0.2Λ au cours duquel l'énergie au centre de la structure augmente dû à la localisation plus importante imposée par la partie imaginaire du vecteur d'onde. Ensuite un second régime apparaît où l'énergie décroît. Celui-ci est le résultat du couplage au mode de créneau évoqué plus haut. En raison de la compétition de ces deux phénomènes un optimum de localisation apparaît à la profondeur de 0.2Λ.

La largeur du réseau est le second paramètre à étudier. Elle détermine les pertes par rayonnement sur les bords ainsi que la quantité d'énergie injectée dans le mode par diffraction. Ces deux effets sont visibles dans les deux pentes qui structurent la courbe de la figure 2.26a. Le paramètre ζ est ici étudié en fonction de la largeur du réseau pour une profondeur

de corrugation de 0.2Λ. Tant que la dimension du réseau reste plus petite que la longueur de décroissance du mode, l'augmentation de la largeur du réseau contribue à la fois à réduire le rayonnement par les bords et à collecter davantage d'énergie par diffraction. Dès lors que cette limite est atteinte, évolution de la concentration est uniquement liée à la diffraction et se poursuit sur une seconde pente plus faible. Globalement, on constate que la composante normale du champ électrique augmente de manière monotone avec la largeur du réseau.



(a) $\langle E_y \rangle_x$ fonction de $f\lambda_0/c$

(b) Cartographie $|E_y(x,y)|$ à $f = 0.896c/2\Lambda$

FIGURE 2.27 – Étude du réseau concentrateur avec l'algorithme FDTD dispersif

Cette constatation appellera à un arbitrage basé sur les performances électriques de la cathode pour déterminer la largueur. En effet, les nanotubes seront uniquement disposés sur un lobe de champ au centre de la cavité de surface. Par conséquent, l'extension latérale du réseau doit avoir une limite relative à l'affaiblissement en densité de courant qu'elle provoque sur la cathode. Dans cette étude, nous choisissons de limiter la largeur du réseau à une longueur de 14 périodes pour maintenir la densité de courant à des valeurs acceptables et limiter les effets associés au recouvrement des modes adjacents entre 2 réseaux voisins.

Maintenant que les dimensions du concentrateur de surface sont déterminées, il reste à effectuer la simulation incluant le phénomène d'absorption dans le métal à l'aide de notre modification dispersive de l'algorithme FDTD. Cette simulation nous a conduit au spectre présenté sur la figure 2.27. Les 2 lignes pointillées indiquent la largueur spectrale du laser 1THz. Il est intéressant de remarquer que la largeur spectrale du mode localisé est compatible avec le battement à 1THz de deux lasers accordés au voisinage de 1.55µm. Par ailleurs, la distribution de champ permet de dimensionner la hauteur du nanotube qui sera disposé sur une des 2 lignes de champ électrique au centre du défaut. Dans cette étude, nous avons retenu une hauteur de nanotube de 1µm. A cette hauteur, on peut noter que notre réseau engendre une facteur amplification du champ d'un facteur 10.

2.3.5 Conclusion

Dans cette partie, nous avons introduit la méthode numérique des Différentes Finies résolues dans le Domaines du Temps. Celle-ci a été utilisée pour effectuer l'optimisation

électromagnétique du réseau concentrateur. Dans le cadre de ce travail, elle a été spécifiquement modifiée pour traiter des effets d'absorption et de dispersion associés à la permittivité du métal.

En nous appuyant sur la physique de la propagation des ondes de surface sur réseau métallique périodique, nous avons optimisé le concentrateur de surface pour nos besoins. Pour cela, nous avons proposé une variable d'optimisation (paramètre ζ) et déterminé un espace des paramètres (hauteur et largeur du réseau concentrateur) pertinent pour effectuer cette étude numérique. Nous avons ainsi abouti à une structure permettant de localiser le champ électrique normal à la surface et d'amplifier celui-ci d'un facteur 10 par rapport au champ électrique de l'onde incidente. Cette évaluation est donnée sur un des lobes central du mode de cavité pour une hauteur de 1µm au-dessus de la surface du réseau.

Les concepts de champ proche que nous venons de développer doivent être validé expérimentalement. Pour y parvenir, la suite de cette étude va s'intéresser à une méthode de caractérisation en champ proche de la cavité de surface.

2.4 La caractérisation expérimentale en champ proche

2.4.1 Introduction

Nous venons d'étudier numériquement le fonctionnement du réseau concentrateur pour les besoins de la cathode THz. Nous allons maintenant nous intéresser à la validation expérimentale du concept de concentration de surface. Pour cela, nous pouvons distinguer deux approches :

- La première consiste à faire une mesure en champ lointain. Dans ce cas, un faisceau laser serait envoyé en incidence normale sur le réseau puis analysé en réflexion pour mesurer la quantité d'énergie cédée sous la forme d'ondes de surface. Cette mesure est indirecte puisqu'elle permet de connaître la réponse spectrale du réseau mais ne permet pas d'accéder aux informations sur la structure du champ proche (voir partie 4.4.4.2 du chapitre 4).
- La seconde considère la mesure du champ électromagnétique à proximité immédiate du réseau. Cela impose certaines contraintes expérimentales et notamment que le dispositif de mesure ne perturbe pas le phénomène observé. Dans ce cas la mesure est directe mais plus contraignante expérimentalement.

Dans la phase de validation dans laquelle se place notre étude, il est d'abord important de valider le champ proche du réseau concentrateur. Cela impose donc au dispositif de caractérisation de résoudre les variations de la composante du champ électrique perpendiculaire à la surface pour des dimensions inférieures à 1.55µm. Pour cela, des systèmes tels que le microscope optique de champ proche à balayage (en anglais *Scanning Near-Field Optical Microscope = SNOM*) ou le microscope à effet tunnel optique (en anglais *Photon Scanning Tunneling Microscope = PSTM*) peuvent être utilisés :

- Le SNOM met en oeuvre un émetteur de photons de taille nanométrique qui balaie la surface de l'échantillon. Les photons sont alors détectés soit en transmission, soit en réflexion. Dans ce dernier cas, la pointe sert aussi de détecteur.
- Le PSTM nécessite que l'échantillon soit déposé sur un prisme en verre pour permettre une illumination en réflexion totale interne. Une pointe nanométrique est alors déplacée au dessus de la surface de l'échantillon de façon à frustrer la réflexion totale. La pointe

du PSTM est alors utilisée comme détecteur du champ optique à proximité de la surface.

Ces dispositifs conviendraient à l'étude de notre structure. Ils ne seront cependant pas envisagés puisque nous ne disposons pas de ces appareillages dans notre laboratoire. Pour pallier à cela, nous proposons de transposer les dimensions de notre problème jusque dans la gamme des hyperfréquences. Dans ce cas, la taille du réseau concentrateur devient macroscopique et requiert une instrumentation pour la mesure du champ proche qui est à notre disposition.

Dans ce régime, la pénétration de l'onde dans le métal est de l'ordre du dixième de micron pour une longueur d'onde atteignant quelques centimètres. Ainsi, on adopte usuellement la description de métal parfait pour discuter des propriétés électromagnétiques des métaux, tel que l'aluminium ou le cuivre, dans cette gamme spectrale. On rappelle alors que l'optimisation numérique effectuée précédemment s'est appuyée sur un calcul en approximation de métal parfait. Cette approche offre donc la possibilité à la fois de confirmer la structure du mode concentré et de valider les bases de notre approche numérique.

Dans cette partie, nous présenterons le dispositif expérimental utilisé avant de s'intéresser à l'étude de deux réseaux différents. Le premier a d'abord été conçu pour valider le dispositif expérimental tandis que le second, correspondant au réseau concentrateur, a permis d'effectuer la validation du réseau concentrateur qui intéresse cette partie.

2.4.2 Description du banc expérimental

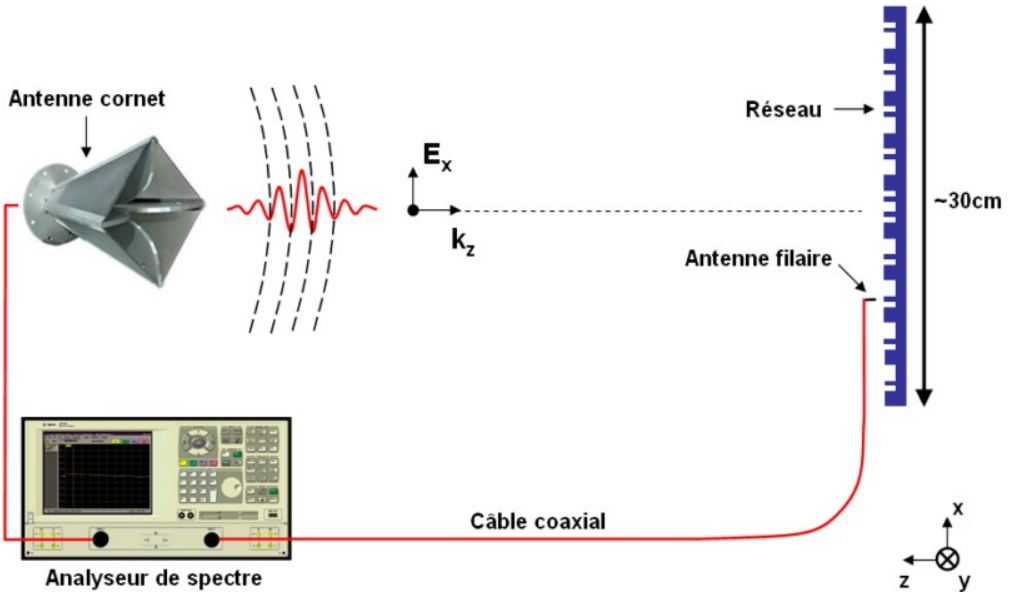


FIGURE 2.28 – Schéma du dispositif expérimental

La figure 2.28 présente le schéma du dispositif expérimental. Celui-ci est constitué d'un analyseur de spectre permettant la mesure du courant circulant dans le système. Ces deux ports sont reliés respectivement à une antenne cornet et une antenne filaire. La première antenne constitue l'antenne excitatrice et émet une impulsion électromagnétique en direction de notre réseau dont le spectre couvre la gamme spectrale entre 1GHz et 20GHz. L'utilisation de l'antenne cornet permet de former des fronts d'ondes sphériques avec une polarisation

contrôlée. En disposant cette source à 2.5m du réseau, cela nous permet d'obtenir des fronts d'ondes quasi-planaires dans la zone définie par le réseau.

La seconde antenne constitue l'antenne réceptrice et se trouve alignée perpendiculairement au plan du réseau pour détecter les courants induits par la composante du champ électrique normale à la surface métallique. Elle a été fabriquée en dénudant l'extrémité d'un câble coaxial hyperfréquence sur quelques millimètres. Le reste du câble conserve sa gaine pour permettre de guider le signal mesuré jusqu'à l'analyseur de spectre tout en évitant le couplage direct du signal incident. Le sommet de cette antenne est positionnée à quelques millimètres du réseau de manière à plonger entièrement l'antenne dans la zone de champ proche. Le bras de support qui maintient cette sonde est fixé sur une monture permettant la translation de la sonde dans les 3 directions d'espace.

2.4.3 Le champ proche sur le réseau de Bragg

2.4.3.1 Introduction

Avant de caractériser le réseau concentrateur, une première étape a été de valider notre approche expérimentale sur une structure de référence. Ainsi, cette étude considère tout d'abord le réseau lamellaire bipériodique présenté sur la figure 2.29 qui a été présenté précédemment sur la figure 2.15a. Celui-ci est composé d'une composante de couplage d'une période de 25mm associée à une composante de Bragg. Cette structure bipériodique a été réalisée en aluminium AU4G et intègre une succession de 9 motifs.

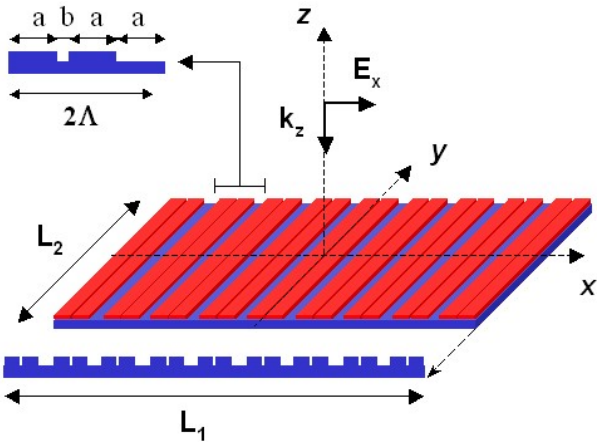
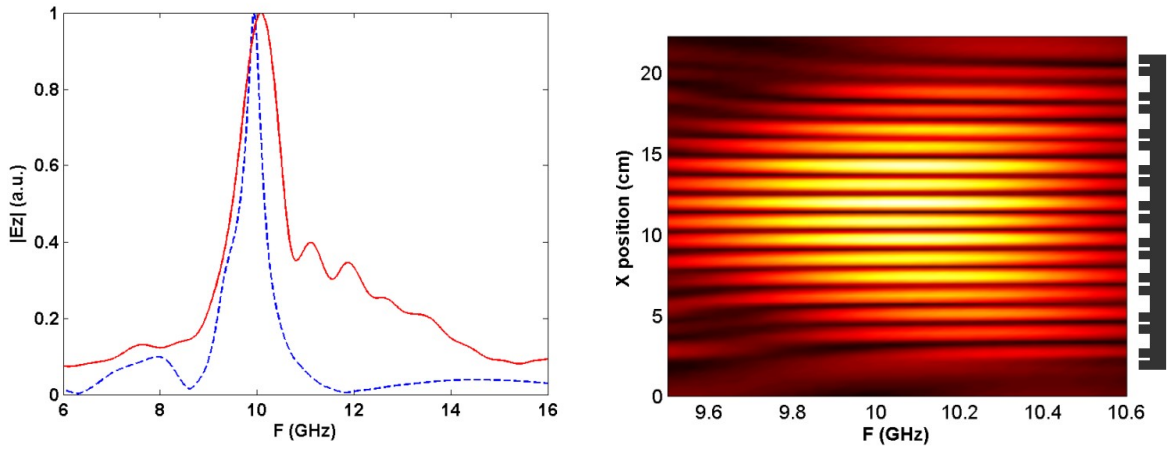


FIGURE 2.29 – Profil du premier réseau étudié avec les dimensions suivantes : Λ=12.5mm, a=0.6Λ, b=0.2Λ, h=0.3Λ, L_1=21.75cm et L_2=20cm

2.4.3.2 La cartographie des modes lents

Pour débuter l'étude des modes lents, un premier scan a été effectué dans la direction périodique selon l'axe Ox en positionnant la sonde au centre du réseau selon Oy. Le spectre moyen du signal mesuré durant le scan permet de tracer la courbe continue sur le graphe de la figure 2.30a. On remarque la présence d'un pic résonant autour de 10GHz ainsi que la présence de pics secondaires à plus haute fréquence. L'observation d'un comportement résonant pour une fréquence inférieure à 12GHz (celle du cône de lumière pour $\lambda_0 = 2\Lambda$) est un élément concordant avec le comportement du mode de bord de bande. Les données

collectées lors de ce scan permettent d'afficher la distribution de $|E_z|$ correspondant à la zone du pic central sur le graphe de la figure 2.30b. On obtient ainsi une distribution de champ possédant ces maxima sur les bords extérieurs des créneaux du motif de base. On peut constater que cette observation est en accord avec la simulation FDTD qui a précédemment été effectuée sur la figure 2.15b pour illustrer le fonctionnement de cette structure.



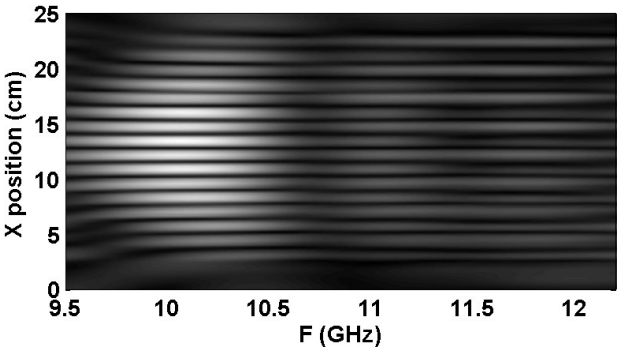
(a) Spectre moyen selon Ox de $|E_z|$

(b) Variation de $|E_z|$ en fonction de l'abscisse et de la fréquence

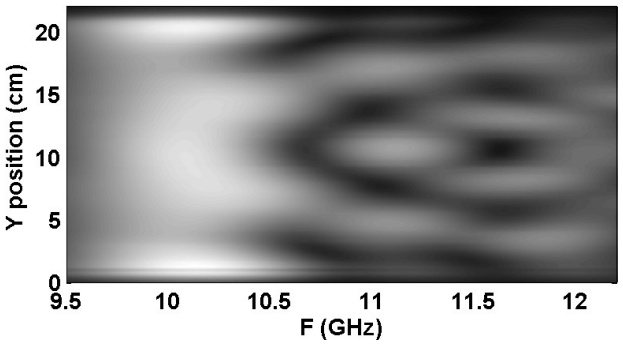
FIGURE 2.30 – Résultats du scan selon la direction périodique

Pour comprendre l'origine des pics secondaires présents sur le spectre 2.30a, il est nécessaire d'effectuer un scan dans la direction invariante selon l'axe Oy représenté sur le schéma 2.29. Pour cela, la sonde est préalablement disposée sur un maximum de champ électrique selon la direction Ox. Il est alors possible de mettre en parallèle les résultats des deux scans sur la figure 2.31 pour analyser plus en détail l'évolution de la distribution de $|E_z|$. Sur le scan (a) correspondant à la direction périodique, on distingue entre 9.5 et 10.5GHz le zoom qui a été présenté sur la figure 2.30b. On peut également remarquer la présence de maxima secondaires correspondant systématiquement à un mode de Bloch limité par une enveloppe d'ordre 1. Sur le scan (b) correspondant à la direction invariante, la présence de modes d'ordre croissant est manifeste à mesure que la fréquence augmente. Ceci caractérise le fait qu'en raison des dimensions finies de la plaque, on assiste également à un comportement résonant dans la direction invariante de la plaque. En effet, les ondes de surface se réfléchissent sur les bords de la plaque qui forment ainsi une cavité de dimension L_1 dans la direction périodique et de dimension L_2 dans la direction invariante.

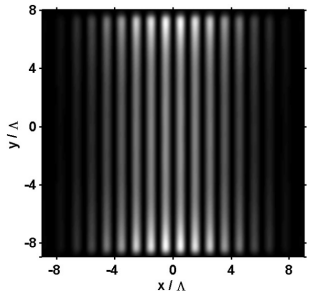
Pour confirmer la structure de ces modes à l'échelle de la plaque, une simulation FDTD avec un algorithme 3D a été effectuée. Les cartographies bidimensionnelles des 4 premiers modes résonant selon la direction invariante ont été reportées sur les figures 2.31 (c) à (f). Ce calcul confirme bien les observations effectuées sur les deux scans expérimentaux (a) et (b). Il est ainsi possible d'anticiper analytiquement la forme de ces modes à la surface de la plaque. Pour cela, on distingue les ondes qui se propagent selon Ox avec les vecteurs d'ondes $k_x = \pm\pi/\Lambda \pm n\pi/L_1$ et les ondes qui se propagent selon Oy avec les vecteurs d'ondes $k_y = \pm n\pi/L_2$. La formule globale correspondant à l'allure bidimensionnelle de ces modes



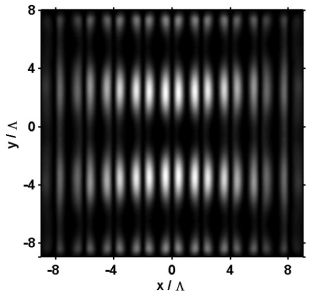
(a) Scan expérimental selon Ox



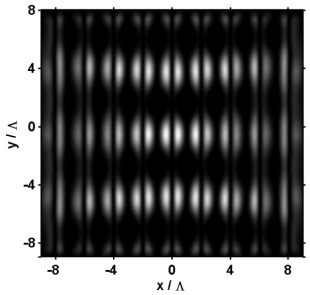
(b) Scan expérimental selon Oy



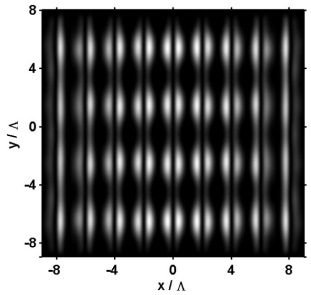
(c) f Λ/c=0.412



(d) f Λ/c=0.438



(e) f Λ/c=0.463



(f) f Λ/c=0.488

FIGURE 2.31 – (a) Mesure expérimentale du spectre de $|E_z|$ en fonction la position selon Ox, (b) Mesure expérimentale du spectre de $|E_z|$ en fonction la position selon Ox, (c) à (f) Cartographie des modes (1,1), (1,2), (1,3) et (1,4) à la surface obtenue par FDTD 3D

peut s'écrire ainsi :

$$E_z(x,y) = cos(\frac{\pi x}{\Lambda})sin(\frac{n\pi x}{L_1})sin(\frac{n\pi y}{L_2})$$

On note toutefois la présence d'effets de bord dans la direction invariante qui rendent utile le recours à la simulation 3D pour analyser plus finement la structure modale. Cette simulation permet d'exprimer la moyenne du champ électrique normal à la surface pour comparer avec celle mesurée expérimentalement. Elle est tracée en pointillés sur la figure 2.30a. On constate dans ce cas une atténuation forte des pics secondaires. Par conséquent, la présence de ces pics sur le scan expérimental traduit le fait que le front d'onde incident n'est qu'approximativement planaire. En raison de la dispersion des orientations du vecteur d'onde incident, on couple l'énergie incidente à plusieurs modes résonant à la surface du réseau. La simulation 3D aura ainsi permis de prendre en compte un phénomène se produisant dans la direction d'invariance du réseau. Par conséquent, si la démarche 2D a été considérée au cours de cette étude, notamment pour la faisabilité de l'optimisation paramétrique, elle ne doit pas faire oublier ces limites. En particulier, lorsque les problèmes étudiés ne sont pas strictement invariant.

2.4.4 Le champ proche sur le concentrateur

2.4.4.1 Introduction

Le dispositif expérimental ayant été éprouvé avec le premier réseau, nous allons maintenant nous intéresser au profil du réseau concentrateur. Pour cela, nous considérons le réseau présenté sur la figure 2.32. On notera que la largeur du réseau selon Ox est plus courte que pour le réseau résultant de l'optimisation avec 8 périodes au lieu de 14. Cette réduction en taille a été envisagée autant pour permettre la simple validation du concentrateur que pour manipuler des réseaux plus légers ($\approx$ 9kg pour un réseau de 14 périodes de profondeur 0.8Λ) avec la possibilité d'explorer des paramètres géométriques à moindre coût.

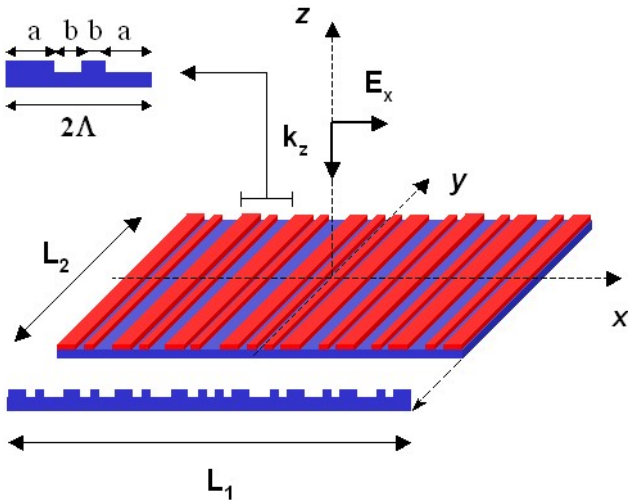
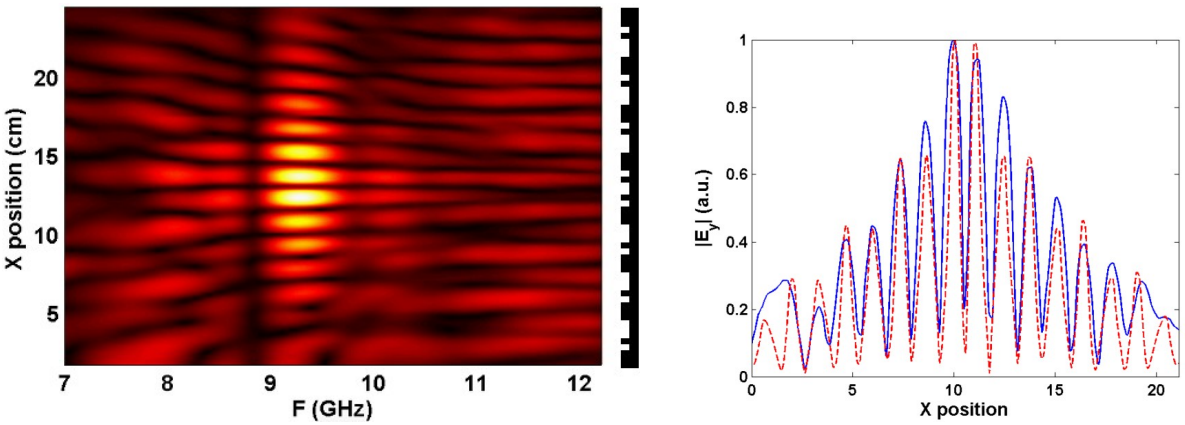


FIGURE 2.32 – Schéma de l'expérience de mesure en champ proche du concentrateur avec Λ=1.5cm, a=0.7Λ, b=0.3Λ, L1=22.5cm, L2=22.5cm

2.4.4.2 Cartographie du mode concentré

Dans un premier temps, le profil du champ électrique normal à la surface a été étudié dans le cas d'un réseau de profondeur 0.26Λ. Nous présentons sur la figure 2.33a, le résultat du scan dans la direction Ox au centre du réseau. On constate qu'une résonance s'exprime à 9.28GHz avec un mode dont l'enveloppe est localisée davantage au centre de la structure en comparaison au réseau précédent. Cette caractéristique est précisément ce qui est attendu pour le mode de cavité. La figure 2.33b illustre plus clairement le profil obtenu le long de la direction périodique. Une simulation à l'aide de l'algorithme FDTD en 2D dans le cas métal parfait a été effectuée avec les paramètres de ce réseau et nous a permis de calculer la courbe en pointillées pour la composante du champ électrique normal à la surface. On peut constater que les deux profils sont très proches moyennant une légère asymétrie du profil expérimental. Celle-ci a été remarquée dès lors que la sonde possédait un léger tilt relativement à la normale du réseau. Les fréquences de résonance expérimentales et simulées sont également très proches avec une erreur relative de l'ordre du dixième de GHz.

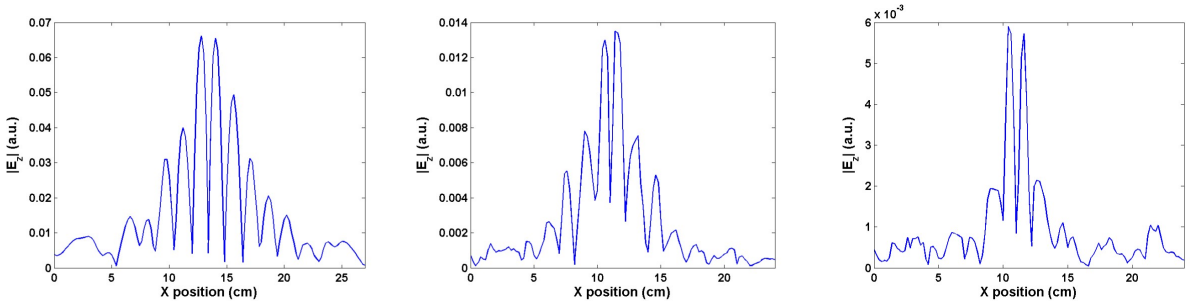
Afin de valider le comportement associé au réseau concentrateur, il est important de considérer la dépendance de la localisation du champ électrique en fonction de la profondeur de la corrugation. Pour cela, nous avons étudié les modes localisés sur 3 réseaux de plus grande profondeur : 0.34Λ, 0.42Λ et 0.82Λ. La figure 2.34 présente les scans effectués sur ces réseaux à la fréquence du mode de cavité. Il est ainsi remarquable de voir que l'on passe d'un mode relativement délocalisé sur l'ensemble de la structure dans le cas du premier réseau peu



(a) (b)

FIGURE 2.33 – (a) Mesure expérimentale du spectre de $|E_z|$ en fonction la position selon Ox. (b) Enveloppe du mode à f=9.28GHz (ligne continue : mesure, ligne pointillée : simulation FDTD2D)

profond à un mode qui s'exprime uniquement sur 2 périodes dans le cas de la plus grande profondeur explorée. L'effet de localisation associé à l'accroissement de la partie imaginaire de k_x en fonction de la profondeur est donc clairement mis en évidence par le biais cette expérience.



(a) 0.34Λ (b) 0.42Λ (c) 0.82Λ

FIGURE 2.34 – Enveloppe du mode de défaut pour différentes profondeurs explorées

Par ailleurs, il est intéressant de remarquer que le niveau de signal du champ électrique mesuré suit une dépendance associée à l'expression des différents mécanismes de pertes sur le réseau. Entre le premier réseau et les deux suivants, on constate que l'intensité du signal mesuré augmente par le fait que la localisation du champ au centre de la structure permet de réduire les pertes par rayonnement au niveau des bords du réseau. Ensuite on assiste à la réduction progressive de l'intensité du champ jusqu'au dernier réseau par le fait que l'on couple fortement l'énergie du mode localisé avec celle d'un mode de créneau.

Pour témoigner de ce couplage, nous considérons le graphe de la figure 2.35 dans lequel nous avons représenté la dispersion fréquentielle du concentrateur en fonction de la profondeur (courbe inférieure). Dans cette caractéristique, la ligne continue est le résultat d'un calcul effectué par la méthode FDTD 2D tandis que les 5 points représentent les fréquences relevées expérimentalement (une mesure à 0.16Λ a été ajoutée pour préciser l'analyse). On

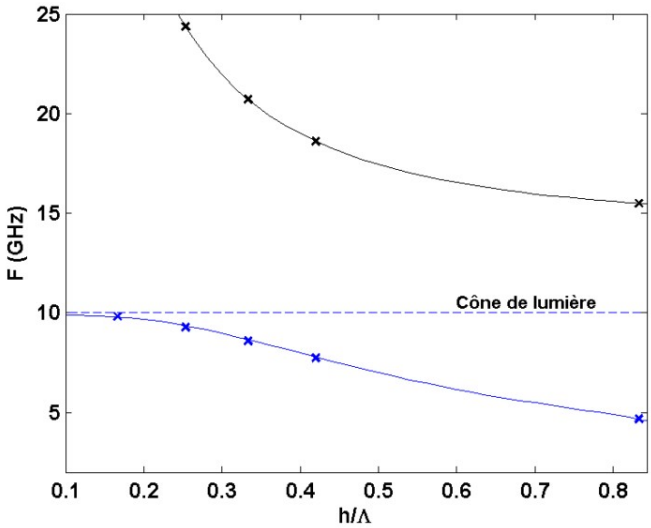


FIGURE 2.35 – Courbe inférieure : dispersion fréquentielle pour les différentes profondeurs explorées (ligne continue : simulation, croix : valeurs mesurées). Courbe supérieure : dispersion fréquentielle pour le mode de créneau avec $e = 0.7\Lambda$

note tout d'abord un bon accord entre les valeurs simulées et les valeurs expérimentales confirmant ainsi la pertinence de la méthode 2D pour la simulation du concentrateur. Ensuite, on constate que la fréquence est décroissante avec la profondeur du réseau. Le régime des fortes profondeurs ayant été précédemment associé à l'émergence des modes de créneaux, nous représentons également sur la figure 2.35 la dispersion du mode de créneau (courbe supérieure) correspondant à une largeur de créneau de 0.7Λ. On remarque que la variation de la dispersion des deux courbes suit une dépendance analogue indiquant que l'origine de cette décroissance peut vraisemblablement être attribuée au couplage du mode localisé avec le mode de créneau.

2.4.5 Conclusion

Dans cette partie, nous avons étudié la caractérisation en champ proche du concept de concentrateur de surface. Pour cela, nous avons utilisé les propriétés des ondes de surface afin de transposer le fonctionnement de notre réseau dans la gamme hyperfréquence. Ceci nous a conduit à la conception d'un banc expérimental permettant de cartographier les modes de champ proche des surfaces métalliques.

Nous avons d'abord validé ce dispositif par l'étude d'un réseau bipériodique. Ce premier test nous a permis d'apprécier la bonne correspondance entre les images expérimentales et numériques des modes étudiés. Il aura également mis en évidence les phénomènes pouvant intervenir dans la dimension d'invariance de notre problème. A la suite de cette caractérisation, nous avons effectué l'étude du réseau concentrateur. Les cartographies relevées se sont alors révélées en accord avec nos simulations (fréquence, structure modale) et notre compréhension de la physique de ce réseau (évolution fréquentielle avec profondeur créneau).

Cette étude expérimentale a permis de valider notre approche du réseau concentrateur. Elle est donc prometteuse pour la suite de l'étude mais ne doit pas faire oublier ces limites. Par exemple, celle-ci ne prend pas en compte la perturbation du mode de surface par la présence d'un nanotube.

2.5 Le concentrateur bidimensionnel

2.5.1 Introduction

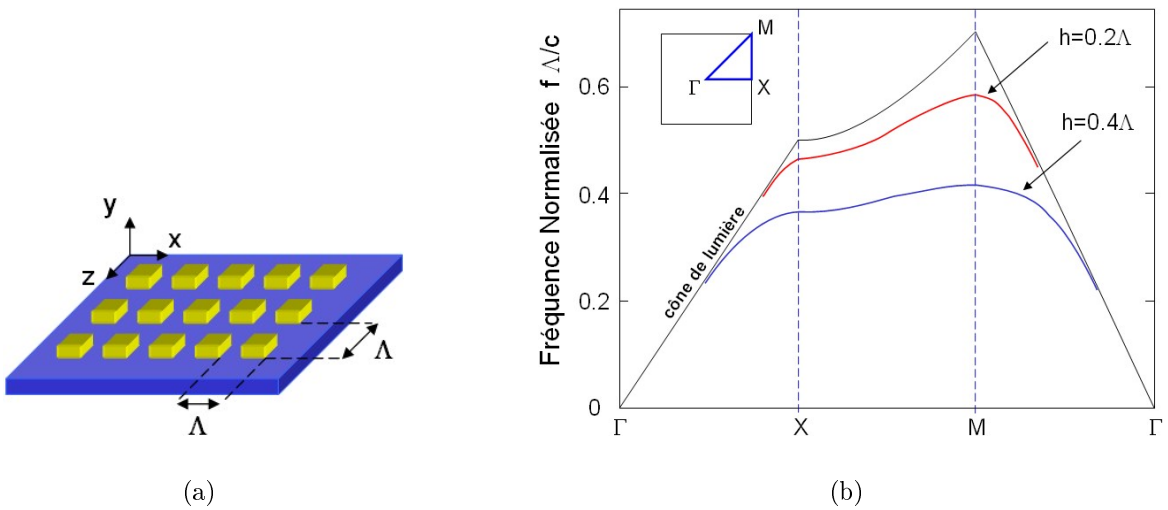
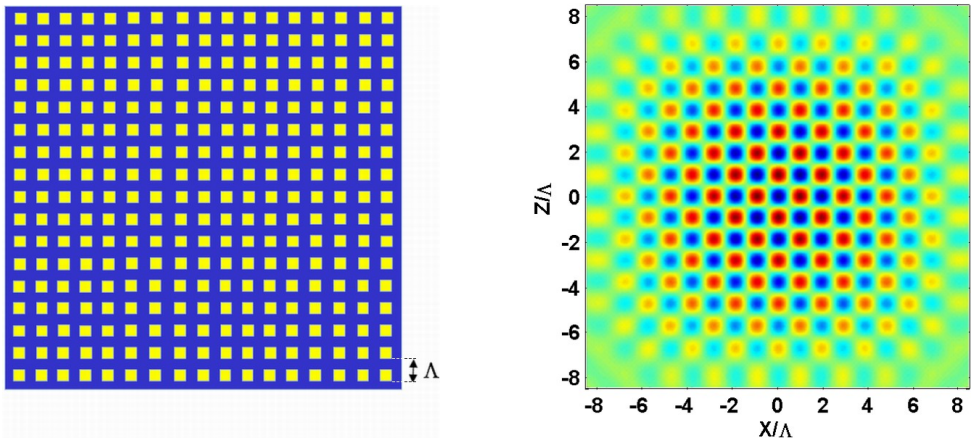


FIGURE 2.36 – (a)Présentation de la structure 2D considérée. (b)Dispersion dans l'espace réciproque de cette structure dans la première zone de Brillouin d'après Plouin et al. [30].

La fabrication de la cathode THz s'appuiera sur le concentrateur de surface 1D. Cependant, dans la perspective d'accroître l'amplification du champ électrique au voisinage du nanotube, nous avons également étudié la possibilité de réaliser une concentration du champ proche en 2D. Cette démarche s'inscrit dans la continuité l'optimisation de la densité d'énergie électromagnétique en considérant l'augmentation du rapport entre le temps de vie du mode localisé et le volume modal. Cette nouvelle approche suggère donc la transposition du concept de BIP en 2D et en particulier pour les réseaux parfaitement métallique. Si cette propriété a été illustrée par M. Qiu pour des réseaux de trous [31], nous l'étudierons pour la géométrie complémentaire présentée sur la figure 2.36a, définie par un réseau de plots périodique à maille carrée. Celui-ci possède une localisation de champ favorable à l'interaction avec les nanotubes.

L'étude des modes du champ proche sur une telle surface de dimension infinie montre une dispersion faisant apparaître une BIP dans certaines directions de propagation du plan [30]. Celle-ci est représentée dans la première zone de Brillouin 2D sur la figure 2.36b pour deux profondeurs différentes. De la même manière que dans le cas 1D, on constate que la BIP engendrée par la périodicité du réseau est d'autant plus importante que la profondeur de la structuration est importante. Toutefois, à la différence du cas unidimensionnel, le bord de bande se situe au point M dans l'espace réciproque et correspond donc à des vecteurs d'onde de module $\sqrt{2}\pi/\Lambda$ alignés selon les diagonales du réseau.

En utilisant l'algorithme 3D de la méthode FDTD, il est possible de calculer en ce point spécifique l'enveloppe du champ électrique normal à la surface pour le mode de Bloch d'ordre 1. Celui-ci est représenté sur la figure 2.37 avec le dessin de la structure simulée (a) et la cartographie du champ (b). On constate ainsi que la distribution spécifique des extrema du champ est en accord avec la symétrie associée à la propagation des ondes de surface au point M. Ce mode correspond donc bien à l'interférence constructive des ondes qui se propagent



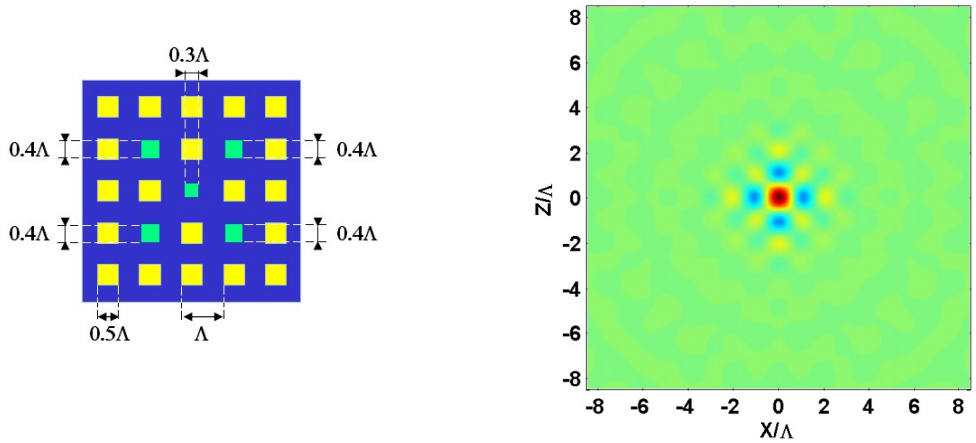
(a) (b)

FIGURE 2.37 – (a) Réseau 2D périodique considéré dans la simulation avec h=0.2Λ. (b) Cartographie du champ $E_y(x, z)$ au point M à la surface du réseau

selon les deux diagonales du réseau.

Depuis cette configuration, il est possible d'obtenir des modes localisés du champ en exploitant la présence de la BIP. Pour cela et de manière équivalente au cas unidimensionnel, il est nécessaire d'introduire un défaut dans la périodicité du réseau afin de permettre l'existence d'états dans la BIP. Dans le cas du concentrateur 1D, de tels modes ont été obtenus en générant une dislocation au centre de la structure. La réalisation de cette opération n'est pas aisée pour les périodicités bidimensionnelles et fera préférer les défauts générés par substitution. Par exemple, on pourra considérer la suppression d'un plot métallique afin de remplacer celui-ci par l'indice du milieu extérieur au réseau. De précédents travaux, effectuées par Stabellini et al. [32], ont étudié cette problématique et montré qu'une optimisation de la substitution pouvait mener à des modes localisés possédant des facteurs de qualité très importants. Dans ce cas, l'approche se base sur une modification à la fois localisée et progressive du profil périodique, par analogie avec des approches réalisées dans les cristaux photoniques ayant menées à l'obtention de valeurs théorique records $Q \approx 20.10^6$ [33, 34]. La modification géométrique présentée sur la figure 2.38a a ainsi été effectuée au centre du réseau 2.37a. Elle a conduit à la cartographie du champ présentée en 2.38b où l'on constate qu'une localisation importante du champ à été obtenue. Le caractère progressif du défaut introduit permet d'éviter une dispersion trop importante du vecteur d'onde et ainsi le couplage aux modes radiatif du champ. Grâce à cette optimisation le facteur de qualité de la structure présentée est de l'ordre de 2.10^5.

Au vu du rapport Q/V important associé a cette structure, il semble intéressant de concevoir son utilisation dans le cadre de notre application. Toutefois, la périodicité du réseau présentée en 2.37a n'intègre qu'une simple composante de Bragg et ne permet pas d'obtenir un couplage avec le champ radiatif. Nous allons donc détailler une approche de cette problématique dans la suite de cette partie.



(a) (b)

FIGURE 2.38 – (a) Principe de la modification géométrique opérée au centre du réseau 2D 2.37a. (b) Cartographie du champ $E_y(x, z)$ pour la fréquence du mode localisé à la surface du réseau de Bragg modifié

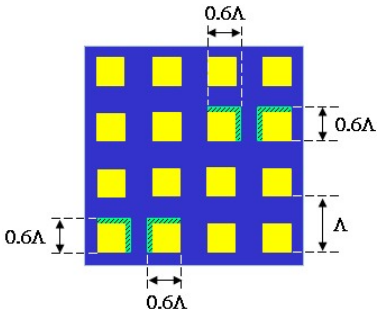
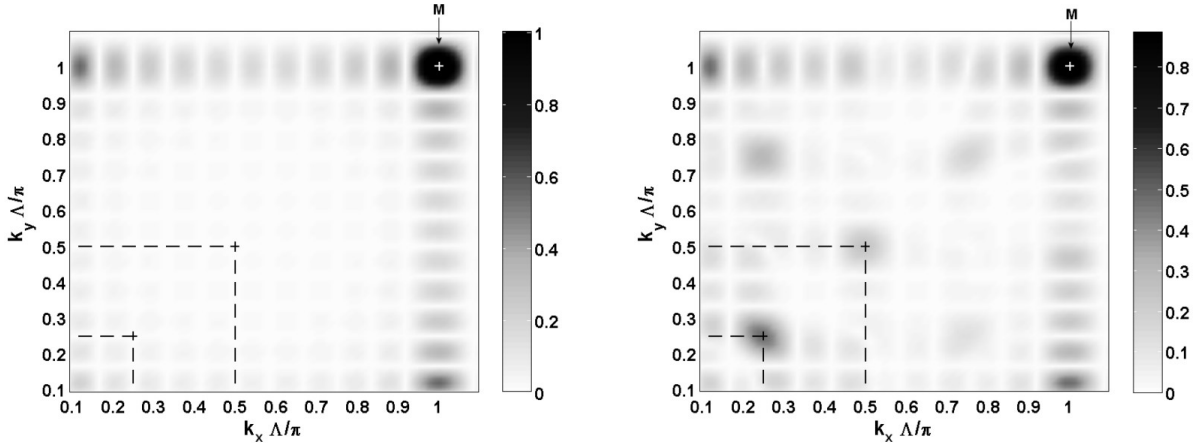


FIGURE 2.39 – Modification du réseau de Bragg 2d permettant l'insertion d'une composante de couplage.

2.5.2 Introduction de la composante de couplage

Pour obtenir le couplage au réseau de Bragg 2D, il est nécessaire de produire un couplage en phase avec le vecteur d'onde au point M dans les deux directions diagonales. Pour insérer cette périodicité diffractive, nous choisissons une modification légère de la périodicité telle que présentée sur la figure 2.39. A l'échelle du réseau, celle-ci possède en moyenne la symétrie associée au point M avec une période de $2\sqrt{2}\Lambda$ qui est deux fois plus importante que la composante de diffraction d'ordre 1 dans cette direction. Ainsi, cette composante permet d'introduire un couplage au réseau de Bragg par son 2ème ordre diffracté. Pour analyser l'impact global de cette modification dans la première zone de brillouin, nous calculons sur la figure 2.40 l'intensité des composantes de Fourier dans l'espace réciproque pour un réseau constitué de 12x12 périodes Λ avant et après modification. Sur le réseau modifié, on observe l'apparition de la composante de diffraction d'ordre 2 en $(k_x, k_y) = (0.25, 0.25)\pi/\Lambda$ ainsi qu'une composante de diffraction d'ordre 1 $(k_x, k_y) = (0.5, 0.5)\pi/\Lambda$ d'amplitude plus faible mais également introduite par l'intermédiaire de cette modification. Elle permettra d'induire un couplage au réseau de Bragg par son premier ordre diffracté. L'intensité de ce diagramme



(a) (b)

FIGURE 2.40 – Intensité des fréquences spatiales dans la première zone de Brillouin pour un réseau de 12x12 périodes (a) avant modification (b) après modification

a été normalisée par l'intensité de la composante de Bragg non modifiée. On constate ainsi que l'intensité de la composante au point M est très faiblement perturbée. Ainsi, au point M cette modification géométrique permet d'introduire un couplage au champ radiatif tout en perturbant très légèrement la périodicité sur laquelle se développe les modes de Bloch.

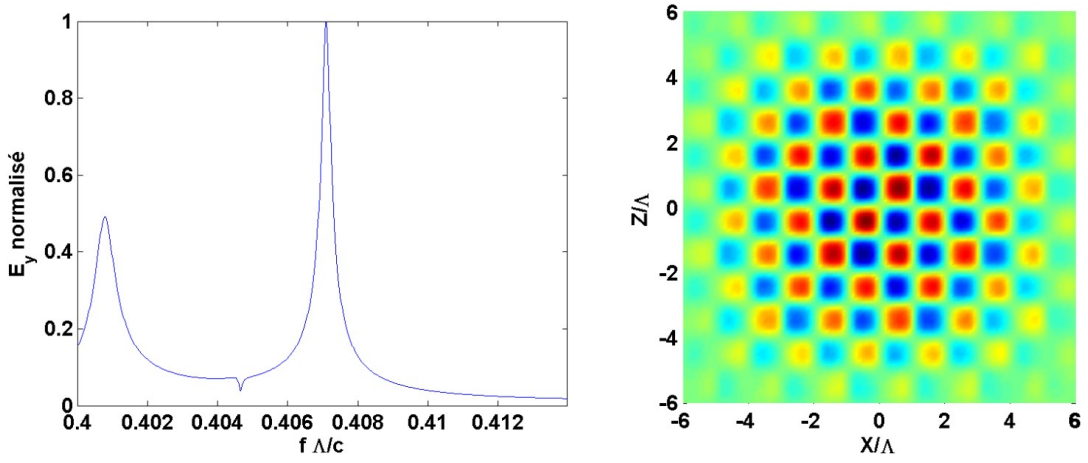
Une simulation FDTD 3D a été effectuée pour évaluer la réponse électromagnétique de cette structure. Pour cela, une structure de 12x12 périodes Λ avec une de profondeur de $h = 0.4\Lambda$ a été considérée. L'excitation est réalisée en incidence normale avec un pulse gaussien de largeur à mis hauteur $\Delta f/f_0 = 1$ et centré à la fréquence du mode M. Le spectre moyen de E_y à la surface du réseau est présenté sur la figure 2.41a. On constate qu'une résonance possédant un facteur de qualité de 1000 s'exprime à la surface du réseau à la fréquence à laquelle, d'après la figure 2.36b, le mode de point M est attendu. En analysant la cartographie 2D correspondante en 2.41b, on constate que la symétrie de celle-ci correspond bien à celle du mode de point M.

Néanmoins, il est a noter que le motif introduit ne possède pas exactement toutes les symétrie de rotation associées au point M et implique donc que ce réseau soit sensible à la polarisation. En conséquence, seule une polarisation incidente orientée selon Oz permet d'exciter efficacement le mode de surface au point M sur ce réseau.

2.5.3 Le concentrateur 2D

Nous allons maintenant considérer l'introduction du défaut qui a été présenté sur la figure 2.37a. Au vu de la géométrie du défaut, il est possible de réaliser sont insertion sur le réseau sans pour autant perturber la composante de couplage que nous avons introduite précédemment. Le résultat de cette opération est présenté sur la figure 2.42 avec le dessin de la cellule centrale du réseau.

En conservant les paramètres du précédent réseau 2D, nous avons simulé le champ proche du réseau avec ce nouveau design. La figure 2.43a présente en particulier le spectre moyen de E_y sur lequel on peut voir qu'un mode avec un facteur de qualité de 300 a été excité à une fréquence légèrement supérieure au mode de point M. Cette fréquence se situe donc



(a) (b)

FIGURE 2.41 – (a) Spectre moyen de E_y à la surface du réseau. (b) Cartographie de E_y à la surface du réseau pour f=0.4071 c/Λ

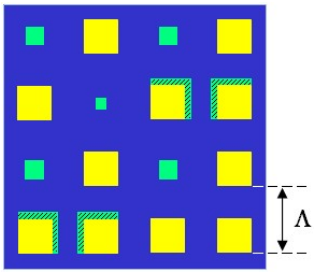


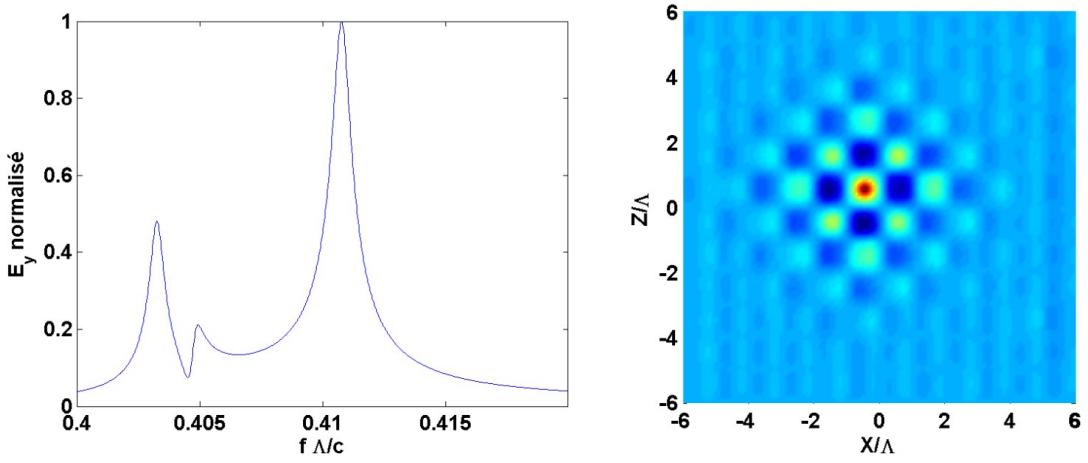
FIGURE 2.42 – Schéma de l'expérience de mesure en champ proche

comme attendu dans la BIP du réseau. L'excitation du mode localisé est confirmée avec la cartographie du champ normal à la surface présentée sur la figure 2.43b. On constate que le champ électrique a été fortement confiné au centre de la structure et notamment sur le plot au niveau du défaut central sur lequel l'implantation d'un nanotube de carbone pourrait être réalisée.

Il est clair que, dû à la modification relativement importante de la structure, il n'est plus possible d'atteindre des facteur de qualité aussi importants que dans le cas non perturbé. Néanmoins, cette configuration permet d'aboutir à une cavité de surface possédant un facteur de qualité plus important que dans le cas unidimensionnel pour un volume modal plus faible. Aussi, sans que le facteur d'amlpification du champ électrique au centre de la cavité n'ai été calculé dans cette approche prospective, il est certain qu'un gain appréciable est à attendre de cette configuration.

2.5.4 Conclusion

Dans cette dernière partie, le concept du concentrateur de surface a été exploré jusque dans le cas bidimensionnel. En nous appuyant sur une précédente étude de notre laboratoire, nous avons apporté une solution au couplage radiatif avec les modes lents bidimensionnels. Notre étude a ainsi montré qu'un couplage avec les modes de point M était envisageable au prix d'une légère modification de la périodicité.



(a) (b)

FIGURE 2.43 – (a) Spectre moyen de E_y à la surface du réseau. (b) Cartographie de E_y à la surface du réseau pour f=0.4108 c/Λ

En intégrant cette modification dans la périodicité d'une cavité 2D, nous sommes parvenus à la conception d'un concentrateur 2D. Le facteur de qualité ainsi que le volume du mode concentré permettent envisager des performances accrûes par rapport à l'approche unidimensionnelle.

2.6 Conclusion

Ce chapitre nous a permis de présenter la Physique des ondes de surface sur des surfaces périodiquement structurées, ceci dans le but d'élaborer un dispositif de couplage sur la cathode THz. Le concept de "concentrateur de surface" a ainsi été développé puis optimisé. Ce réseau permet de coupler une onde plane en incidence normale à un mode de cavité dont le champ électrique normal à la surface est fortement localisé au centre de la structure. Nous sommes alors parvenus à une amplification d'un facteur 10 à une hauteur de 1µm au dessus de la zone centrale du concentrateur.

Le concept a ensuite été validé expérimentalement grâce à la conception d'une méthode d'imagerie du champ proche réalisée dans le domaine hyperfréquence. Cette technique nous a permis d'avoir accès expérimentalement à la structure des modes du champ proche. Elle a ainsi confirmé le comportement de deux structurations métalliques proposées au cours de notre présentation (réseau de Bragg avec couplage et réseau concentrateur).

Pour finir, un travail de simulation a été effectué sur des réseaux possédant deux dimensions de périodicité. Nous avons ainsi montré qu'un couplage radiatif pouvait être obtenu à la surface d'un réseau bimensionnel et pouvait permettre l'excitation d'un mode de cavité 2D. Le réseau ainsi réalisé agit à la manière qu'une lentille de focale nulle.

Le travail que nous avons réalisé sur le concentrateur de surface est une première étape vers la conception de la cathode THz. Il est maintenant nécessaire de s'intéresser aux propriétés du réseau de nanotube de carbone qui lui sera associé.

Références

[1] RW Wood. On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum. *Proceedings of the Physical Society of London*, 18 :269–275, 1902.

[2] RW Wood. Diffraction gratings with controlled groove form and abnormal distribution of intensity. *Phil. Mag*, 23(134) :310–317, 1912.

[3] U. Fano. The theory of anomalous diffraction gratings and of quasi-stationary waves on metallic surfaces (Sommerfeld's waves). *Journal of the Optical Society of America*, 31(3) :213–222, 1941.

[4] D. Pines. Collective energy losses in solids. *Reviews of modern physics*, 28(3) :184–198, 1956.

[5] U. Fano. Atomic theory of electromagnetic interactions in dense materials. *Physical Review*, 103(5) :1202–1218, 1956.

[6] RH Ritchie. Plasma losses by fast electrons in thin films. *Physical Review*, 106(5) :874–881, 1957.

[7] RH Ritchie, ET Arakawa, JJ Cowan, and RN Hamm. Surface-plasmon resonance effect in grating diffraction. *Physical Review Letters*, 21(22) :1530–1533, 1968.

[8] A. Otto. Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection. *Zeitschrift fur Physik A Hadrons and Nuclei*, 216(4) :398–410, 1968.

[9] E. Kretschmann and H. Raether. Radiative decay of nonradiative surface plasmons excited by light. *z. Naturforsch. A*, 23 :2135–2136, 1968.

[10] U. Kreibig and P. Zacharias. Surface plasma resonances in small spherical silver and gold particles. *Zeitschrift fur Physik A Hadrons and Nuclei*, 231(2) :128–143, 1970.

[11] M. Fleischmann, PJ Hendra, and AJ McQuillan. Raman spectra of pyridine adsorbed at a silver electrode. *Chemical Physics Letters*, 26 :163–166, 1974.

[12] B. Liedberg, C. Nylander, I. Lundstrom, et al. Surface plasmon resonance for gas detection and biosensing. *Sens. Actuators*, 4(2) :299–304, 1983.

[13] F. Lopez-Tejeira, S.G. Rodrigo, L. Martin-Moreno, FJ Garcia-Vidal, E. Devaux, TW Ebbesen, JR Krenn, IP Radko, SI Bozhevolnyi, MU Gonzalez, et al. Efficient unidirectional nanoslit couplers for surface plasmons. *Nature Physics*, 3 :324–328, 2007.

[14] Q. Gan, B. Guo, G. Song, L. Chen, Z. Fu, Y.J. Ding, and F.J. Bartoli. Plasmonic surface-wave splitter. *Applied Physics Letters*, 90 :161130, 2007.

[15] Q. Gan, Z. Fu, Y.J. Ding, and F.J. Bartoli. Bidirectional subwavelength slit splitter for THz surface plasmons. *Optics Express*, 15(26) :18050–18055, 2007.

[16] Z. Ruan and M. Qiu. Slow electromagnetic wave guided in subwavelength region along one-dimensional periodically structured metal surface. *Applied Physics Letters*, 90 :201906, 2007.

[17] JB Pendry. Negative refraction makes a perfect lens. *Physical Review Letters*, 85(18) :3966–3969, 2000.

[18] W.L. Barnes, A. Dereux, and T.W. Ebbesen. Surface plasmon subwavelength optics. *Nature*, 424(6950) :824–830, 2003.

[19] J.J. Greffet and R. Carminati. Image formation in near-field optics. *Progress in surface science*, 56(3) :133–237, 1997.

[20] WL Barnes, TW Preist, SC Kitson, and JR Sambles. Physical origin of photonic energy gaps in the propagation of surface plasmons on gratings. *Physical Review B*, 54(9) :6227–6244, 1996.

[21] F. Pincemin and J.J. Greffet. Propagation and localization of a surface plasmon polariton on a finite grating. *Journal of the Optical Society of America B*, 13(7) :1499–1509, 1996.

[22] S. Mair, B. Gompf, and M. Dressel. Spatial and spectral behavior of the optical near field studied by a terahertz near-field spectrometer. *Applied Physics Letters*, 84 :1219, 2004.

[23] E.D. Palik and G. Ghosh. *Handbook of optical constants of solids.* Academic press, 1985.

[24] GP Agrawal and S. Radic. Phase-shifted fiber Bragg gratings and their application for wavelength demultiplexing. *IEEE photonics technology letters*, 6(8) :995–997, 1994.

[25] A. Yariv. Coupled-mode theory for guided-wave optics. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 9(9) :919–933, 1973.

[26] M. Carras and A. De Rossi. Field concentration by exciting surface defect modes. *Optics letters*, 31(1) :47–49, 2006.

[27] JC Weeber, A. Bouhelier, G. Colas des Francs, L. Markey, and A. Dereux. Submicrometer in-plane integrated surface plasmon cavities. *Nano Letters*, 7(5) :1352–1359, 2007.

[28] JL Young and RO Nelson. A summary and systematic analysis of FDTD algorithms for linearlydispersive media. *IEEE Antennas and Propagation Magazine*, 43(1) :61–126, 2001.

[29] M. Carras. *Optimisation électronique et électromagnétique de détecteurs quantiques dans l'infrarouge.* PhD thesis, Université Paris 7, 2008.

[30] J. Plouin, E. Richalot, O. Picon, M. Carras, and A. de Rossi. Photonic band structures for bi-dimensional metallic mesa gratings. *Optics Express*, 305 :847–848, 2004.

[31] M. Qiu. Photonic band structures for surface waves on structured metal surfaces. *Optics Express*, 305 :847–848, 2004.

[32] L. Stabellini, M. Carras, A. De Rossi, and G. Bellanca. Design and Optimization of High-Q Surface Mode Cavities on Patterned Metallic Surfaces. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 44(10) :905–910, 2008.

[33] J. Vuckovic, M. Loncar, H. Mabuchi, and A. Scherer. Optimization of the Q factor in photonic crystal microcavities. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 38(7) :850–856, 2002.

[34] B.S. Song, S. Noda, T. Asano, and Y. Akahane. Ultra-high-Q photonic double-heterostructure nanocavity. *Nature materials*, 4(3) :207–210, 2005.

Chapitre 3

Etude de la cathode THz

Sommaire

3.1 Introduction **88**
3.2 Les cathodes froides à base de nanotubes de carbone **88**
3.2.1 Introduction 88
3.2.2 Émission de champ d'un métal 89
3.2.2.1 Densité du courant tunnel 89
3.2.2.2 Distribution en énergie 92
3.2.2.3 Processus non-linéaires 93
3.2.3 Émission de champ d'un nanotube individuel 96
3.2.3.1 Les nanotubes de carbone 96
3.2.3.2 Détermination du facteur d'amplification 98
3.2.3.3 Variation angulaire du courant 102
3.2.3.4 Vitesses radiales du faisceau électronique 104
3.2.4 Émission de champ d'une cathode à nanotubes 106
3.2.4.1 L'écrantage électrostatique 106
3.2.4.2 Impact du raccourcissement des émetteurs à β constant . 108
3.2.4.3 La dispersion du rapport d'aspect 109
3.2.5 Conclusion 110
3.3 Couplage onde-nanotube **111**
3.3.1 Introduction 111
3.3.2 Couplage optique avec le catalyseur 112
3.3.2.1 Description du modèle 113
3.3.2.2 Ellipsoïde sans revêtement : 115
3.3.2.3 Ellipsoïde avec revêtement 116
3.3.3 Les nanotubes multiparois comme antenne optique 117
3.3.4 Conclusion 119
3.4 Structure et performance de la cathode THz **120**
3.4.1 Introduction 120
3.4.2 Caractéristiques de la distribution d'émetteurs 120
3.4.2.1 Association nanotubes-concentrateur 120
3.4.2.2 Écrantage d'une distribution linéaire d'émetteurs 121
3.4.3 Performances de la cathode THz 122
3.4.4 Conclusion 126
3.5 Conclusion **126**

3.1 Introduction

Pour compléter le dimensionnement de la cathode THz, il est maintenant nécessaire de considérer les propriétés d'émission de champ des nanotubes de carbone. Pour cela, ce chapitre commencera par détailler les propriétés individuelles et collectives des nanotubes de carbone en régime émission de champ. Au cours de cette présentation, les notions de base pour la conception des cathodes à nanotubes seront développées dans l'intérêt de notre étude. Toutefois, notre propos pourra se révéler plus général lorsque l'intérêt des thèmes abordés sera plus large que le cadre de ce travail.

Nous considérerons ensuite l'interaction des nanotubes avec les ondes de surface. En effet, le couplage du champ électrique optique avec les électrons de conduction du nanotube est une condition nécessaire pour moduler l'émission de champ. Or, si les propriétés optiques des nanotubes monoparois sont relativement bien identifiées, cela n'est pas le cas des nanotubes multiparois ou des nanofibres de carbones qui possèdent une structure cristallographique plus complexe. Nous tenterons néanmoins d'avancer plusieurs arguments en faveur du couplage optique.

Dans une troisième partie, nous aborderons la description de la cathode THz dans son intégralité en considérant l'association du réseau de nanotubes de carbone à la surface des réseaux concentrateurs. Nous détaillerons alors les principales dimensions de cet assemblage pour préparer la fabrication de la cathode. Cela nous permettra de procéder alors à une estimation des performances de notre cathode.

3.2 Les cathodes froides à base de nanotubes de carbone

3.2.1 Introduction

L'émission de champ est un phénomène qui fut découvert par R.W. Wood en 1897 [1] après l'étude de la décharge entre deux électrodes en platine dans le vide [1]. La nature de ce phénomène est basée sur le comportement collectif des électrons et a donc nécessité les développements de la physique statistique de la fin années 1920. La statistique de Fermi-Dirac décrivant leur probabilité d'occupation des états d'énergies fut introduite en 1926 par Fermi et Dirac. En 1927, Sommerfeld l'appliqua à la description des métaux en utilisant le modèle de l'électron libre de Drude. En se basant sur ces travaux, la première modélisation de l'effet tunnel d'un métal vers le vide fut développée par R.H. Fowler et L.W. Norheim en 1928. Depuis, cette théorie porte le nom de ces deux principaux fondateurs. Elle connut par la suite de nombreux raffinements qui élargirent son domaine de validité au-delà de la température du zéro absolu. En 1956, les travaux de Murphy et Goods permirent notamment d'établir la distinction entre le régime de l'émission thermoïonique du régime de l'émission de champ [3].

Près d'un siècle après la découverte de Wood, les nanotubes de carbone découverts par Ijima [4] furent étudiés en émission de champ par De Heer et al [5] et Rinzler et al. [6]. Sur la base de ces découvertes, les premières cathodes à nanotubes de carbone furent développées [7, 8] puis étudiées en émission de champ [9, 10]. Dans cette partie, nous allons

1. Ce scientifique fut également à l'origine de la première mise en évidence expérimentale des ondes de surface en étudiant les amplitudes des ordres diffractés par un réseau de diffraction [2]. Il se trouve ainsi à l'origine des deux principaux phénomènes sur lesquels repose le fonctionnement de la cathode THz

aborder les apports de ces différentes étapes afin d'aboutir à une compréhension globale du comportement des cathodes à nanotubes de carbones.

3.2.2 Émission de champ d'un métal

La compréhension de l'émission de champ des nanotubes de carbone se base sur la théorie de Fowler-Nordheim. Nous allons en donner les principaux détails afin de pouvoir décrire le phénomène non-linéaire de mélange qui intéresse cette étude. Pour autant, nous ne serons pas exhaustifs sur les développements théoriques associés à ce modèle, l'objectif étant d'en fournir une compréhension globale et orientée vers nos besoins.

3.2.2.1 Densité du courant tunnel

Tout d'abord, nous considérons une interface plane métal-vide dont la description sera envisagée dans un système de coordonnée 1D. L'axe unique du système sera noté Ox et orienté positivement dans le sens métal-vide. On considère qu'un champ électrique -F est appliqué sur cette interface pour permettre l'extraction des électrons du métal. Pour un champ suffisamment fort, la figure 3.1 montre que la barrière de potentiel à l'interface devient fine et donc propice au passage des électrons par effet tunnel dans le vide. Il est ainsi possible de calculer la densité du courant émis par cette jonction.

La densité de courant : Celle-ci peut être calculée d'après la loi d'Ohm (J=nev) :

$$dJ = ev_x dn\left(k_x\right) D\left(E_x, F\right)$$

avec e la charge de l'électron, v_x la vitesse d'un électron selon Ox, dn la densité d'électrons possédant un vecteur d'onde selon Ox compris entre k_x et $k_x + dk_x$, D la probabilité de transmission à travers la barrière de potentiel d'un électron d'énergie cinétique E_x selon Ox. L'énergie selon Ox d'un électron libre à l'intérieur du métal est donnée par :

$$E_x = \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m}$$

et sa vitesse électronique selon Ox par :

$$v_x = \frac{1}{\hbar}\frac{\partial E_x}{\partial k_x} = \frac{\hbar k_x}{m}$$

et la densité d'électrons par :

$$dn\left(k_x\right) = g\left(\vec{k}\right) dk_x \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} f\left(E_x, E_F, T\right) dk_y dk_z$$

avec la densité d'état dans l'espace réciproque :

$$g\left(\vec{k}\right) = \frac{2}{\left(2\pi\right)^3}$$

On rappelle que les électrons sont des fermions et que le principe d'exclusion de Pauli impose alors un peuplement pair de chaque état d'énergie. Ceci justifie l'apparition du facteur 2 associé à la densité d'état ainsi que l'utilisation de la statistique de Fermi-Dirac f qui exprime la probabilité d'occupation des états d'énergies :

$$f\left(E_x, E_F, T\right) = \left[1 + exp\left(\frac{E_x - E_F}{k_B T}\right)\right]^{-1}$$

avec k_B la constante de Boltzmann et T la température électronique.

L'expression finale du courant est finalement mise sous la forme suivante :

$$J = 2e \int_k f\left(E_x, E_F, T\right) D\left(E_x, F\right) \frac{\hbar k_x}{m} \frac{d^3k}{(2\pi)^3} \tag{3.1}$$

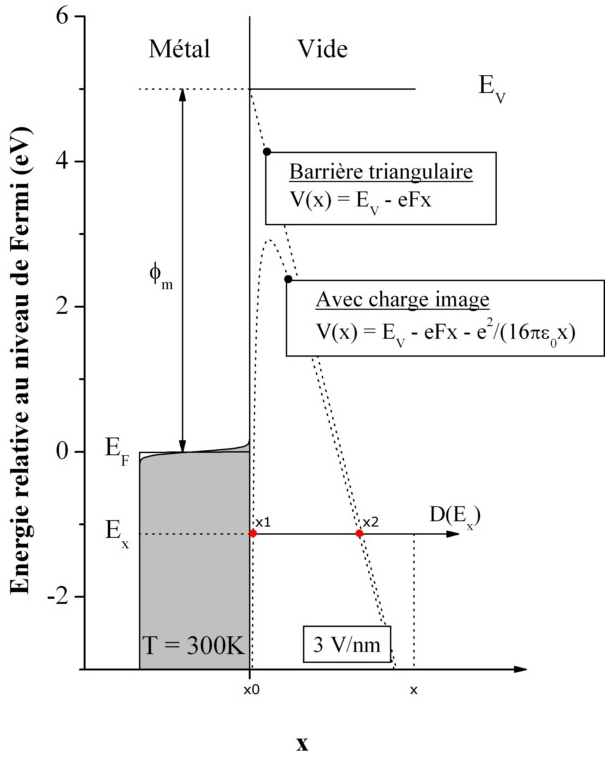


FIGURE 3.1 – Diagramme de la jonction métal-vide en régime d'émission de champ

La probabilité de transmission : D'après la figure 3.1, on exprime le potentiel au voisinage de la jonction métal-vide en tenant compte de la charge image :

$$V\left(x\right) = E_F + \phi - eFx - \frac{1}{4\pi\epsilon_0}\frac{e^2}{4x} \quad pour \quad x > x_0 \tag{3.2}$$

$$V\left(x\right) = 0 \quad pour \quad x < x_0 \tag{3.3}$$

Avec F le champ électrique (en V/m), ϕ le travail de sortie (en eV) et E_F l'énergie du niveau Fermi (en eV).

Le calcul de la transparence de la barrière $D\left(E_x, F\right)$ nécessite la résolution de l'équation de Schrödinger avec l'expression du potentiel $V\left(x\right)$. Cette opération nécessite le raccord des fonctions d'onde au voisinage de la barrière, un calcul qui reste analytique dans le cas de la barrière de potentiel triangulaire. Toutefois, si on tient compte de l'effet de la charge image, il est nécessaire de procéder à une approximation dite WKB. Ces initiales correspondent aux scientifiques Wenztel, Kramers et Brillouin qui mirent indépendamment en oeuvre cette méthode en 1926. En procédant à cette approximation, il est possible de mettre la transparence de barrière sous la forme suivante :

$$D_{WKB}\left(E_x\right) = exp\left[-2\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}}\int_{x_1}^{x_2}\sqrt{V\left(x\right) - E_x}dx\right]$$

Dans le cas d'une émission froide, la distribution de Fermi-Dirac indique que les électrons traverseront majoritairement la barrière à l'énergie du niveau de Fermi. Fowler et Nordheim [11, 12] ont donc effectué le développement limité de $D_{WKB}(E_x)$ au voisinage de E_F :

$$D_{WKB} \approx \frac{e}{4(2\pi)^2 \hbar\phi t^2(y)} F^2 exp\left(-\frac{4\sqrt{2m}v(y)\phi^{3/2}}{3\hbar eF}\right)$$

Finalement, en intégrant l'équation 3.1 sur l'ensemble des valeurs de k pour une température ambiante de 300K, on obtient la densité de courant en fonction du champ appliqué :

$$J_{FN}(F) = \frac{e}{4(2\pi)^2 \hbar\phi t^2(y)} F^2 exp\left[\frac{4\sqrt{2m}v(y)\phi^{3/2}}{3\hbar eF}\right]$$

Les fonctions v et t sont dites elliptiques de Nordheim et sont exprimées en fonction de y qui correspond à l'abaissement relatif du travail de sortie dû à la charge image :

$$y = \frac{\Delta\phi}{\phi} = \frac{1}{\phi}\sqrt{\frac{e^3F}{4\pi\epsilon_0}}$$

Elles peuvent être approchées avec les expressions suivantes [13] :

$$\begin{cases} v(y) \approx 0.96 - y^2 \\ t(y) \approx 1.049 \end{cases}$$

Soit en exprimant numériquement toutes les valeurs de l'expression J_{FN} :

$$J_{FN} = A_{FN} F^2 exp\left(-\frac{B_{FN}}{F}\right) \tag{3.4}$$

avec

$$A_{FN} = \frac{1.42 \times 10^6}{\phi} exp\left(\frac{10.4}{\sqrt{\phi}}\right) \quad et \quad B_{FN} = 6.56 \times 10^9 \phi^{3/2}$$

Avec F le champ électrique en (V/m), ϕ le travail de sortie (en eV) et J la densité de courant (en A/cm^2).

Le calcul de l'intensité émise peut être effectué à partir de la surface émettrice A_0 tel que :

$$I_{FN} = A_0 J_{FN}$$

En réalité, l'émission électronique se trouve souvent distribuée sur des sites discrets correspondant aux irrégularités géométriques des surfaces émettrices (nanoprotusions, joints de grain). Cela rend donc peu indicatif le calcul théorique de la surface pour évaluer quantitativement le courant émis. Néanmoins, si la densités de sites émetteurs reste homogène à grande échelle, elle pourra permettre des raisonnements relatifs. On pourra ainsi prédire qu'une cathode deux fois plus grande pourra émettre deux fois plus de courant. On pourra aussi introduire la densité spatiale de sites émetteurs n_e dans les calculs pour rendre compte de ce phénomène.

Le caractère exponentiel de la relation de Fowler-Nordheim mena les expérimentateurs à utiliser des diagrammes logarithmiques pour tracer leurs données. Une représentation graphique s'est progressivement imposée à partir d'une reformulation de l'équation 3.4 :

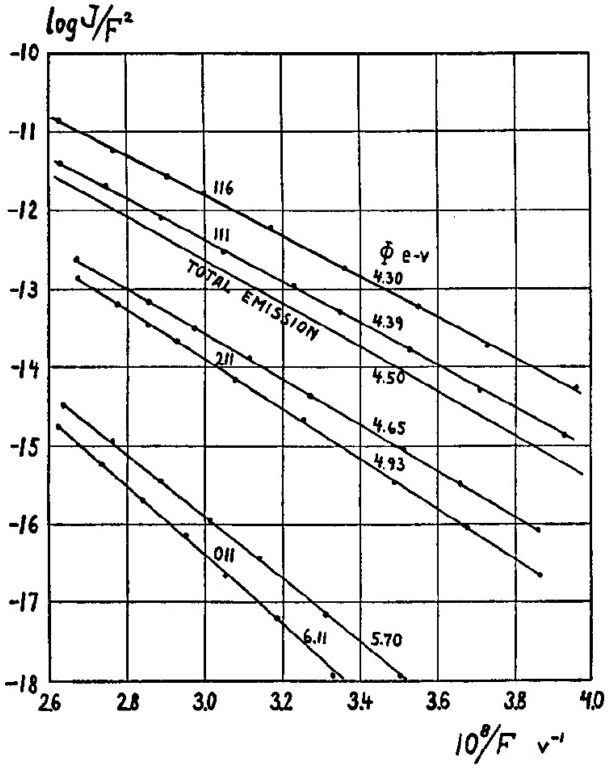


FIGURE 3.2 – Diagramme de Fowler-Nordheim expérimental réalisé par E.W. Müller en 1955 présentant les densités de courant émises par différents plans cristallins du Tungstène [14]

$$Y = -B_{FN}X + log\left(A_{FN}\right) \quad avec \quad X = \frac{1}{F} \quad et \quad Y = log\left[\frac{J}{F^2}\right] \tag{3.5}$$

Celle-ci permet d'obtenir une dépendance linéaire dans le graphe Y=f(X). Nous verrons dans ce travail que cette représentation permet ainsi d'accéder rapidement aux informations essentielles à la compréhension du phénomène d'émission de champ. On constate en particulier que la pente de l'intensité mesurée est ainsi proportionnelle à $\phi^{3/2}$. Une illustration de cette simplicité d'usage est donnée sur la figure 3.2 dans le cadre d'une étude de Müller en 1955 sur les plans cristallins du Tungstène [14]. Cette représentation permet d'identifier clairement la dispersion de la densité de courant en fonction du travail de sortie qui est associé à chaque plan cristallin.

3.2.2.2 Distribution en énergie

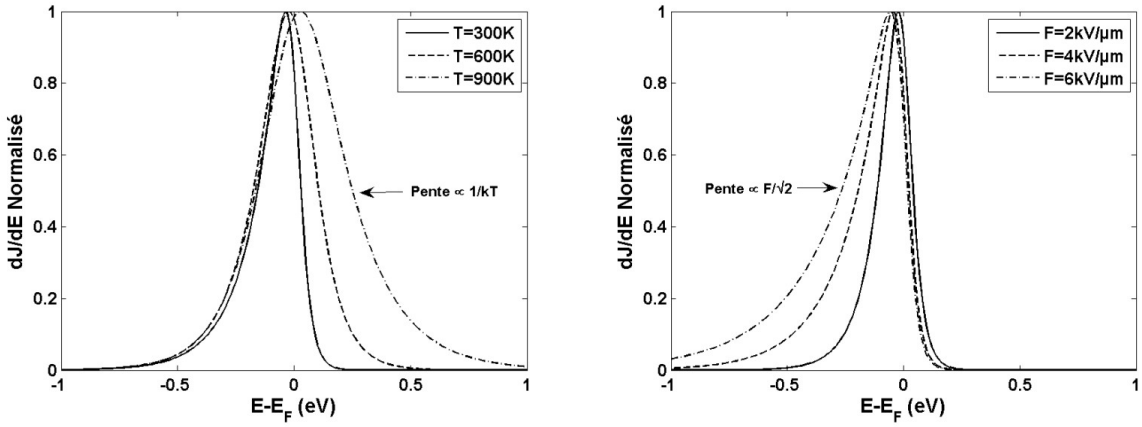
L'expression de la distribution totale en énergie des électrons émis par la jonction s'écrit tel que :

$$\frac{dJ(E)}{dE} = \frac{2e}{(2\pi)^3} f\left(E_x, E_F, T\right) \int_{|k|=\frac{2mE}{\hbar^2}} D\left(E_x, F\right) \frac{\hbar k_x}{m} \frac{d^3k}{(2\pi)^3}$$

L'intégration de la probabilité de transmission D mène à l'expression suivante [15, 16] :

$$\frac{dJ(E)}{dE} = \frac{\sqrt{2m}}{4(2\pi)^2h^2}\frac{eF}{\phi^{1/2}} exp\left[\frac{-4\sqrt{2m}\phi^{3/2}}{3heF}\right] \times \underbrace{\frac{1}{1+exp\left(\frac{E-E_F}{kT}\right)}}_{\substack{pour \quad E>E_F \\ pente \propto 1/kT}} \times \underbrace{exp\left[2\frac{\sqrt{2m}}{e\hbar}\frac{\phi^{1/2}}{F}(E-E_F)\right]}_{\substack{pour \quad E<E_F \\ pente \propto F/\sqrt{\phi}}}$$

L'interprétation de la dépendance en énergie de cette formule peut s'effectuer en analysant chaque membre séparément. Pour cela, nous omettons la première partie de l'équation qui ne dépend pas explicitement de l'énergie. La seconde partie reflète la variation de la statistique de Fermi-Dirac et induit donc une décroissance proportionnelle à $1/kT$ pour les énergies au voisinage de E_F. La troisième partie correspond à la probabilité de transmission et augmente donc avec l'affinement progressif de la barrière quand le champ électrique F augmente. Cet accroissement est proportionnel à $F/\sqrt{\phi}$ au voisinage de E_F. Le produit de ces deux variations de sens opposé conduit à la présence d'un pic au voisinage de l'énergie de Fermi. Celui-ci est illustré sur les graphes de la figure 3.3 pour un travail de sortie de 4.9eV.



(a) F = 3kV/µm

(b) T = 300K

FIGURE 3.3 – (a) Evolution de la distribution totale en énergie en fonction de la température. (b) Evolution de la distribution totale en énergie en fonction du champ électrique.

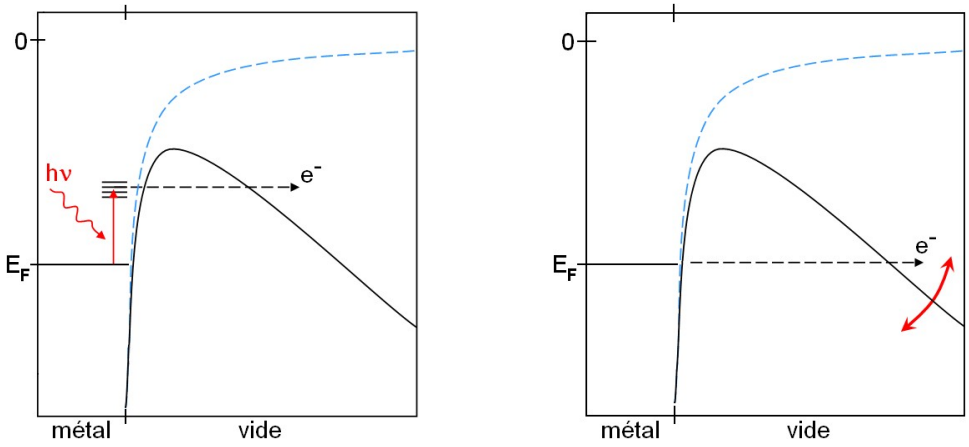
Sur la figure 3.3a, le champ électrique appliqué sur la jonction est fixé pour différentes valeurs de la température. En augmentant l'étalement de la distribution de fermi-dirac, des électrons de plus forte énergie sont amenés à traverser la barrière. Cela engendre comme attendu un étalement du pic d'émission pour les énergies supérieures à E_F. Sur la figure 3.3b, la température est fixée pour différentes valeurs du champ électrique. L'augmentation du champ réduit l'épaisseur de la barrière et augmente ainsi la transparence de la barrière pour les énergies inférieures à E_F. On assiste donc à un étalement du pic pour ces énergies. Pour chaque exemple, en mesurant les pentes des flancs de ce pic, il est possible de déterminer le travail de sortie ainsi que la température d'émission électronique.

3.2.2.3 Processus non-linéaires

L'expression 3.4 montre que l'équation de Fowler-Nordheim est non-linéaire. Ainsi, en ajoutant un terme oscillant au potentiel appliqué sur la jonction, il devient possible d'effectuer des opérations de conversion fréquentielle telles que la rectification ou le mélange de fréquences. Cependant, il est à noter que le calcul de cette formule a été établi dans le cas d'un champ électrique statique appliqué sur la jonction tunnel. La considération d'une barrière de potentiel dépendante du temps nécessite donc de définir la limite de validité de ce modèle.

Le temps de traversée tunnel : Pour cela, une comparaison doit être établie entre la période de l'onde incidente et le temps que l'électron met pour traverser la barrière tunnel. En effet, si l'électron traverse la barrière tunnel plus rapidement que la période de l'oscillation du potentiel alors le problème de l'effet tunnel peut être traité de manière quasistatique et l'équation de Fowler-Nordheim peut être considérée valide. Au contraire, si l'électron est plus lent, celui-ci subira un potentiel variable dont l'équation de de Fowler-Nordheim ne rend pas compte. Par conséquent, la détermination d'un temps de traversée tunnel est importante pour pouvoir exprimer cette condition.

Mais bien qu'elle soit simple en apparence, cette question pose un problème fondamental de la Physique qui suscite de nombreux débats dans la communauté scientifique. Ces controverses sembles paradoxales car l'utilisation de l'effet tunnel est aujourd'hui largement répandu dans les appareils commerciaux. Pour illustrer simplement le problème, on peut se reporter au potentiel de la figure 3.1. On constate alors qu'un calcul classique de l'énergie cinétique d'un électron selon Ox mène à $E_x - V(x)$ et conduit à attribuer une vitesse imaginaire aux électrons à l'intérieur de la barrière. Afin de parvenir à une définition réelle du temps, différentes approches ont été proposées au cours du 20ème siècle [17]. Elles n'ont toutefois toujours pas permis d'aboutir à un consensus général sur la nature exacte d'une telle expression.



(a) $\gamma >> 1$ (b) $\gamma << 1$

FIGURE 3.4 – Illustration des régimes de photomodulation (a) et de modulation optique (b).

Au delà de la controverse, il est important pour notre étude de citer l'approche de Büttiker et Landauer [18]. Leur définition du temps tunnel s'appuie sur l'interaction d'un électron avec une barrière de potentiel dont l'amplitude est périodiquement modulée au cours du temps. Lors du passage de l'électron dans cette barrière, on distingue l'existence de deux régimes. Le premier dans lequel la fréquence de la modulation de la barrière est plus faible que celle associée au temps tunnel. L'électron traverse alors une barrière quasistatique durant la traversée tunnel. Le second dans lequel la fréquence de la modulation est plus importante que celle associée au temps tunnel. L'électron traverse alors une barrière d'amplitude et largeur variables en gagnant ou perdant des quanta d'énergie. La transition entre ces deux régimes s'exprime par condition $\gamma = \nu_0\tau \approx 1$, avec ν_0 la fréquence de la modulation et τ le temps de traversée tunnel. Cette expérience d'esprit est donc directement connectée à la probléma-

tique de notre étude. Le regime donné par $\gamma << 1$ est en effet celui qui décrit le régime de validité de l'équation de Fowler-Nordheim. On peut distinguer sur les deux graphes simplifier de la figure 3.4 la distinction des processus associés à chaque régime.

Une approche similaire fût proposée par Keldysh [19] pour décrire les différents régimes d'ionisation atomique dans le champ électrique d'un laser intense. Elle présente l'avantage de mener à une formulation explicite du temps tunnel et donc de la condition de stationarité. Cette approche est souvent utilisée dans le domaine de l'émission électronique ultrarapide [20–23]. Selon les travaux de Keldysh, le paramètre γ qui est nommé "paramètre de Keldysh", peut s'exprimer par la relation suivante :

$$\gamma = \nu_0 \frac{\sqrt{2\phi m_e}}{eF_t}$$

Avec e et m_e respectivement la charge et la masse de l'électron, F_t le champ électrique total appliqué, ϕ le travail de sortie. On peut alors exprimer ce paramètre dans le cas de la barrière présentée sur la figure 3.1 avec un champ oscillant F_{osc} superposé au champ statique F_{stat} :

$$\gamma = \nu_0 \frac{\sqrt{2\phi_c m_e}}{eF_t} \quad avec \quad \phi_c = \phi - \sqrt{\frac{e^3 F_t}{4\pi\epsilon_0}} \tag{3.6}$$

Avec ϕ_c le travail de sortie réduit par l'effet de la charge image et le champ électrique total $F_t = F_{stat} + F_{osc}$. A la longueur d'onde de 1.55µm, la formule 3.6 indique que $\gamma = 0.36$ pour $F_t = 3V/\text{nm}$. On note qu'en augmentant le champ électrique appliqué, il est possible de réduire davantage le paramètre de Keldysh. Par exemple on obtient $\gamma = 0.26$ pour $F_t = 4V/\text{nm}$. Cette diminution de la valeur de γ est liée la réduction du temps tunnel par le fait que le champ électrique augmente et réduit la largeur et la hauteur de la barrière de potentiel.

En conclusion, les paramètres physiques associés à notre travail conduisent à des valeurs du paramètre Keldysh qui sont faiblement inférieures à 1. Par conséquent, si la validité de l'équation de Fowler-Nordheim n'est pas complète, on pourra se reporter aux travaux de Hagmann [24] présentée dans le chapitre 1. Ce régime transitoire est alors décrit avec une courbe de gain permettant de corriger le régime quasistatique des effets d'absorptions de quanta. Nous pourrons alors également supposer la jonction en régime quasi-statique avant de procéder à la correction d'amplitude proposée. Mais nous notons cependant que le régime transitoire tendra d'autant moins à s'exprimer que les champs électriques appliqués seront importants.

Mélange et rectification : Le problème de la génération d'harmoniques non-linéaires par la modulation d'une jonction tunnel a été traitée dans la littérature scientifique des années 1980 et intéresse directement le fonctionnement de la cathode THz. De manière similaire à ces études, il est possible d'exprimer quantitativement les composantes non-linéaires du courant. Ceci est rendu possible par le fait que nous travaillons dans le régime $\gamma < 1$.

Pour exprimer ces composantes, nous considérons que la jonction tunnel de la figure 3.1 est soumise à un champ électrique total F_t de la forme suivante :

$$F_t(t) = F_0 + F_m(t)$$

avec

$$F_m(t) = F_1 cos(\omega_1 t) + F_2 cos(\omega_2 t)$$

avec ω_1 et ω_2 des pulsations distinctes associées aux signaux amplitudes F_1 et F_2. Ces amplitudes sont considérées comme faibles relativement au champ statique F_0. Ce champ statique définit un point de fonctionnement (F_0, J_0) autour duquel la modulation du courant est effectuée selon la loi de Fowler-Nordheim. En utilisant cette expression, la forme locale de la densité de courant se développe telle que :

$$J(F_0 + F_m) = J_0 + F_m \left.\frac{\partial J}{\partial F}\right|_{F_m} + \frac{F_m}{2} \left.\frac{\partial J^2}{\partial F^2}\right|_{F_m} + \quad ...$$

En substituant F_m par son expression et en utilisant les règles de simplification trigonométriques, il est possible d'exprimer les courants associés aux phénomènes de rectification I_R et de différence de fréquence I_M :

$$I_R = \frac{I_0}{2}\left(1 + \frac{B_{FN}}{F_0} + \frac{B_{FN}^2}{2F_0^2}\right)\left[\left(\frac{F_1}{F_0}\right)^2 + \left(\frac{F_2}{F_0}\right)^2\right] \tag{3.7}$$

$$I_M = I_0\left(1 + \frac{B_{FN}}{F_0} + \frac{B_{FN}^2}{2F_0^2}\right)\left(\frac{F_1}{F_0}\right)\left(\frac{F_2}{F_0}\right) \tag{3.8}$$

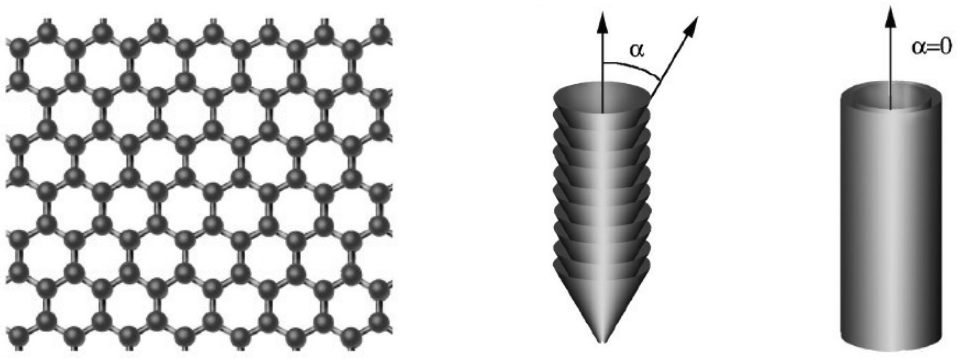
Ces deux équations suscitent plusieurs remarques. Tout d'abord, il est intéressant de noter pour la simplification de nos calculs à venir, que les composantes I_M et I_R du courant sont égales lorsque les champs électriques F_1 et F_2 sont égaux. Ensuite, il est important de remarquer que les composantes I_0 du courant continu et I_M du courant modulé varient dans des sens opposés en fonction du champ statique appliqué. Cela appellera donc à un compromis entre le courant et la modulation qui devra être résolu en fonction des besoins imposés par le tube THz.

3.2.3 Émission de champ d'un nanotube individuel

Nous allons maintenant détailler le passage de l'émission d'une l'interface plane à celle d'un nanotube. Pour cela, quelques aspects structuraux des nanotubes multi-parois seront abordés avant de présenter leurs propriétés en régime d'émission de champ.

3.2.3.1 Les nanotubes de carbone

Considérations structurelles : Les nanotubes font partie de la famille des nanofibres de carbone. Leurs dimensions peuvent varier du µm au mm pour leur longueur et du nm à 500nm pour leur diamètre. Ces structures carbonées se composent de feuillets d'atomes de carbone aux liaisons covalentes hybridées sp2. Cet arrangement spécifique représenté sur la figure 3.5a forme un cristal bimensionnel à maille hexagonale appelé graphène. Une classification peut être effectuée en fonction de l'arrangement des feuillets de graphène dans ces nanofibres [25]. Pour cela, on considère un empilement régulier de cônes d'angle au sommet α tel que présenté sur la figure 3.5b. Les nanotubes de carbone sont définis lorsque la valeur de α tend vers zéro. Dans le cas limite, les nanotubes forment des cylindres concentriques comme présenté sur la figure 3.5c.

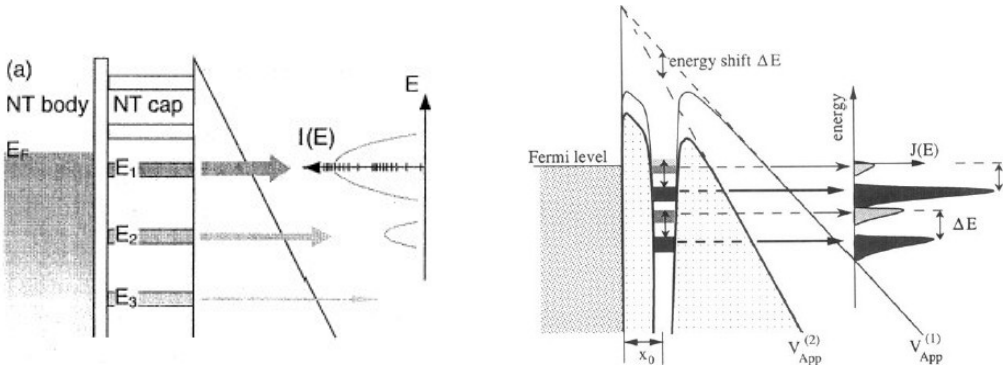


(a) Feuillet de graphène (b) Nanofibre (c) Nanotube

FIGURE 3.5 – Structuration du carbone dans les nanofibres de carbone

Propriétés de l'émission de champ : Les nanotubes de carbone possèdent un travail de sortie dont plusieurs études ont évalué la valeur à 4.9eV [26–28]. Les distributions en énergie des électrons émis par les nanotubes de carbone ont également été étudiées et ont démontré certaines particularités :

- des largeurs de pics deux fois plus faibles que pour d'autres émetteurs [29, 30]
- le déplacement linéaire du pic avec le champ [30]
- l'apparition de nouveaux pics [30]



(a) (b)

FIGURE 3.6 – Etude de la localisation des états

Différentes explications ont été avancées pour expliquer ces observations singulières :

Etats localisés : Comme le présente la figure 3.6a, certaines équipes ont avancé que les multiples pics proviendraient d'états localisés à l'extrémité du nanotube. Cette hypothèse a été appuyée par plusieurs approches théoriques montrant une différence entre les propriétés électroniques du corps (continuum d'énergie) et celles de l'extrémité du nanotube (états localisés).

Adsorbats : Comme dans le cas des émetteurs classiques, la présence d'adsorbats a été évoqué comme la source d'états localisés à la surface du nanotube. Leur présence perturbe la barrière de potentiel comme illustré sur la figure 3.6b. Ainsi les électrons émis doivent traverser successivement deux barrières enserrant un puits de potentiel assez fin. Celui-ci possède des états discrets d'énergies et favorise le passage par effet tunnel des électrons possédant des énergies voisines de ces niveaux. Cela induit un effet tunnel résonant. Le déplacement des pics est alors le résultat de la pénétration du champ électrique dans les adsorbats.

3.2.3.2 Détermination du facteur d'amplification

Définition du facteur d'amplification : Il a été précédemment remarqué que les champs électriques nécessaires à l'émission de champ étaient de l'ordre de 2-3V/nm. L'effet de pointe fut alors présenté comme un moyen efficace pour appliquer de tels champs (voir chapitre 1). La géométrie d'un nanotube de carbone orienté verticalement entre deux électrodes planes permet d'exercer cet effet de manière optimale. Pour évaluer son efficacité, le champ électrique développé à l'apex du nanotube est comparé au champ macroscopique développé dans l'espace inter-électrode par la relation suivante :

$$F_{apex} = \beta F_{macro}$$

Avec F_{apex} et F_{macro} étant respectivement le champ électrique à l'apex du nanotube et le champ électrique macroscopique. Le paramètre β correspond donc au facteur d'amplification qui est imposé au champ macroscopique par la géométrie de l'objet. Nous verrons plus loin que cette dépendance géométrique est apparente dans la plupart des développements analytiques de ce paramètre.

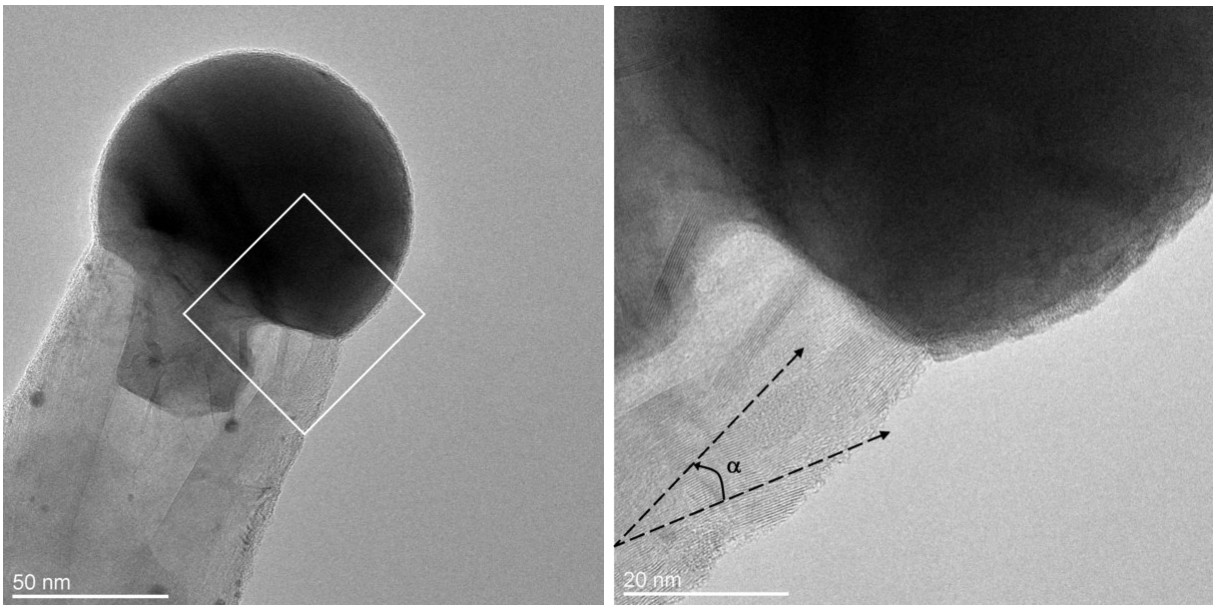
Présentation du modèle : La structure des nanofibres qui ont été utilisées dans cette étude est typiquement celle qui est présentée sur les images de la figure 3.7. Ces images hautes résolutions ont été réalisées avec un Microscope Electronique à Transmission (en anglais Transmission Electron Microscope = TEM). Le sommet de cette structure est formée par d'une particule métallique hémisphérique dont l'existence et la forme seront justifiées dans le chapitre 4. La résolution de ces clichés permet d'identifier clairement les plans graphitiques sur le zoom 3.7b. Il a été observé sur nos échantillons que leur structure est du type nanofibre de carbone avec un angle au sommet voisin de 20°.

Le facteur d'amplification au sommet d'un tel nanotube peut être évalué de manière numérique. Pour cela, on approche sa géométrie par un long cylindre dont l'extrémité est refermée par une demi-sphère de même rayon. Dans cette étude, le rapport entre la hauteur et le rayon de la structure est fixé à 200. Cette valeur a été choisie pour permettre l'obtention de courants émis significatifs pour les tubes électroniques en appliquant des champs moyens faibles permettant d'éviter les phénomènes de claquages. Sur la base de cette géométrie, on considère le calcul du potentiel par l'équation de Laplace :

$$\nabla . \left(\epsilon_0 \nabla V\left(r, \theta, z\right)\right) = 0 \tag{3.9}$$

Le problème que nous souhaitons analyser présente une symétrie cylindrique. L'équation 3.9 se met donc sous la forme suivante :

$$\frac{\partial}{\partial r}\left(\epsilon_0 r \frac{\partial V\left(r, z\right)}{\partial r}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\epsilon_0 r \frac{\partial V\left(r, z\right)}{\partial z}\right) = 0 \tag{3.10}$$



(a) Vue générale (b) Zoom vue générale

FIGURE 3.7 – Images d'un nanotube au Microscope Électronique à Transmission

On considére la résolution de cette équation sur le contour présenté sur la figure 3.8. Pour résoudre cette équation différentielle, il est nécessaire de multiplier l'équation 3.10 par une fonction v régulière, élément de l'espace de Sobolev $H_0^1(\Omega)$ qui est formée par les fonctions qui s'annulent sur le bord $\partial\Omega$ du domaine de calcul Ω (voir [31] pour plus de détails). Le problème s'écrit alors :

$$v(r,z)\frac{\partial}{\partial r}\left(\epsilon_0 r\frac{\partial V(r,z)}{\partial r}\right)+v(r,z)\frac{\partial}{\partial z}\left(\epsilon_0 r\frac{\partial V(r,z)}{\partial z}\right)=0$$

La forme bilinéaire du problème est exprimée en employant la formule de Green :

$$\int_\Omega \epsilon_0 r\frac{\partial V(r,z)}{\partial r}\frac{\partial v(r,z)}{\partial r}dr+\int_\Omega \epsilon_0 r\frac{\partial V(r,z)}{\partial z}\frac{\partial v(r,z)}{\partial z}dz=0$$

Cette expression est implémentée dans un code de calcul par éléments finis FreeFem++ avec des conditions aux limites de Dirichlet sur la cathode (v_c), sur l'anode (v_a) ainsi que des conditions de Neumann sur les bords $r=0$ et $r=2h$ du domaine afin de permettre la continuité du champ électrique. Il est a remarquer que la géométrie du nanotube requiert la mise en place d'un maillage adaptatif afin de rendre compte de la variation lente du potentiel inter-électrode ainsi que de la variation brutale du potentiel au voisinage de l'apex pour un moindre coût numérique. Plusieurs raffinements de ce maillage ont été effectués jusqu'à la convergence du champ d'apex.

A partir de ce calcul, les cartographies du potentiel puis du champ électrique sont obtenues. On s'intéresse plus particulièrement au champ électrique axial F_z, radial F_r et total F_t. Ces grandeurs sont représentées au sommet du nanotube sur les graphes (a) à (c) de la figure 3.9. On constate que les champs radial et axial possèdent des répartitions très différentes. Le champ axial s'exprime au sommet du nanotube tandis que le champ radial s'exprime davantage en bordure de l'hémisphère. Nous verrons plus loin les conséquences de ces distributions sur l'émission électronique des nanotubes.

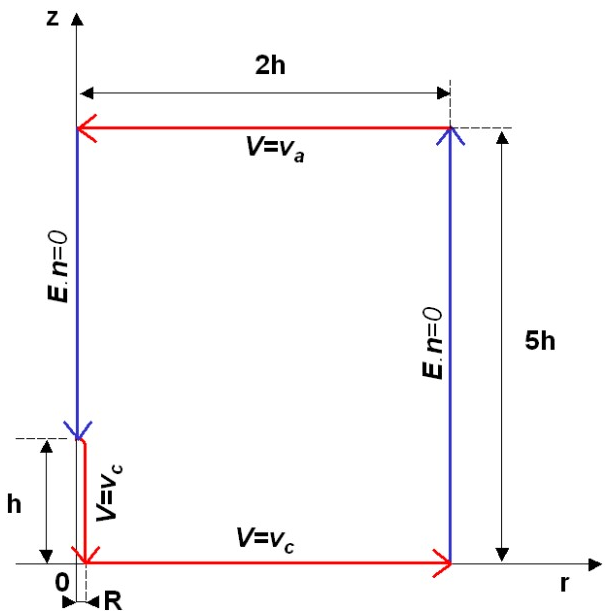


FIGURE 3.8 – Configuration de l'espace de calcul pour la résolution de l'équation de Laplace

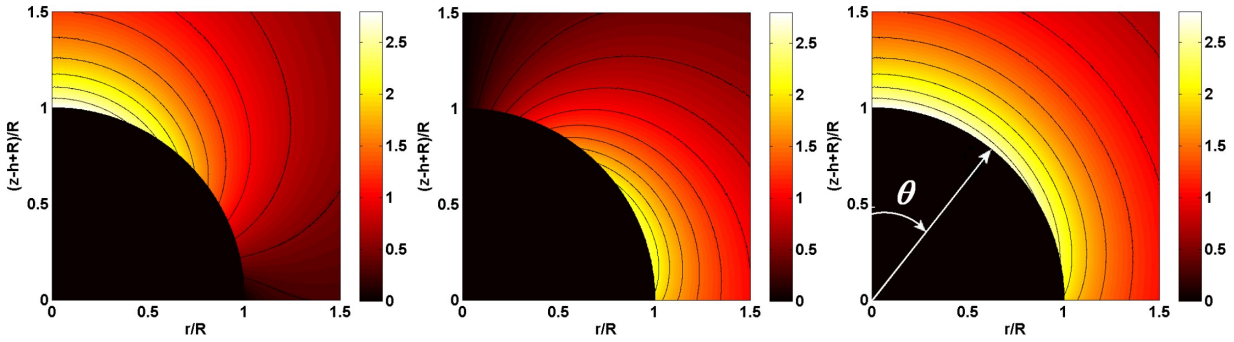
La connaissance du champ électrique total au voisinage de l'apex permet également de tracer le profil du champ électrique en s'éloignant à $r = 0$ de l'apex sur le graphe (d) de la figure 3.9. On constate que sa valeur chute rapidement pour tendre vers celle du champ électrique macroscopique. On obtient typiquement une diminution de 95% du facteur d'amplification sur une distance correspondant à 5 rayons d'apex.

Le calcul du champ total permet également d'effectuer le calcul du facteur d'amplification sur le contour hémisphérique du sommet du nanotube. Afin de représenter chaque point, nous considérons un système de coordonnées sphériques (r, θ, ϕ) dont l'origine est au centre de l'hémisphère du sommet. Le problème reste invariant par l'angle d'azimut ϕ et l'angle θ est repéré sur la cartographie de F_t. Le résultat obtenu est présenté sur le graphe (e) de la figure 3.9. On peut voir que l'amplification atteint la valeur maximale de 140 à l'apex et qu'elle perd jusqu'à 30% de sa valeur sur le bord de l'hémisphère à $\theta = 90°$. Pour obtenir un fit sur l'ensemble des valeurs angulaires, la fonction suivante est développée jusqu'à l'ordre 8 :

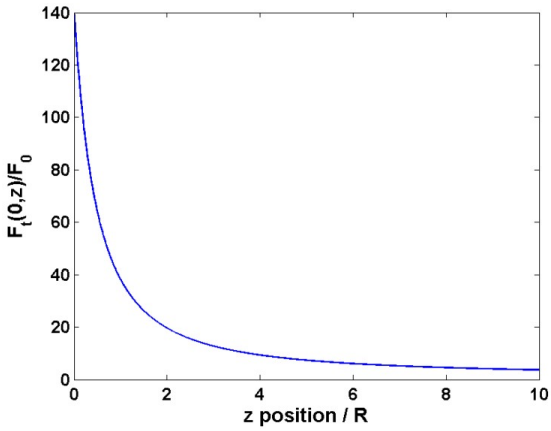
$$\boxed{\begin{gathered}\beta_\phi(\theta) = \beta_{max}\sum_{n=0}^{4} a_{2n}\theta^{2n} \\ a_0 = 1; \quad a_2 = -0.0778, \quad a_4 = 0.037, \quad a_6 = -4.56 \times 10^{-4}, \quad a_8 = -0.0017\end{gathered}} \tag{3.11}$$

Cette formule permettra de connaître, pour tout champ électrique appliqué, la distribution du champ électrique au sommet d'un nanotube de rapport d'aspect 200. En donnant le champ local, celle-ci permettra de calculer la dépendance de la densité de courant en fonction de l'angle d'émission.

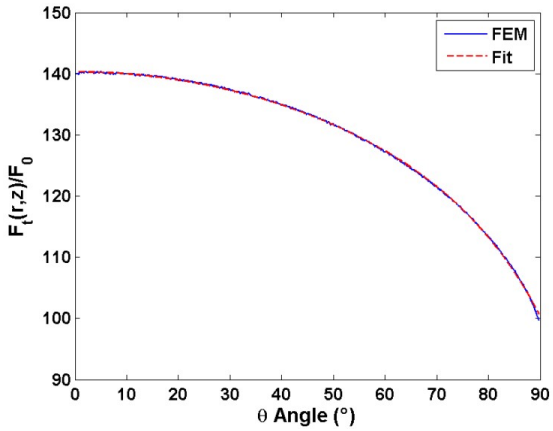
Influence du rapport d'aspect : Parmi les études consacrées au paramètre β, certaines d'entre elles ont rapporté des expressions analytiques pour exprimer sa dépendance au rapport d'aspect h/r. On relève notamment :



(a) $F_z(r,z)$ (b) $F_r(r,z)$ (c) $F_t(r,z)$



(d)



(e)

FIGURE 3.9 – Cartographies du champ électrique axial (a), radial (b) et (c) total au sommet du nanotube. (d) Variation de $F_t(0,z)$ depuis l'apex du nanotube. (e) Variation de $F_t(r,z)$ à la surface du sommet hémisphérique du nanotube.

- D'après Edgcombe et Valdré [32, 33], pour des rapports d'aspects compris entre 4 et 3000, le facteur d'amplification est donné par :

$$\beta_{max} = 1.125\left(\frac{h}{r}+2\right)^{0.91}$$

- D'après Kokkorakis [34], pour des rapports d'aspect compris entre 20 et 600, le facteur d'amplification est donné par :

$$\beta_{max} = 5.93 + 0.73\left(\frac{h}{r}\right) - 0.0001\left(\frac{h}{r}\right)^2$$

La figure 3.10 présente une comparaison de ces expressions avec les points calculés dans cette étude par la méthode numérique précédemment détaillée. On remarque que pour les rapports d'aspect qui nous intéresse, soit entre 100 et 1000, toutes ces lois donnent des valeurs voisines. Néanmoins, les valeurs simulées confirment que la loi de Edgcombe et Valdré est la plus pertinente pour décrire ce régime. Pour une évaluation pratique du facteur d'amplification, on retiendra toutefois l'expression donnée par Minoux [35], soit $\beta = 0.67h/r$, qui constitue une formulation directe de ce paramètre pour des rapports d'aspect compris entre 50 et 500.

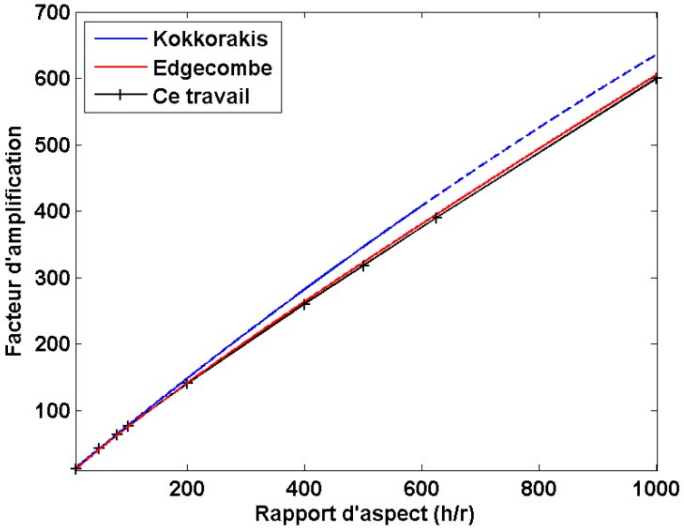


FIGURE 3.10 – Représentation de la variation du facteur d'amplification en fonction du rapport d'aspect du nanotube.

3.2.3.3 Variation angulaire du courant

En se basant sur la formule 3.11, on calcule la variation angulaire de la densité de courant avec l'équation de Fowler-Nordheim. Soit pour un angle azimutal ϕ constant :

$$J_\phi(\theta) = A_{FN}\beta_\phi(\theta)^2 F_0^2 exp\left(-\frac{B_{FN}}{\beta_\phi(\theta) F_0}\right)$$

On présente la variation de J_ϕ en fonction de θ sur la figure 3.11a pour 3 valeurs du champ électrique macroscopique. On constate que l'augmentation du champ provoque l'augmentation de la densité de courant aux forts angles. Nous avons observé que ces variations pouvaient être approximativement approchées avec une loi du type :

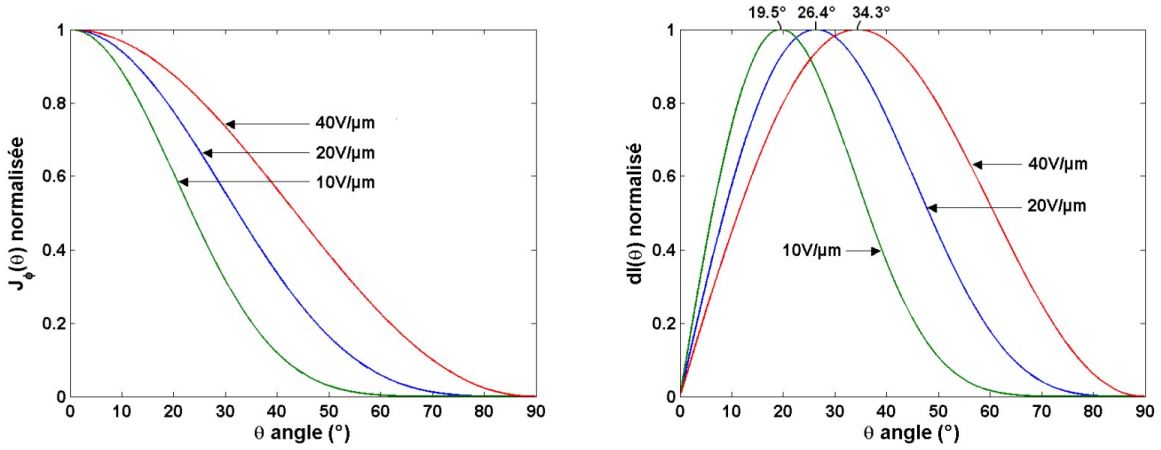
$$\boxed{J_{fit}(\theta) = J_{max} cos(\theta)^n}$$

Avec $n \approx 2.15$, 4.1 et 8 respectivement pour F_0 égal à 40, 20 et 10V/µm. Pour rendre compte de l'impact de cette variation sur la distribution du courant, le calcul du courant émis par chaque élément de surface du sommet a été effectué sur la figure 3.11b. On rappelle que le courant émis par chaque élément de l'hémisphère correspond à :

$$dI = J_\phi(\theta)\, dS = J_\phi(\theta)\, R^2 sin(\theta)\, d\theta d\phi \tag{3.12}$$

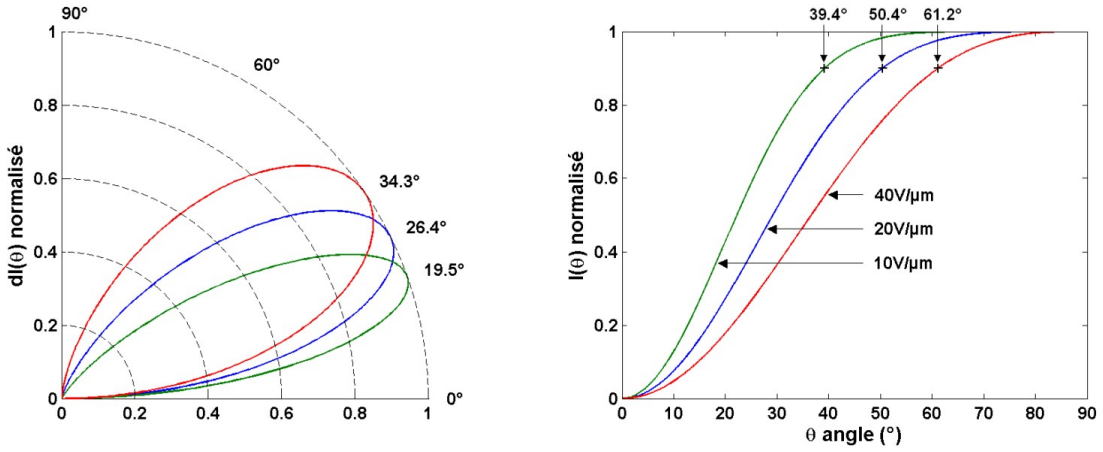
On constate sur le graphe que l'intensité est faible à l'apex en raison des faibles surfaces sur lesquelles le champ est appliqué. L'intensité chute également aux forts angles en raison de l'affaiblissement du champ électrique. Entre ces deux minima, la valeur du courant passe par un maximum dont l'angle augmente avec le champ électrique. Sous un champ macroscopique de 20V/µm, l'angle obtenu pour le maximum d'émission est approximativement de $\theta = 26°$. Le graphe 3.12a donne un aperçu différent de cet effet dans un diagramme polaire.

Par ailleurs, la figure 3.12b donne la valeur du courant total émis en fonction de l'angle au sommet. Sous un champ macroscopique de 20V/µm, on voit que 90% du courant total émis par le sommet est émis pour les angles inférieurs à $\theta = 50°$.



(a) (b)

FIGURE 3.11 – Variation de la densité de courant (a) et du courant total (b) en fonction de l'angle d'apex.

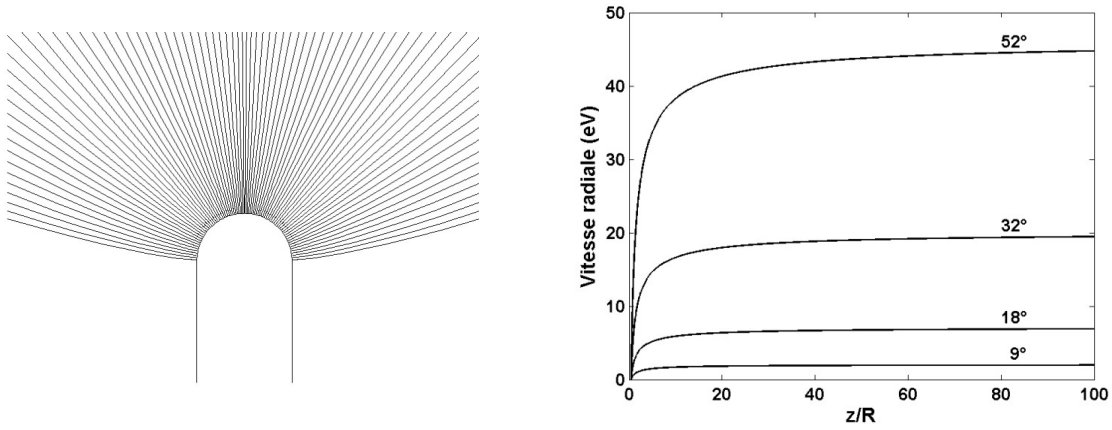


(a) (b)

FIGURE 3.12 – Variation du courant total (a) en fonction de l'angle d'apex. (b) Variation du courant total émis en fonction de l'angle d'apex.

3.2.3.4 Vitesses radiales du faisceau électronique

Dans l'espace inter-électrode, on peut décomposer le champ électrique et les vitesses électroniques en une composante axiale et radiale qui sont respectivement colinéaire et perpendiculaire à l'axe du nanotube. Si l'espace inter-électrode est majoritairement le siège d'un champ électrique axial, la cartographie 3.9b montre que ce n'est pas le cas à proximité du sommet du nanotube. Ce champ radial au sommet amène les électrons à acquérir des vitesses radiales et engendre à la divergence du faisceau électronique émis par la cathode. Pour les tubes électroniques, cette divergence est problématique. Son augmentation impose la conception d'une optique électronique plus puissance et plus complexe qui peut conduire à l'instabilité du faisceau électronique le long de la ligne à retard. Afin de quantifier cet effet et compléter notre descriptif de l'émission de champ par un nanotube, nous allons nous intéresser aux vitesses radiales que les électrons développent au voisinage de leur sommet.



(a) (b)

FIGURE 3.13 – (a) Trajectoires électroniques au sommet du nanotube. (b)Distribution des vitesses radiales des électrons émis du nanotube en fonction de z/R

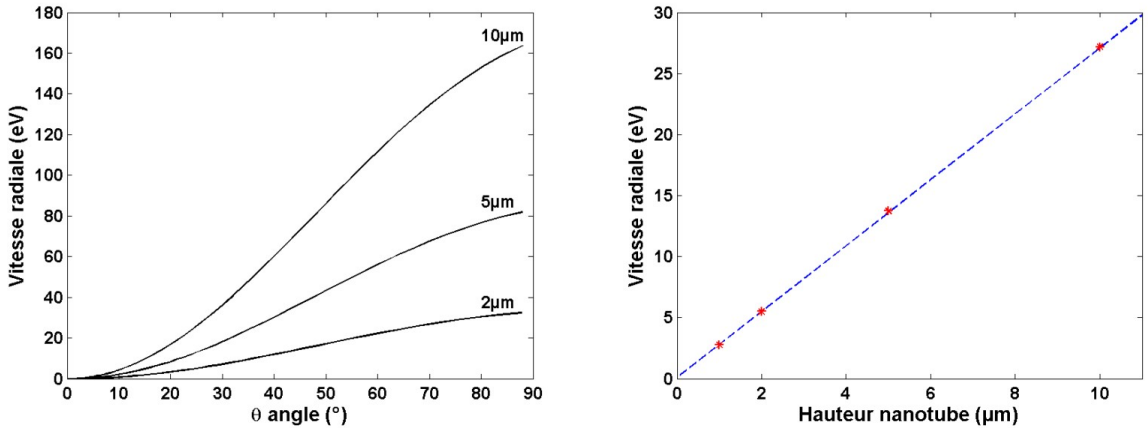
Pour analyser ce problème, le logiciel CPO ('*Charged Particle Optics*') est utilisé sur un modèle à symétrie cylindrique analogue à la figure 3.8. A la différence de notre précédente approche, la méthode numérique qui est employée dans l'algorithme de ce logiciel est basée sur le calcul des charges surfaciques aux frontières du domaine. Dans ce cas, seuls les contours du domaine sont maillés ce qui constitue un gain important en terme de ressources informatiques. Le potentiel, les champs électriques et les trajectoires électroniques sont ensuite déduites par les lois classiques de l'électrodynamique. Dans ce calcul, nous considérons un nanotube de rapport d'aspect 200 et un champ électrique macroscopique de 20V/µm. Pour mettre en évidence un point important de notre analyse, plusieurs hauteurs de nanotube seront étudiées.

Pour commencer, nous considérons les trajectoires de 4 électrons issus du sommet d'un nanotube de 5µm de hauteur. Leur position au sommet est repéré par l'angle d'apex θ. On affiche la variation de leur vitesse radiale en fonction de la distance à au sommet du nanotube sur la figure 3.13b. Pour chaque trajectoire, on constate que la vitesse radiale augmente fortement au voisinage du sommet puis qu'un régime stationnaire est atteint après quelques

dizaines de rayons. Cette caractéristique est la conséquence de la présence de la composante radiale du champ électrique représentée sur la figure 3.9b. Dès que l'électron traverse cette zone proche du nanotube, il est soumis à l'influence de cette composante et sa vitesse radiale augmente. Dès lors qu'il s'éloigne suffisament du sommet, cette composante radiale s'annule et la vitesse radiale acquise reste donc constante. Cette vitesse sera d'autant plus importante si l'angle d'émission se situe dans la zone de fort champ radial correspondant aux forts angles au sommet.

Il est ensuite possible de considérer plusieurs hauteurs de nanotube et de calculer la variation des vitesses radiales dans le régime stationnaire en fonction de l'angle d'émission au sommet du nanotube. Les résultats obtenues sont présentés sur la figure 3.14a. On remarque que les vitesses radiales sont dépendantes de la hauteur du nanotube et qu'elle peuvent atteindre des valeurs importantes, supérieures à 100 eV dans le cas d'un nanotube de 10µm de hauteur. Toutefois, nous savons que toutes les trajectoires électroniques considérées ne portent pas le même courant. Par exemple, celles dont l'angle d'émission dépasse 50° peuvent être pratiquement négligées relativement à celles émises au voisinage de 26°. Afin de calculer la vitesse radiale moyenne, la relation 3.12 est utilisée pour pondérer la vitesse de chaque trajectoire par son courant élémentaire. Ainsi la vitesse moyenne est donnée par la formule suivante :

$$\langle v_r \rangle = \frac{\int v_r(\theta,\phi)\, dI(\theta,\phi)}{\int dI(\theta,\phi)}$$



(a) (b)

FIGURE 3.14 – (a) Vitesses radiales électroniques en fonction de l'angle d'émission au sommet du nanotube. (b) Vitesses radiales moyennes en fonction de la hauteur du nanotube.

La figure 3.14b synthétise les valeurs obtenues pour des nanotubes de différentes tailles.

$$\boxed{\begin{array}{c} v_r = ah + b \\ avec \quad a = 2.7eV/\mu\text{m} \quad et \quad b = 0.09eV \end{array}} \tag{3.13}$$

La dépendance de la vitesse radiale en fonction de la hauteur des nanotubes est linéaire. L'origine de cette relation peut-être comprise qualitativement. En raison de la forme des équipotentielles au sommet du nanotube, les vitesses radiales sont acquises dans une zone

qui est très proche de l'apex du nanotube. Dans cette zone, située à une distance h depuis le substrat, les électrons sont accélérés du potentiel du nanotube jusqu'à un potentiel approximativement égal à hE_{macro}, avec E_{macro} le champ macroscopique appliqué. Dans cette région, les vitesses électroniques sont donc proportionnelles à la hauteur du nanotube. Par conséquent, les vitesses transverses suivent cette dépendance. Ce raisonnement indique que même si l'apex n'est pas parfaitement sphérique, une dépendance équivalente doit s'appliquer. Par conséquent, le résultat que nous avons obtenu est très général et s'applique à tout type de cathode.

Il est intéressant de constater que les vitesses radiales approchant les quelques eV sont obtenues pour des nanotubes de 1µm. Ces valeurs se rapprochent davantage des valeurs typiquement associées aux cathodes thermoïoniques qui sont de l'ordre de 0.1eV à 1000°C. Cela montre qu'une gestion des vitesses radiales est possible avec les cathodes froides de manière à assurer leur compatibilité avec les systèmes de focalisation électromagnétique des tubes électronique.

Il est également important de noter que cette étude omet la prise en compte d'une grille d'extraction électronique. Comme cela a été précisé dans le chapitre 1, les grilles d'extractions sont des éléments indispensables dans les dispositifs à cathodes froides. Elles permettent d'extraire les électrons avec des tensions, comprises entre quelques dizaines et quelques milliers de volts. Mais la configuration des équipotentielles dans leur voisinage forme des matrices de lentilles électrostatiques défocalisantes qui induisent une dispersion importante des vitesses radiales. Deux points sont donc à noter par rapport au travail effectué :

- La miniaturisation des dimensions associée au design du tube THz a permis de s'affranchir d'une grille externe. Ainsi l'anode de Pierce sera directement en regard de la cathode dans le canon électronique. Cela rend donc nos calculs pertinents dans le cadre de cette approche.
- Toute grille peut être associée à une fonction de transfert permettant de relier linéairement les vitesses avant et après transmission. Par conséquent, le bénéfice de la réduction des vitesses radiales profite également aux systèmes avec grilles d'extractions.

3.2.4 Émission de champ d'une cathode à nanotubes

La compréhension des propriétés d'émission de champ à l'échelle d'une cathode s'appuie sur l'étude individuelle qui vient d'être présentée. Elle fait néanmoins apparaître de nouvelles problématiques qui nécessitent la prise en compte du caractère collectif de l'émission de champ. Dans cette partie, nous allons aborder les principes du dimensionnement d'une cathode traditionnelle et en explorer les limites.

3.2.4.1 L'écrantage électrostatique

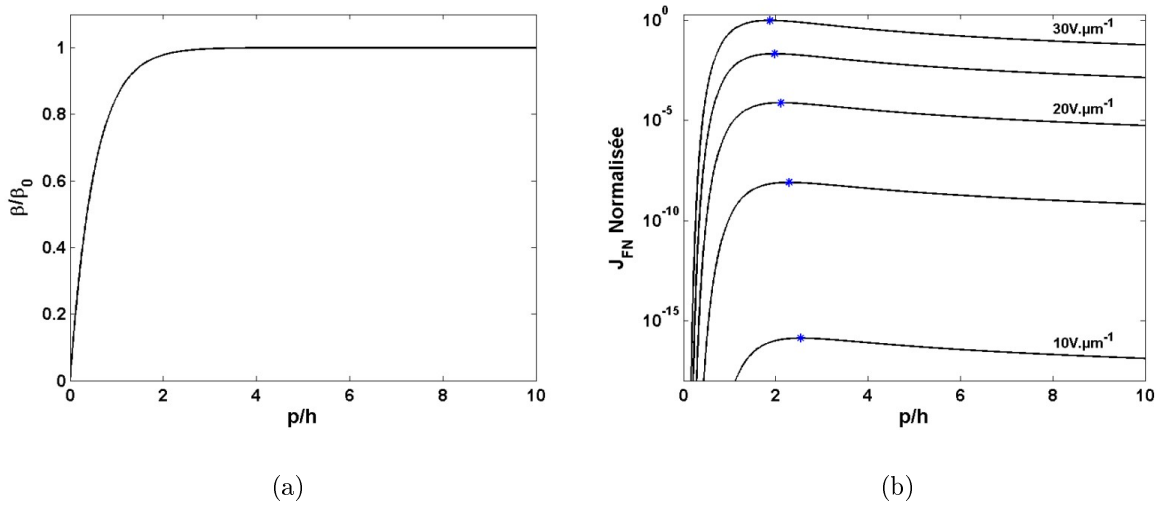
Pour appréhender le phénomène d'écrantage électrostatique, commençons par considérer un nanotube vertical de rapport d'aspect égal à 200, d'une hauteur de 5µm sous un champ macroscopique de 20V/µm. Il a été précédemment calculé que ce nanotube isolé possède un facteur d'amplification maximum β_{max} de 140. Pour la suite du manuscrit, on pose $\beta_{max}=\beta$. Considérons ensuite un second nanotube strictement identique au premier et éloigné de celui-ci d'une distance d. Si d est infiniment faible, les deux nanotubes voisins tendent à former une structure possédant un rapport d'aspect global plus faible que dans le cas individuel. Ce régime, dit d'écrantage électrostatique, conduit à un affaiblissement des facteurs d'am-

plifications individuels. En revanche, si d est infiniment grand, chaque nanotube retrouve indépendamment son facteur d'amplification optimum. Le passage d'un régime à l'autre n'est pas abrupte et la limite qui les sépare les deux constitue la limite d'écrantage.

Cette limite est importante car un affaiblissement du facteur d'amplification conduit à une augmentation du champ macroscopique pour maintenir un courant d'émission constant. Nous rappelons que cette augmentation est problématique pour les éléments des tubes électroniques sensibles aux claquages. Pour découvrir la limite du régime d'écrantage, il a été calculé par Minoux [35] que la dépendance du facteur d'amplification β relativement au pas d'un réseau de maille carré de nanotube orientés était donnée par la loi suivante :

$$\boxed{\frac{\beta}{\beta_0} = 1 - exp\left(-1.917\frac{p}{h}\right)} \tag{3.14}$$

Avec p le pas du réseau, h la hauteur d'un tube et β_0 le facteur d'amplification du nanotube isolé. La variation de cette loi en fonction de p/h est affichée dans la figure 3.15a.



(a) (b)

FIGURE 3.15 – (a) Variation du facteur d'amplification normalisé en fonction du pas normalisé. (b) Variation de la densité de courant normalisée en fonction du pas normalisé.

Champ macroscopique constant : En substituant cette loi dans la relation de Fowler-Nordheim et en procédant à une analyse à champ macroscopique constant, on trouve un optimum dans l'évolution de la densité de courant de la cathode en fonction du rapport p/h. Cela est illustré sur la la figure 3.15b où la dépendance en fonction du champ macroscopique est également reportée.

Plaçons nous sur le point optimum de la courbe à 20V/µm pour étudier la variation de la densité de courant. En diminuant le rapport p/h depuis ce point, les nanotubes commencent à s'écranter entre proches voisins et réduisent ainsi le champ d'apex appliqué sur chacun d'entre eux. D'après la loi de Fowler-Nordheim cela induit une diminution de la densité de courant globale. En augmentant le rapport p/h, le nombre de nanotubes par unité de surface diminue à la surface de la cathode. Par définition, cela conduit à un abaissement

de la densité de courant. Durant l'émission de champ, les champs macroscopiques peuvent varier entre 20V/µm et 30V/µm. Cela correspond donc à une limite d'écrantage qui doit vérifier la relation suivante :

$$\boxed{p \approx 2h} \tag{3.15}$$

Champ d'apex constant : Le résultat ci-dessus donne explicitement la frontière du régime d'écrantage. Mais nous devons noter que le régime d'écrantage n'est pas rédhibitoire pour l'optimisation du fonctionnement de la cathode. Pour le comprendre, envisageons un raisonnement à champ d'apex constant depuis le point optimum de la courbe à 20V/µm. Depuis ce point, un décalage de p/h vers les faibles valeurs scorrespond donc à un gain en densité de courant proportionnel à $1/h^2$. Le couple de valeurs $(p/h, Jgain)$ permet ainsi de déterminer le nouveau champ macroscopique appliqué. Les courbes résultantes de cette approche sont présentées dans le diagramme 3.16. Il est intéressant de constater que, dans le cas d'un réseau parfaitement uniforme, un gain appréciable en densité de courant peut être obtenu au prix d'une élévation raisonnable du champ macroscopique. Par exemple, on observe que si la période du réseau est fixée telle que $p = h$ alors un gain de 4 est obtenu sur la densité de courant au prix d'une élévation du champ de 21V/µm à 22.5V/µm

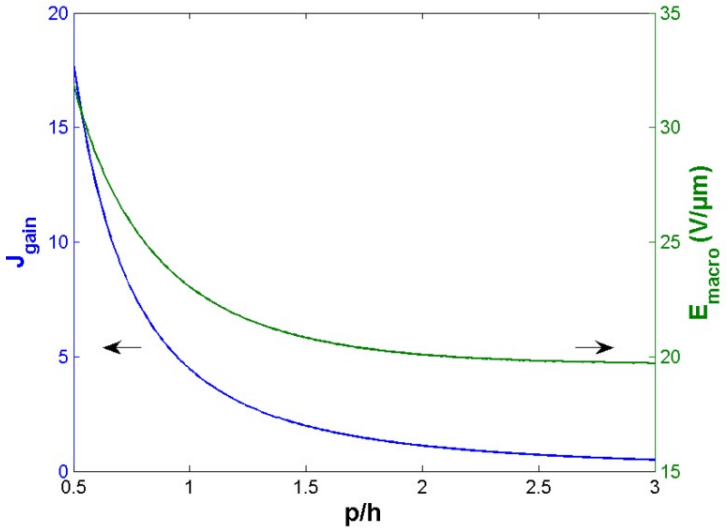


FIGURE 3.16 – Variation du gain en densité de courant et du champ macroscopique appliqué en fonction du pas normalisé.

3.2.4.2 Impact du raccourcissement des émetteurs à β constant

Pour compléter nos remarques sur le raccourcissement des émetteurs, nous considérons l'impact de cette modification géométrique sur la densité de courant maximale émise par une cathode. Pour cela, la notion de limite de fonctionnement de la cathode est définie par la dégradation thermique des nanotubes par effet joule.

Pour rendre compte de ce phénomène, on calcule la différence de température entre l'apex du nanotube et le substrat à partir du modèle 1D de l'équation de la chaleur. On suppose alors en 1ère approximation que toute la chaleur est déposée au sommet du nanotube. On

peut alors exprimer la relation suivante :

$$T_{apex} = T_{sub} + \frac{1}{2} R_{th} P_{diss} = T_{sub} + \frac{1}{2} \left[\rho_{th} \left(\frac{h}{S} \right) \right] \left[\rho_{el} \left(\frac{h}{S} \right) I_{cnt}^2 \right]$$

Avec T_{sub} la température du substrat, P_{diss} la puissance dissipée par effet Joule, R_{th} la résistance thermique, ρ_{th} la résistivité thermique, R_{el} la résistance éléctrique, ρ_{th} la résistivité électrique, h la hauteur du nanotube, S la surface de sa section. Ce qui mène à :

$$T_{apex} = T_{sub} + \frac{1}{2} \rho_{th} \rho_{el} \left(\frac{h}{S} \right)^2 I_{cnt}^2$$

Soit avec $\beta = 0.7h/r$ et $J_{cathode} = I_{cnt}/p_x p_y$, on obtient :

$$\boxed{J_{cathode} = \frac{0.7\pi r}{\beta} \frac{1}{p_x p_y} \sqrt{\frac{2\left(T_{apex} - T_{sub}\right)}{\rho_{th}\rho_{el}}}} \tag{3.16}$$

Avec p_x et p_y respectivement les périodes du réseau de nanotube dans les directions Ox et Oy. Soit en prenant $p_x = p_y = 2h$, on obtient :

$$J_{cathode} = \frac{\pi}{8\beta^2} \frac{1}{h} \sqrt{\frac{2\left(T_{apex} - T_{sub}\right)}{\rho_{th}\rho_{el}}} \tag{3.17}$$

L'équation 3.17 offre une perspective très intéressante pour les cathodes à nanotubes à maille carré ou hexagonale. Si on étudie cette relation à rapport d'aspect constant (i.e. β constant) et température d'apex constante, on remarque la proportionnalité de la densité de courant avec l'inverse de la hauteur du nanotube. Dans ces conditions, l'équation indique que la densité de courant de la cathode pourra être augmentée dans les mêmes proportions que les nanotubes seront raccourcis. Elle permet également d'avoir accès à la densité de courant maximale si la température d'apex est fixé à la température de destruction.

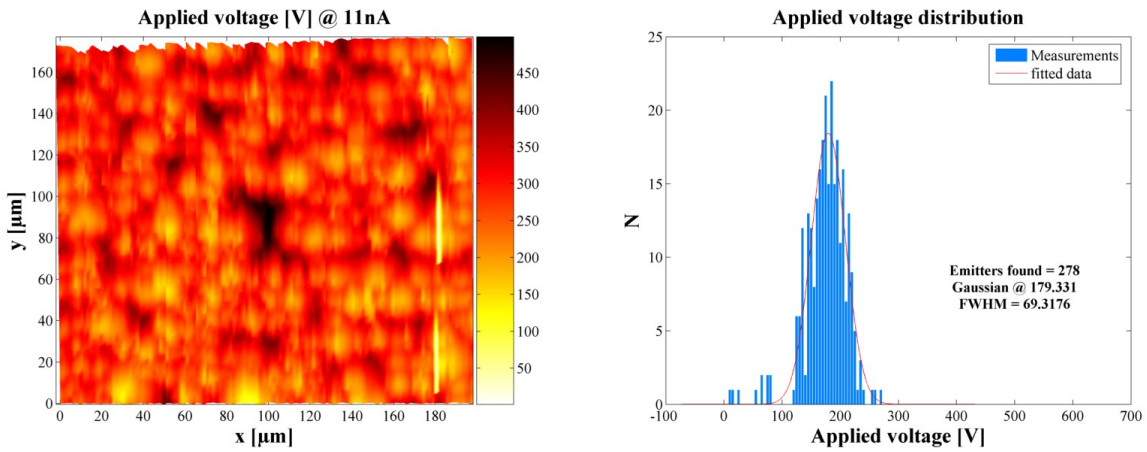
3.2.4.3 La dispersion du rapport d'aspect

Dans le réseau précédent, les nanotubes ont été considérés comme une assemblée d'émetteurs de géométries strictement équivalentes. En pratique cela n'est pas le cas. En effet, le processus de croissance PECVD induit toujours de faibles différences de hauteurs et de diamètres entre les nanotubes. La mise en évidence de cette dispersion a été réalisée par Minoux [35] à l'aide d'un dispositif spécifiquement dédié à l'étude locale des cathodes froide : un Microscope à Emission de Champ à Balayage (en anglais Scanning Field Emission Microscope = SAFEM).

Cet appareil permet de déplacer une pointe métallique polarisée à proximité d'une cathode à distance fixe (typiquement 15µm). Au cours du scan, la tension de la pointe est asservie pour maintenir un courant constant dans le circuit de mesure. Cela garantit donc qu'un champ d'apex approximativement constant soit appliqué sur chaque nanotube. Il est alors possible d'établir des cartographie de l'évolution de la tension de pointe à la surface de la cathode pour ainsi déterminer l'écart type de la mesure collective. Un exemple d'une telle cartographie est donné sur la figure 3.17. Les inhomogénéités du potentiel sont clairement visibles et reflètent directement la variabilité du facteur d'amplification sur l'ensemble de la cathode. Au cours d'études précédentes [35, 36], il a été remarqué que la loi de dispersion

était du type gaussien et que la largeur à mi hauteur de la distribution atteignait typiquement ±25% de sa valeur centrale. Il est à noter que dans de bonnes conditions ces largeurs peuvent atteindre ±7% [37].

Au vu de ce résultat, il est possible de comprendre le comportement d'une cathode sous un champ électrique uniforme. Pour cela, il est nécessaire de rappeler que dans la gamme de rapport d'aspect qui intéresse cette étude, la loi de Fowler-Nordheim engendre une variation du courant d'un facteur 10 pour une variation de 15% du champ électrique. Ainsi la dispersion de ±25% engendre une inhomogénéité de l'émission à la surface de la cathode. Seuls les quelques nanotubes au rapport d'aspect important participent à l'émission. Cependant, il est admis que cette situation ne constitue pas un réel optimum de courant. En augmentant la tension, le courant circulant dans ces meilleurs émetteurs vient à provoquer leur dégradation par destruction thermique. Après avoir éliminé ces bons candidats, il devient possible de faire participer un plus grand nombre d'émetteurs au centre de la gaussienne et ainsi d'améliorer le courant émis par la cathode.



(a) (b)

FIGURE 3.17 – (a) Cartographie réalisée par un SAFEM. (b) Statistique des tensions locales appliquées sur cette cathode. (N = nombre de nanotubes).

3.2.5 Conclusion

Dans cette partie, nous avons décrit le phénomène d'émission de champ en nous appuyant sur la théorie de Fowler-Nordheim. Nous avons ainsi discuté la validité fréquentielle de ce modèle dans le cas d'une modulation à 1.55µm. Cette analyse nous a permis d'explicité les équations des composantes non-linéaire du courant émis qui permettront le calcul des performances de la cathode THz.

Ensuite, nous avons effectué la modélisation du champ électrique et du courant au sommet d'un nanotube à sommet hémisphérique. Ces calculs nous ont permis de dégager une compréhension générale de l'émission du courant des nanotubes notamment pour l'étude de la vitesse radiale du faisceau électronique. Cette étude aura ainsi démontré et quantifié l'intérêt de tendre vers des nanotubes courts et fins pour minimiser la divergence des faisceaux

émis par les cathodes froides.

En étudiant les caractéristiques életroniques des cathodes à nanotubes, le raccourcissement des émetteurs a été également envisagé. Celui-ci permettrait d'accroitre le courant émis par la cathode proportionnellement à l'inverse de la hauteur des nanotubes. La mise en évidence de cette caractéristique permet de confirmer l'intérêt des nanotubes courts et fins pour les cathodes.

Nous verrons dans la troisème partie de ce chapitre que la cathode THz impose l'utilisation de ce type de nanotubes. Par conséquent, malgré les contraintes technologiques que ce choix imposera, nous venons de montrer qu'il contribuera à améliorer significativement les performances de notre cathode.

3.3 Couplage onde-nanotube

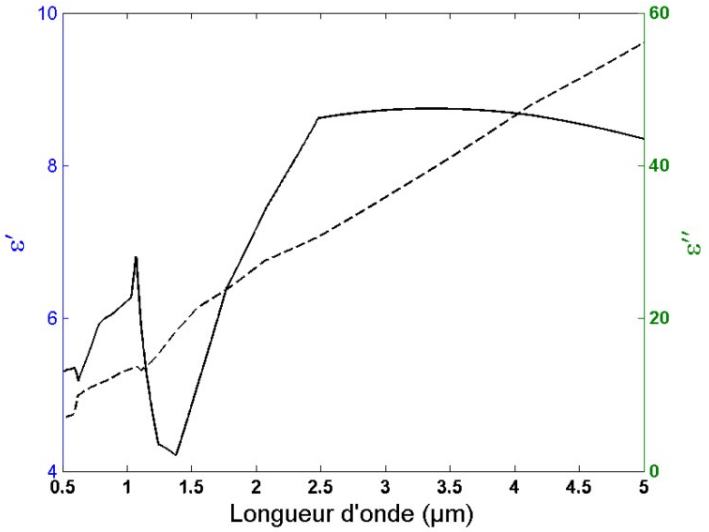
3.3.1 Introduction

Dans cette partie, nous allons traiter du transfert de l'énergie transportée par les ondes de surface et les électrons transportés par les nanotubes. Pour cela, nous serons amené à employer l'expression de "couplage" que nous allons expliciter.

Le couplage : Le couplage d'une onde électromagnétique avec un matériau caractérise l'énergie de l'onde qui est transférée à celui-ci sous la forme de courants induits. En électromagnétisme, l'induction électrique est représentée par la grandeur D qui mesure la quantité de charges déplacées par élément de surface. Elle est proportionnelle au champ électrique E et à la permittivité qui est notée $\epsilon = \epsilon_0\epsilon_r$, avec ϵ_0 la permittivité du vide. La permittivité relative $\epsilon_r(\omega) = \epsilon_r'(\omega) + j\epsilon_r''(\omega)$ est une grandeur intrinsèque à chaque matériau qui caractérise le déplacement collectif des électrons. La partie imaginaire de la permittivité est positive et caractérise les pertes du matériau (la densité de puissance absorbée dans le matériau lui est proportionnelle). En cela, elle n'intéresse pas directement le couplage mais doit rester suffisamment faible pour que le matériau ne soit pas trop absorbant. La partie réelle est quant à elle purement reliée à l'écrantage électronique comme l'indique l'équation de dispersion des ondes $\epsilon_0\mu_0\epsilon_r\omega^2 = K^2$. Si ϵ_r' est positif, le vecteur K est réel et il y a alors propagation dans le matériau tandis que si ϵ_r' est négatif, l'onde se couple aux électrons du matériau et subit un écrantage qui l'amortit exponentiellement.

Le nanotube multi-parois : La description du nanotube de carbone multi-parois a été précisée dans l'introduction de ce chapitre. Il est composé de feuillets de graphène enroulés autour d'un même axe. A la différence du nanotube mono-paroi, ses caractéristiques optiques sont mal connues en raison de son arrangement cristallographique complexe. Pour aborder simplement le problème le graphe 3.24 porte la permittivité relative du graphite pour une polarisation parallèle aux plans en fonction de la longueur d'onde dans le proche infrarouge. Sur cette plage spectrale, on constate que ϵ' est positif et que le graphite se comporte donc comme un diélectrique. Cela rend impossible le couplage d'un champ électromagnétique à ces longueurs d'onde avec un substrat massif de graphite.

Sur la base de cette première constatation, l'hypothèse d'une absence totale de couplage électromagnétique avec nos nanotubes a été envisagée. Celle-ci nous a conduit à examiner le couplage avec le catalyseur de croissance qui est au sommet du nanotube. Les résultats



(a)

FIGURE 3.18 – Partie réelle ϵ' (courbe continue) et imaginaire ϵ'' (courbe pointillée) de la permittivité du graphite dans le proche infrarouge pour une polarisation parallèle aux plans (d'après Palik [38])

obtenus seront présentés dans la première partie de notre étude. Toutefois, les propriétés des matériaux nanométriques sont souvent très différentes du matériau massif. Par conséquent, on examinera le phénomène de couplage d'antenne avec les nanotubes dans une seconde partie. Cette hypothèse sera supportée par les résultats de la littérature récente.

3.3.2 Couplage optique avec le catalyseur

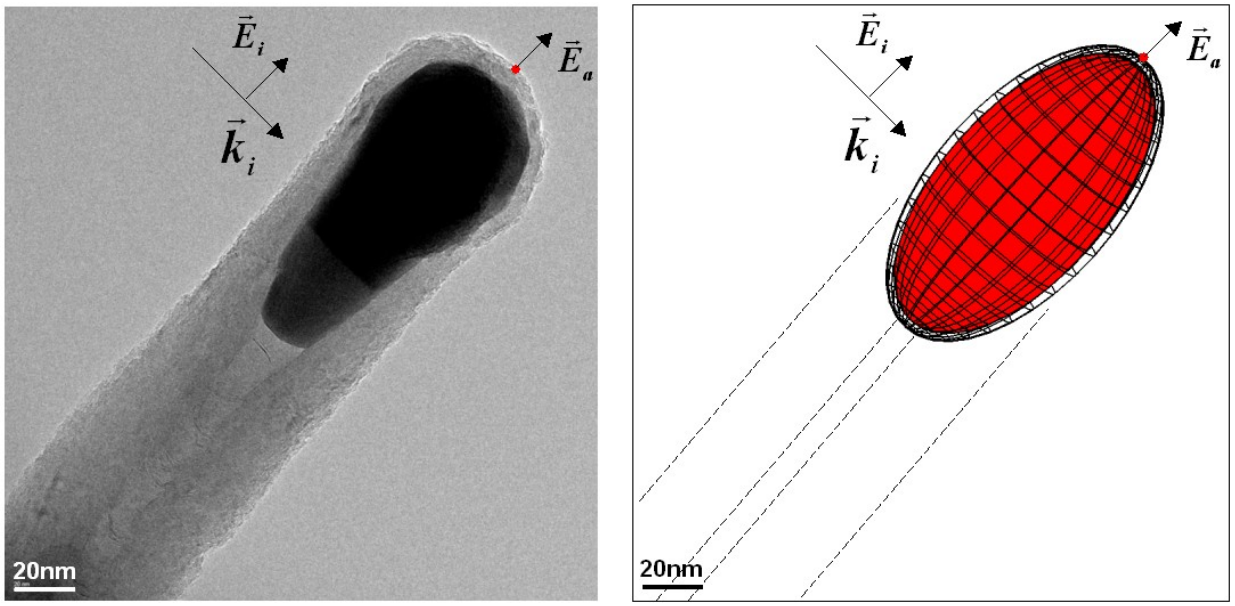
Afin de débuter cette première analyse du couplage, il est important de rappeler que les nanotubes considérés dans cette étude sont issus d'une croissance par la méthode PECVD. Cela leur confère certaines spécificités, notamment celle de conserver leur particule catalytique au sommet de leur structure au cours de la croissance. Les diverses études consacrées aux croissances en phase vapeur des nanotubes ont montré que ces catalyseurs pouvaient être en nickel, colbalt, fer ou formés d'un alliage de ces trois éléments. Dans le cas particulier de notre croissance, le catalyseur est en nickel.

La particule est donc ici formée d'un seul métal et se situe à proximité immédiate de la jonction tunnel au sommet du nanotube. Ce caractère métallique devrait ainsi avoir un impact important pour définir la composante optique du champ électrique au niveau de la jonction. Pour évaluer cette composante, une modélisation a été effectuée en approchant la forme de la particule par un ellipsoide de type prolate. Les ellipsoïdes prolate sont caractérisés par leur géométrie en forme de ballon de rugby. La figure 3.19 met en regard la conformation typique d'un sommet de nos nanotubes vu au TEM sur l'image (a) avec le modèle qui est considéré sur l'image (b) : un ellipsoïde prolate de rapport d'aspect 2. Ici le rapport d'aspect est défini comme le quotient du demi grand-axe par le demi petit-axe de l'ellipsoïde. Il semble que les formes soient suffisamment voisines pour considérer que le résultat final de la

modélisation sera une bonne approximation de la réalité [1]. Cette approximation géométrique présente l'avantage de permettre un calcul analytique du facteur d'amplification à l'apex noté β_{opt} :

$$\beta_{opt}(\omega) = \frac{|E_{apex}(\omega)|}{|E_{incident}(\omega)|}$$

Avec E_{apex} le champ électrique à l'apex de la particule et du champ incident $E_{incident}$.



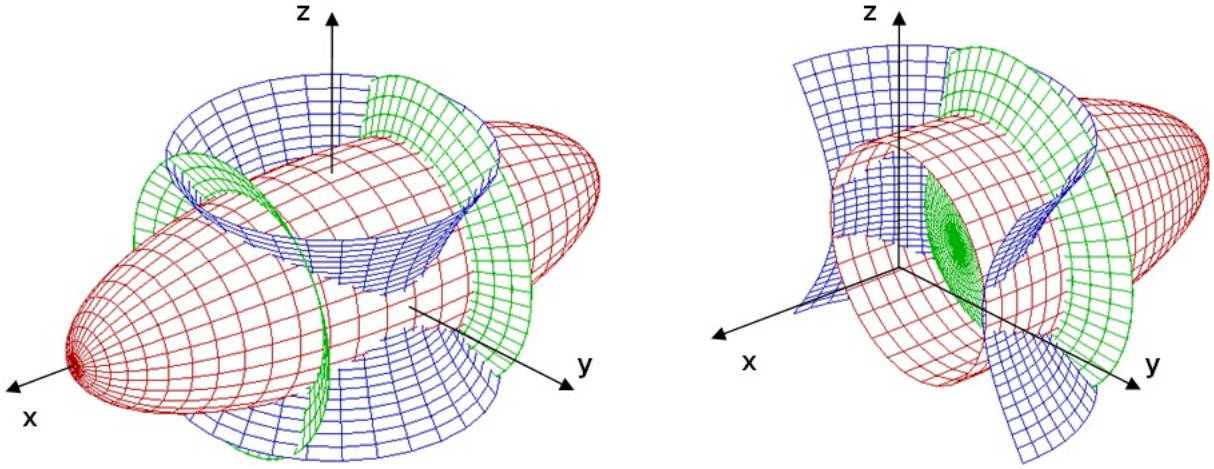
(a) (b)

FIGURE 3.19 – (a) Image d'un nanotube prise au Microscope Électronique à Transmission. (b) Schématisation de l'approximation effectuée avec un ellipsoïde prolate recouvert d'une couche diélectrique.

3.3.2.1 Description du modèle

Généralités : Le modèle qui est considéré se place dans l'approximation de Rayleigh nécessitant que les dimensions de l'objet étudié soient beaucoup plus faibles que la longueur d'onde utilisée. Typiquement, le rapport entre la longueur d'onde et la plus grande dimension de la particule doit être supérieur à 10. Dans ce cas, le problème revient à déterminer le champ électrique à la surface d'une particule ellipsoïdale induit par un champ électrique uniforme. On peut alors se placer dans l'approche électrostatique et résoudre le potentiel électrique de la particule par l'équation de Laplace. Pour effectuer ce calcul de manière analytique, il est nécessaire d'utiliser le système de coordonnées ellipsoïdales qui permet d'épouser le profil de la particule.

1. Pour compléter la discussion sur la forme du catalyseur, le lecteur pourra se reporter à la partie 4.3.2.2 du chapitre 4.



(a) (b)

FIGURE 3.20 – Représentation du système de coordonnées ellipsoïdales dans le repère cartésien avec (a) vue entière et (b) vue tronquée de trois surfaces $\xi = cst$, $\eta = cst$, $\zeta = cst$.

Coordonnées ellipsoïdales : Les coordonnées ellipsoïdales (ξ, η, ζ) sont définies telles que :

$$\frac{x^2}{a_1^2+\xi} + \frac{y^2}{b_1^2+\xi} + \frac{z^2}{c_1^2+\xi} = 1 \quad -c_1^2 < \xi < \infty$$

$$\frac{x^2}{a_1^2+\eta} + \frac{y^2}{b_1^2+\eta} + \frac{z^2}{c_1^2+\eta} = 1 \quad -b_1^2 < \eta < -c_1^2$$

$$\frac{x^2}{a_1^2+\zeta} + \frac{y^2}{b_1^2+\zeta} + \frac{z^2}{c_1^2+\zeta} = 1 \quad -a_1^2 < \zeta < -b_1^2$$

Avec a_1, b_1 et c_1 respectivement les dimensions des demi-axes de l'ellipsoïde dans les 3 dimensions d'espace Ox, Oy et Oz. Notons que deux des demi-axes b_1 et c_1 doivent être égaux pour que l'ellipsoïde soit prolate. Les surfaces ξ représentent les ellipsoïdes confocaux, les surfaces η représente les hyperboloïdes à une nappe et les surfaces ζ représentent les hyperboloïdes à deux nappes. Dans la notation introduite ci-dessus, $\xi = 0$ représente l'ellipsoïde correspondant à la surface de la particule considérée. La figure 3.20 permet de visualiser plus précisément la correspondance entre le système ellipsoïdal et le système carthésien. On constate ainsi qu'à un point (x, y, z) est associé un point (ξ, η, ζ). D'après la figure 3.20, on constate que la réciproque n'est pas vraie puisque à un point (ξ, η, ζ) correspondent huit points (x, y, z), à l'intersection des trois surfaces, symétriquement répartis dans chacun des octants du repère. Toutefois, cette surjectivité n'est pas problématique pour notre modèle puisque si on considère un champ uniforme appliqué selon Ox, la symétrie du champ au voisinage de l'ellipsoïde permet de considérer la résolution dans un unique octant.

La solution de l'équation de Laplace pour le potentiel électrique peut ainsi être calculée dans cette nouvelle base. En principe, cela nécessiterait le développement de la solution sous la forme d'une série infinie d'harmoniques ellipsoïdales mais il est possible de simplifier le problème par séparation des variables. Nous utilisons pour cela l'approche détaillée par

Borhen et Huffman [39]. Nous considérons donc que les fonctions solutions sont de la forme suivante :

$$\Phi = F(\xi)G(\eta,\zeta)$$

Dont les fonctions $F(\xi)$ vérifient l'équation de Laplace reformulée dans le nouveau système de coordonnées :

$$f(\xi)\frac{d}{d\xi}\left\{f(\xi)\frac{dF}{d\xi}\right\} - \left(\frac{b^2+c^2}{4}+\frac{\xi}{2}\right)F(\xi) = 0$$

Avec $f(\xi) = \sqrt{(\xi+a^2)(\xi+b^2)(\xi+c^2)}$

3.3.2.2 Ellipsoïde sans revêtement :

Le potentiel à l'intérieur de la particule métallique est noté Φ_1. A L'extérieur, on considére le potentiel généré par l'onde incidente Φ_0 ainsi que le potentiel généré par la particule Φ_p.

$$\begin{cases} \Phi_0 = -E_0F_1(\xi)G(\eta,\zeta) \\ \Phi_1 = C_1F_1(\xi)G(\eta,\zeta) \\ \Phi_p = C_2F_2(\xi)G(\eta,\zeta) \end{cases}$$

Le calcul des coefficients C_1 et C_2 s'effectue en exprimant les conditions de continuité du potentiel et de l'induction à la surface de la particule. On obtient finalement l'expression suivante pour le facteur d'amplification :

$$\beta_{opt} = \left|1 - \frac{C_2}{E_0}\left(\frac{dF_2}{d\xi}/\frac{dF_1}{d\xi}\right)\right|$$

En exprimant analytiquement les différentes variables de cette formule, il est possible de réexprimer cette équation en fonction des paramètres du système :

$$\boxed{\beta_{opt} = \left|\frac{\epsilon_1}{\epsilon_3 + (\epsilon_1-\epsilon_3)L_1^{(1)}}\right|} \tag{3.18}$$

Avec ϵ_1 et ϵ_3 respectivement les permittivités du métal et du milieu extérieur, $L_1^{(1)}$ le paramètre dit de dépolarisation défini dans l'ellipsoïde i tel que :

$$L_1^{(i)} = \frac{1-e_i^2}{e_i^2}\left[-1+\frac{1}{2e_i}ln\left(\frac{1+e_i}{1-e_i}\right)\right] \quad avec \quad e_i^2 = 1-\frac{b_i}{a_i}$$

Avec a_i et b_i respectivement les dimensions du grand et du petit axe de l'ellipsoïde i. D'après cette expression, on note que $L_1^{(1)}$ correspond à la contribution purement géométrique du facteur d'amplification de l'ellipsoïde. Celle-ci exprime donc plus particulièrement les propriétés de la particule dans le régime de métal parfait ($\epsilon_1 << 0$). On peut voir effectivement que le facteur d'amplification tend vers $\beta_P = 1/L_1^{(1)}$ dans ce régime. On peut noter que cette expression analytique est en accord avec d'autres approches [40–42].

Pour comprendre la variation du facteur d'amplification depuis le visible jusqu'au régime de métal parfait, nous considérons sur la figure 3.21a la variation de β_{opt} sur la gamme de longueur d'onde entre 500nm et 10µm avec $r = a_1/b_1 = 3$ dans le cas du nickel. Comme pour l'analyse des réseaux métalliques, on distingue une nouvelle fois deux régimes distincts. On observe le régime résonnant dans le visible et proche infrarouge pour lequel le rayonnement se couple avec les oscillations collectives des électrons du métal. Cela permet d'obtenir des

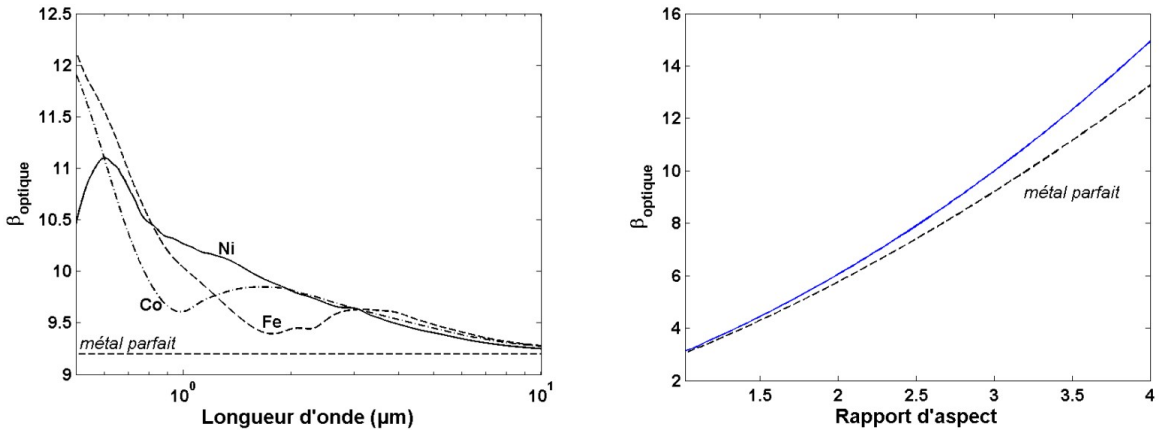


FIGURE 3.21 – (a) Variation de β_{opt} en fonction de la longueur d'onde pour des particules de nickel, cobalt et fer dans le cas $a_1/b_1 = 3$. (b) Variation de β_{opt} à 1.55µm en fonction du rapport d'aspect. La ligne droite pointillée correspond à l'amplification dans le cas métal parfait

facteurs d'amplifications qui peuvent être très importants, jusqu'à plusieurs centaines dans le cas de l'or. Le régime non-résonant est atteint asymptotiquement à mesure que la fréquence diminue. A titre d'exemple, on constate ici que celui-ci semble atteint à 10µm.

Sur la figure 3.21b, nous présentons la variation de $\beta_{opt}(\omega)$ en fonction du rapport d'aspect de la particule à la longueur d'onde de 1.55µm. On remarque que sur la gamme de rapport d'aspect explorés, la valeur de β_{opt} est très proche de sa définition en métal parfait. Pour le rapport d'apex égal à 1, nous obtenons $\beta_{opt} = 3$, ce qui est le résultat attendu pour l'amplification par une sphère [40]. Dans notre cas, pour les particules dont le rapport d'aspect est typiquement compris entre 2 et 3, nous voyons que l'amplification attendue se trouve entre le 6 et 10. Toutefois, cela ne tient pas compte de l'environnement diélectrique de la particule avec notamment la présence de graphite comme le montre la photo 3.19.

3.3.2.3 Ellipsoïde avec revêtement

Pour tenir compte de cet environnement, on pose $\xi = t$ l'ellipsoïde correspondant à la surface d'un matériau déposé à la surface de la particule avec $a_1^2+t = a_2^2$, $b_1^2+t = b_2^2$, $c_1^2+t = c_2^2$. En conséquence du modèle utilisé, le dépôt considéré suit la surface d'un ellipsoïde confocal avec celui de la particule catalytique. L'épaisseur du revêtement n'est donc pas constante sur l'ensemble de la particule. Si de correspond à l'épaisseur du revêtement sur le flanc de la particule prolate avec $de = b_2 - b_1$, alors la confocalité impose selon Ox une épaisseur égale à :

$$a_2 - a_1 = \frac{b_2 + b_1}{a_2 + a_1} de \underbrace{\approx}_{de<<b_1} \frac{b_1}{a_1} de$$

Il est donc important de noter que le plasma formé durant la croissance tend à produire naturellement se type d'anisotropie pour le graphite déposé autour des particules catalytiques. Cet effet est le résultat de la gravure par les ions du plasma.

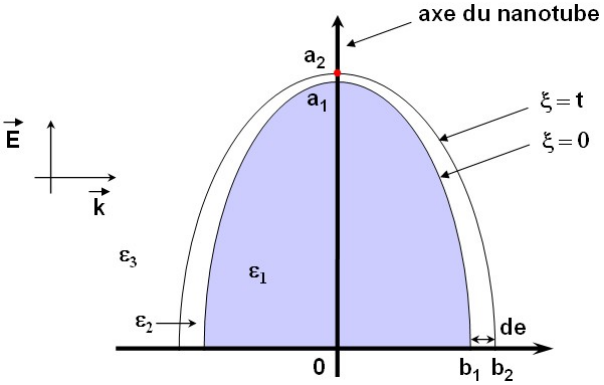


FIGURE 3.22 – Vue Schématique du problème de l'ellipsoïde avec revêtement. Le point rouge représente le point où le champ électrique est calculé.

Pour compléter la précédente approche, il est nécessaire d'exprimer le potentiel au sein du revêtement de la particule Φ_2 et de redéfinir Φ_p pour la description du potentiel à l'extérieur de la particule :

$$\begin{cases} \Phi_2 = (C_2F_1(\xi) + C_3F_2(\xi))G(\eta,\zeta) \\ \Phi_p = C_4F_2(\xi)G(\eta,\zeta) \end{cases}$$

On peut ainsi écrire la nouvelle définition du facteur d'amplification optique :

$$\beta_{opt}(\omega) = \left|1 - \frac{C_4}{E_0}\left(\frac{dF_2}{d\xi}/\frac{dF_1}{d\xi}\right)\right|$$

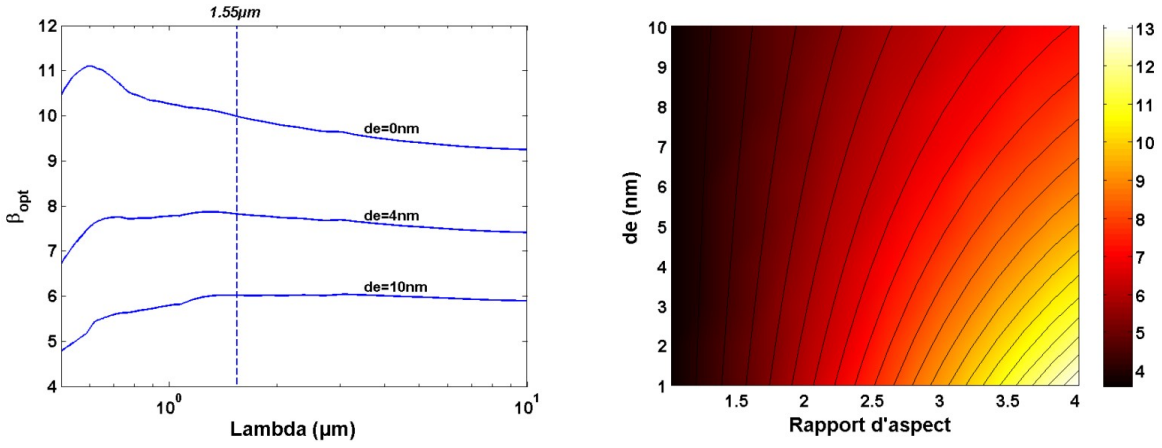
En exprimant analytiquement toutes ces quantités, il est possible de réexprimer cette équation en fonction des paramètres du système, soit avec $f = (a_1b_1c_1)/(a_2b_2c_2)$:

$$\boxed{\beta_{opt} = \left|\frac{\epsilon_2[\epsilon_2 + (\epsilon_1-\epsilon_2)(L_1^{(1)} - fL_1^{(2)})] + f\epsilon_2(\epsilon_1-\epsilon_2)}{[\epsilon_2 + (\epsilon_1-\epsilon_2)(L_1^{(1)} - fL_1^{(2)})][\epsilon_3 + (\epsilon_2-\epsilon_3)L_1^{(2)}] + fL_1^{(2)}\epsilon_2(\epsilon_1-\epsilon_2)}\right|} \quad (3.19)$$

La figure 3.23a présente l'influence de l'épaisseur d'une couche graphitique à la surface d'un ellipsoïde prolate sur le facteur d'amplification optique. On constate une diminution notable du facteur d'amplification. Si initialement la valeur de celui-ci est identique à celle du cas sans revêtement, elle chute progressivement jusqu'à 6 avec l'épaississement du revêtement. Cette affaiblissement est dû à l'éloignement de la zone de localisation de charges ainsi qu'aux pertes diélectriques dans le revêtement de surface. Les rapports d'aspect et épaisseur de revêtement des particules sont variables à l'échelle de la cathode. Nous présentons donc sur la figure 3.23b l'impact des variations de r et de sur la dispersion du facteur d'amplification. On relève des valeurs comprises entre 5 et 9 pour des revêtements compris entre 4 et 7nm et des rapports d'aspect compris entre 2 et 3.

3.3.3 Les nanotubes multiparois comme antenne optique

Comme cela a été précédemment indiqué, un substrat plan de graphite illuminé par un faisceau laser polarisé parallèlement aux plans graphitiques ne semble pas en mesure de permettre un couplage électromagnétique. Cependant, les propriétés des objets nanoscopiques



(a) (b)

FIGURE 3.23 – (a) Variation β_{opt} en fonction de la longueur d'onde. (b) Variation de β_{opt} en fonction de l'épaisseur du revêtement *de* et le rapport d'aspect de la particule à 1.55µm.

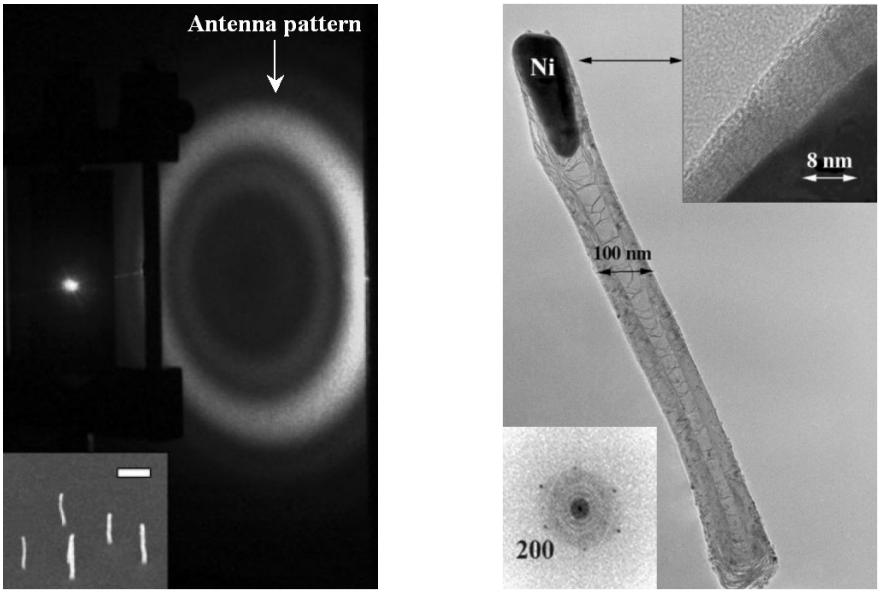
peuvent se révéler considérablement différentes du matériau massif. Une expérience récente de Wang et al [43] montre que cela semble être le cas avec les nanotubes PECVD. En éclairant à 532nm, un réseau aléatoire de tels nanotubes comme présenté dans l'insert de la figure 3.24a, ils purent mettre évidence différentes caractéristiques spécifiques à un réseau d'antennes aléatoire :

- la sensibilité à la polarisation de l'onde incidente.
- la quantification du vecteur d'onde ($L = n_{eff}\lambda/2$).
- les lobes de rayonnement similaires à ceux d'une assemblées de nano-antennes aléatoires.

Comme nos nanotubes sont produit dans les mêmes conditions que ceux de cette équipe, leurs propriétés structurelles devraient être équivalentes. Par ailleurs, dans l'hypothèse où le caractère métallique des nanotubes obéirait à un comportement de type Drude, leur comportement à 532nm indique que leur pulsation plasma [1] se trouve dans le domaine optique voire UV. Nous devrions donc observer ce caractère métallique à la longueur d'onde de notre laser bi-fréquence ($\lambda = 1.55$µm).

La nature du comportement d'antenne implique que le facteur d'amplification sera fortement dépendant de la géométrie du nanotube. Pour optimiser ce paramètre, il sera important de tenir compte de la loi de quantification du vecteur d'onde dans la direction axiale du nanotube. Celle-ci devrait permettre de déterminer la hauteur des nanotubes de façon à maximiser le facteur d'amplification au sommet. Néanmoins, elle se base sur la connaissance de l'indice effectif dont la détermination est dépendante de la structure du nanotube (orientation des plans, diamètres interne et externe, défauts cristallins). Sa valeur est donc liée aux paramètres de croissance des nanotubes et nécessiterait un étalonnage numérique ou expérimental. Il semble également important de prendre en compte la présence de la particule catalytique ainsi que celle du contact avec le subtrat pour dégager une comprehension complète du comportement d'antenne et de l'amplification.

1. pulsation au delà de laquelle le comportement métallique disparaît au profit du comportement diélectrique



(a) (b)

FIGURE 3.24 – (a) Diagramme d'antenne expérimental provenant d'un réseau aléatoire de nanotubes multi-parois obtenu par Wang et al. (b) image TEM d'un nanotube extrait de ce réseau.

3.3.4 Conclusion

Dans cette partie, nous avons présenté les modalités du couplage entre l'onde de surface et les nanotubes de la cathode. Nous avons ainsi dégagé deux possibilités pour que celui-ci puisse se produire.

Le couplage peut tout d'abord se produire par l'interaction de l'onde avec la particule catalytique en nickel qui se trouve au sommet du nanotube. Une étude analytique de la réponse électromagnétique de cette particule nous a permis de conclure à des facteurs d'amplification pouvant atteindre des valeurs de l'ordre de 5 à 15 suivant le rapport d'aspect de la particule et l'épaisseur de son revêtement diélectrique.

Par ailleurs, sur la base d'une étude bibliographique, nous avons montré que les nanotubes de carbone ayant crûs par PECVD pouvaient se comporter comme des nano-antennes métalliques. Cette caractéristique est importante car elle assure que le transfert d'énergie entre les électrons du nanotube et les ondes de surface aura lieu. Néanmoins, nous n'avons pas dégagé de valeur spécifique du facteur d'amplification associée à ce mécanisme. Une telle démarche nécessiterait l'utilisation d'un appareillage spécifique pour l'étude du champ proche au sommet des nanotubes (du type microscope de champ proche). Nous suggérons donc la réalisation d'une telle étude dans de futurs travaux afin d'optimiser complètement les performances de la cathode THz.

3.4 Structure et performance de la cathode THz

3.4.1 Introduction

Après avoir abordé l'ensemble des briques élémentaires, nous allons discuter de la cathode THz dans son intégralité. Pour cela, nous allons rappeler les contraintes géométriques imposées par le concentrateur afin de déterminer la distribution d'émetteur optimale sur la cathode. Cette analyse sera notamment guidée par les concepts qui ont été développés dans cette partie. Cela nous permettra de discuter des performances de la cathode THz (densité de courant et profondeur de modulation au THz) avant de s'intéresser à sa fabrication dans la partie suivante.

3.4.2 Caractéristiques de la distribution d'émetteurs

Tout d'abord, nous allons analyser la distribution d'émetteurs relativement à la structure du mode qui est confiné à la surface du concentrateur.

3.4.2.1 Association nanotubes-concentrateur

Hauteur des nanotubes : Les ondes de surface qui constituent cette excitation de surface sont exponentiellement décroissantes depuis le substrat métallique sur lequel elles se propagent. Pour qu'un couplage efficace s'effectue au niveau du sommet du nanotube, il est important que la hauteur des nanotubes soit compatible avec cette décroissance exponentielle. La cartographie du mode simulé dans le chapitre 2 nous a conduit à considérer des nanotubes de 1µm de hauteur (voir partie 2.3.4). Si le nanotube perturbe faiblement le champ environnant, son apex baignera alors dans une zone où le champ électrique sera amplifié d'un facteur 10 en comparaison avec celui du faisceau incident.

La fabrication de nanotubes d'une telle hauteur possédant un rapport d'aspect de 200 représente un défi technologique. Ce point sera plus particulièrement discuté dans le chapitre 4. Malgré la difficulté posée par cette réalisation, les travaux théoriques qui ont été développés au début du chapitre 3 indiquent que l'utilisation de nanotubes courts et fins présente un intérêt important pour tous les types de cathodes à nanotubes. En effet, la réduction de la hauteur des nanotubes permet proportionnellement de réduire les vitesses électroniques radiales et d'augmenter le courant émis par la cathode. Ces deux caractérisques sont importantes car elles permettront d'améliorer la focalisation et la densité de courant du faisceau dans les tubes électroniques.

Période du réseau d'émetteurs : Concernant la répartition des nanotubes à la surface de la cathode, ceux-ci devront être localisés dans les lobes centraux du mode de la cavité de surface afin de maximiser le phénomène de couplage. Nous pourrions répartir uniformément les nanotubes sur les créneaux de la cathode mais cela induirait une forte perturbation du mode de la cavité surface. Par conséquent, nous choisissons de répartir les nanotubes au niveau des lobes centraux de la cavité. Il est alors important de rappeler que les champs électriques dans les deux lobes centraux du mode sont en opposition de phase. Cela implique qu'il ne sera pas possible de repartir un nanotube sur chacun d'entre eux. En effet, les modulations optiques des barrières de potentiel des deux nanotubes seraient alors en opposition

de phase, ce qui conduirait inévitablement à une annulation de la modulation THz à l'échelle de la cathode.

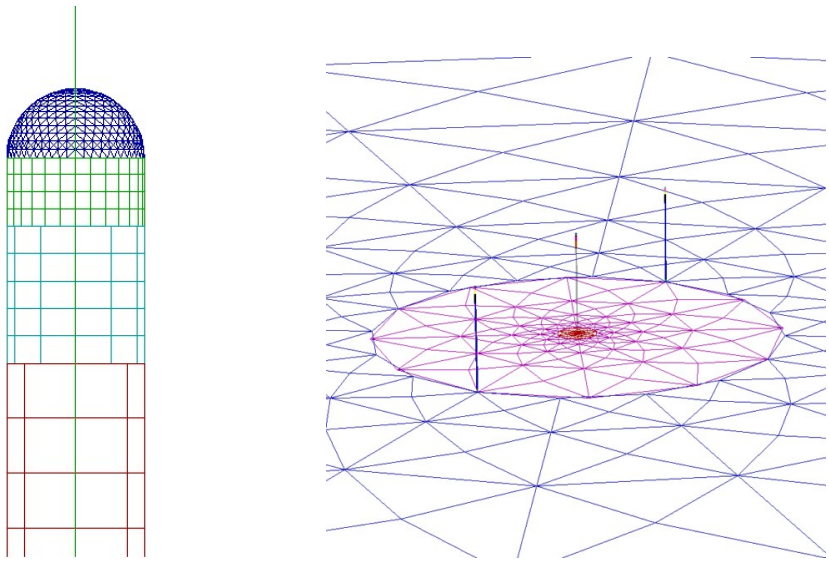
Synthèse : Des nanotubes de 1µm de hauteur seront donc considérés et leur disposition à la surface de la cathode sera donnée :

- dans la direction de la périodicité des concentrateurs, par des nanotubes espacés avec une période correspondant à la largeur du concentrateur. Chacun d'entre eux sera centré sur l'un des lobes centraux du mode confiné.
- dans la direction invariante des concentrateurs, par des nanotubes espacés avec une période correspondant à la distance de moindre écrantage entre proches voisins

3.4.2.2 Écrantage d'une distribution linéaire d'émetteurs

Au début de ce chapitre, l'écrantage à la surface d'une cathode à nanotubes a été envisagée dans le cas d'un réseau à maille carré. Si les nanotubes sont arrangés selon une ligne comme sur la cathode THz, il est attendu que la distance de moindre écrantage soit réduite en raison de la diminution du nombre de voisins par nanotube. Il est important de caractériser cette distance afin de pouvoir optimiser le champ électrique appliqué sur notre cathode (notamment par rapport avec notre analyse 4.2.4) et la densité de courant.

La version 3D du logiciel CPO est utilisée pour prendre en compte les effets d'écrantage électrostatique. La géométrie des nanotubes est une fois de plus inscrite dans un standard correspondant à un rapport d'aspect égal de 200. La figure 3.25a indique la configuration du maillage au sommet d'un nanotube. Sur cet agrandissement, on distingue également une droite passant par l'apex selon laquelle le champ électrique est calculé durant la simulation. La figure 3.25b présente la partie de l'espace de calcul où les nanotubes sont alignés 3.25b. La mesure du champ électrique est effectuée sur le nanotube central.

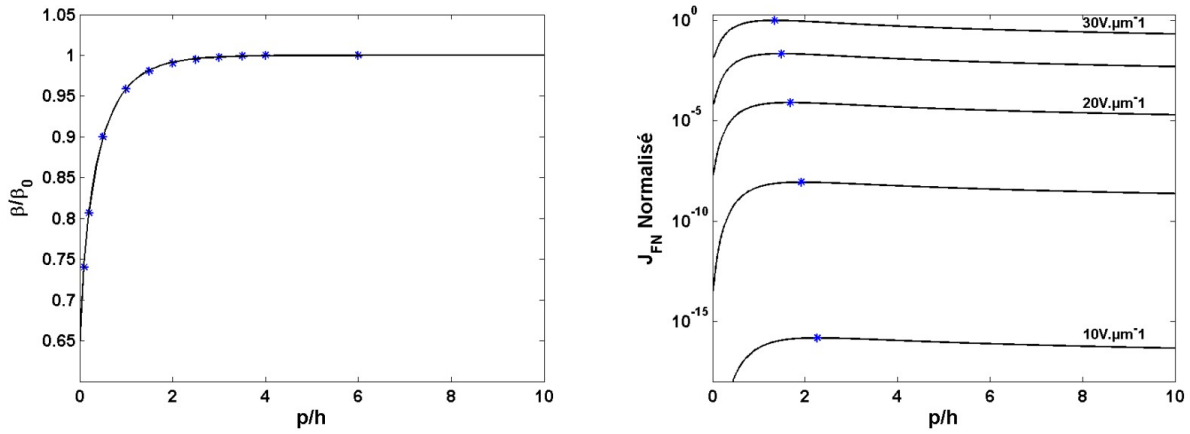


(a) (b)

FIGURE 3.25 – (a) Zoom sur le maillage au voisinage de l'apex d'un nanotube ; (b) Vue générale sur l'espace de calcul.

La variation du facteur d'amplification est rapportée dans le graphe de la figure 3.26a. En comparaison avec le réseau de maille carré, on constate que le palier de saturation apparait à des valeurs plus faibles du rapport p/h. La variation observée par la simulation a été reproduite en utilisant l'équation suivante :

$$\boxed{\frac{\beta}{\beta_0} = 1 - 0.357exp\left[-2.163\left(\frac{p}{h}\right)^{0.786}\right]} \tag{3.20}$$



(a) (b)

FIGURE 3.26 – (a) Variation du facteur d'amplification normalisé en fonction du pas normalisé. (b) Variation de la densité de courant normalisée en fonction du pas normalisé.

En utilisant ce résultat pour analyser la variation de densité de courant à la surface d'une cathode, on aboutit à la construction de la figure 3.26b. Ce résultat a été obtenu pour différents champs macroscopiques appliqués en substituant l'équation 3.20 dans l'équation de Fowler-Nordheim. On note que pour des champs compris entre 20V/µm et 30V/µm l'optimum d'espacement a été clairement décalé vers les faibles valeurs de p/h. Dans cette gamme de champ, on obtient approximativement la condition suivante sur le pas du réseau :

$$\boxed{p \approx 1.5h}$$

3.4.3 Performances de la cathode THz

La densité de courant : La densité de courant est un paramètre primordial pour le fonctionnement d'un tube électronique. Le courant émis par la cathode conditionne en effet la réalisation des principaux éléments d'un TOP comme le canon électronique et la ligne à retard. Il est donc important de déterminer la densité de courant de notre cathode pour permettre la conception du tube THz. Toutefois, la détermination théorique de la densité de courant d'une cathode est difficile. Nous connaissons bien les paramètres d'émission tels que le travail de sortie ou le nombre de nanotubes mais la densité de sites émetteurs est un paramètre que seule la mesure expérimentale peut renseigner. Par conséquent, nous avons choisi d'appuyer notre calcul sur les données expérimentales rapportées par notre laboratoire

[44]. Dans le régime situé avant le seuil destruction de la cathode, nous obtenons typiquement les valeurs suivantes :

$$p = 2h \quad ; maille \quad carrée; \quad h/r = 200 \quad ; \quad E_{macro} = 20V/\mu\text{m} \quad ; \quad J_1 = 1A/cm^2$$

La détermination des périodes de notre réseau d'émetteurs est nécessaire pour le calcul de la densité de courant. Pour cela, notre précédente discussion nous a donné les 2 périodes fondamentales. Dans la direction invariante du concentrateur, la période du réseau de nanotubes est égale à 1.5 fois leur hauteur. Dans la direction périodique du concentrateur, la période du réseau est égale à la largeur d'un concentrateur et correspond à un multiple de la longueur d'onde incidente $n_p\lambda_0$, avec n_p le nombre de périodes du réseau.

Nous nous proposons de donner la densité de courant J_2 de la cathode THz en référence à celle de la cathode traditionnelle J_1. Nous nous plaçons dans un régime de limite de fonctionnement, c'est à dire le régime où l'apex est à la température maximale supportable sans destruction. Cette limite dépend de la résistance des nanotubes à la décomposition thermique par effet joule et est identique pour les deux cathodes. D'après l'analyse de la partie 3.2.4.2, on établit les deux formules suivantes :

$$J_1 = \frac{\pi}{2\beta^2}\frac{1}{4h}\sqrt{\frac{2\left(T_{apex} - T_{sub}\right)}{\rho_{th}\rho_{el}}} \quad et \quad J_2 = \frac{\pi}{2\beta^2}\frac{1}{1.5n_p\lambda_0}\sqrt{\frac{2\left(T_{apex} - T_{sub}\right)}{\rho_{th}\rho_{el}}}$$

Le fonctionnement des deux cathodes étant limité par la même température d'apex, nous obtenons la relation suivante :

$$\boxed{J_2 = \frac{8h}{3n_p\lambda_0}J_1} \tag{3.21}$$

Nous disposons donc d'une formule simple permettant de déterminer la densité de courant de notre cathode. Celle-ci nécessite seulement d'expliciter la hauteur des nanotubes et le nombre de périodes du réseau. Dans notre précédente analyse, nous avons déjà fixé la hauteur des nanotubes à 1µm. Concernant la largeur du réseau, notre étude du chapitre 2 a montrée que le facteur de concentration du champ augmente de manière monotone avec cette largeur. Mais nous avions fait la remarque que l'utilisation d'un réseau large conduisait à affaiblir la densité d'émetteur et donc la densité de courant de la cathode. Nous constatons que la formule 3.21 rend bien compte de ce mécanisme. Cette formule permet donc de préciser ce compromis entre la densité d'émetteur et l'amplification du champ.

Plusieurs approches sont alors possibles. Par exemple, si nous souhaitons obtenir une densité de courant comparable à celle d'une cathode traditionnelle (c'est à dire que $J_2 = 1A/\text{cm}^2$) d'après 3.21 cela impose que $n_p \approx 9$. La cathode THz obtenue dans ces conditions est représentée sur la figure 3.27.

Toutefois, dans cette étude initiale de la cathode THz, nous souhaitons privilégier l'expression de l'effet de mélange optique. Aussi, nous avons choisi une largeur de réseau concentrateur plus grande avec 14 périodes de manière à élever le facteur de concentration du champ électrique et minimiser les effets de couplage entre les réseaux concentrateurs voisins. Dans ce cas, la densité de courant de la cathode THz chute très légèrement et on calcule d'après l'équation 3.21 que $J_2 = 0.6A/cm^2$.

Le courant émis : Pour déterminer le courant émis, nous devons définir la surface de la cathode. Avant de donner la valeur retenue, nous devons rappeller que celle-ci conditionne

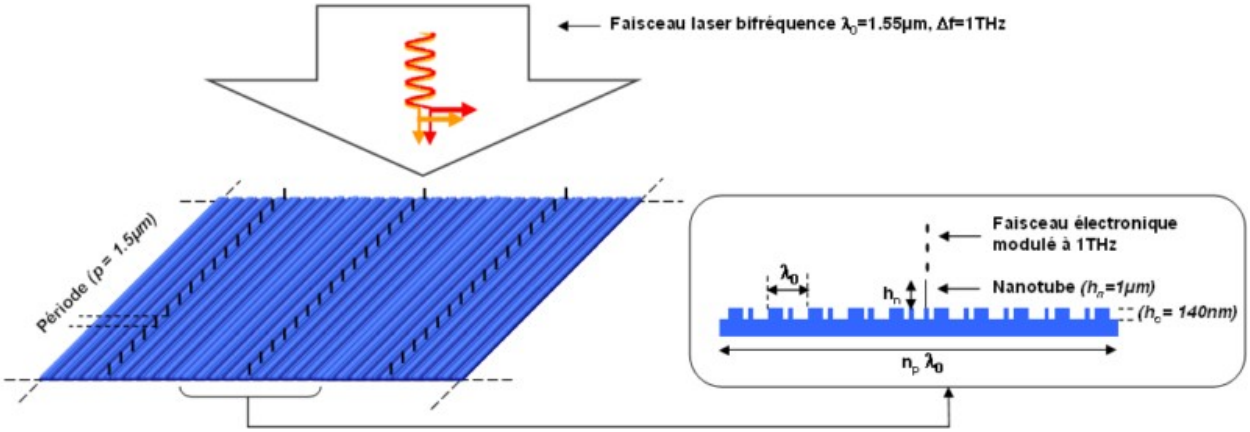


FIGURE 3.27 – Vue schématique d'une cellule élémentaire de la cathode THz.

également l'intensité de la composante optique du champ électrique incident. En effet, la section du faisceau laser incident sera adaptée à la surface de la cathode. Le champ électrique optique incident va donc décroître si la surface de la cathode augmente. Cette situation impose de fixer la taille de la surface en faisant un compromis entre le courant et sa profondeur de modulation. Ainsi, nous avons choisi que la cathode serait délimitée par un carré de 500µm × 500µm. Ce dimensionnement impose que le courant émis par la cathode sous un champ de 20V/µm sera de 1.5mA.

La profondeur de modulation : En nous appuyant sur les calculs réalisés sur la non-linéarité de l'équation de Fowler-Nordheim, il est possible d'exprimer la profondeur de modulation, notée m, pour un point de fonctionnement (E_0, I_0) telle que :

$$\frac{I_{pic}}{I_{moyen}} = 1 + m \quad avec \quad m = \frac{I_M}{I_0 + I_R} \tag{3.22}$$

Avec I_0 l'intensité de la composante DC, I_M l'intensité de la composante modulée à la fréquence de battement et I_R l'intensité de la composante rectifiée. Dans notre calcul, on suppose que l'on utilise un laser bifréquence dont la puissance totale de sortie est de 1W avec un battement de 1THz.

Pour évaluer la profondeur de modulation du faisceau, nous avons effectué deux séries d'hypothèses sur le facteur d'amplification du champ optique. Celles-ci s'appuient s'appuie sur les calculs réalisés au cours de ce travail et visent à fournir un encadrement de la profondeur de modulation :

- La première hypothèse est une évaluation haute considérant une amplification du réseau concentrateur de 20 et du nanotube de 20.
- La seconde hypothèse correspond à une évaluation basse considérant une amplification du réseau concentrateur de 5 et du nanotube de 5.

Entre ces deux conditions d'amplification, on reporte le point correspondant aux valeurs maximales obtenues dans cette étude. Celui-ci ne tient donc pas compte de l'effet d'antenne produit par le nanotube (non évalué). A ce point, on fixe une amplification du réseau concentrateur de 10 et de la particule de 10. Dans tous ces évaluation, nous avons multiplié le courant de mélange par un facteur 5 pour tenir compte des travaux d'Hagmann [24].

Le résultat de ce calcul est donné dans le graphe de la figure 3.28 où l'on représente la profondeur de modulation en fonction du courant émis par la cathode THz. On constate que pour chaque hypothèse, une diminution de la profondeur de modulation en fonction de la tension appliquée est observée. Cet effet avait été envisagé dans notre analyse initiale des effets non-linéaires. Il résulte de l'expression de I_M dont l'amplitude diminue quand le champ appliqué augmente. Cette situation appelle donc à un compromis entre le courant émis et la profondeur de modulation du faisceau.

Finalement, on constate sur la figure 3.28 que les valeurs obtenues pour la profondeur de modulation avec un champ de 20V/µm sont comprises entre 0.005% et 1.3% respectivement pour l'hypotèse basse et haute. On constate ainsi le phénomène de mélange est très sensible à l'intensité de l'onde au sommet du nanotube. Au point correspondant aux valeurs de cette étude, nous obtenons une profondeur de modulation de 1‰. Au regard de ces valeurs, il semble qu'une optimisation importante de la cathode soit à prévoir pour atteindre des profondeurs de modulation de quelques pourcents. On pourra notamment faire varier la dimension du concentrateur dans la direction périodique afin d'augmenter l'amplification du réseau. Celle-ci se fera néanmoins au prix d'une diminution de la densité de courant d'après la formule 3.21. En considérant des nanotubes plus courts, nous aurons également la possibilité d'accroitre l'amplification champ à leur sommet de manière exponentielle dû au caractère évanescent de l'onde de surface.

On peut noter finalement que les valeurs de profondeur de modulation sont relativement faibles en comparaison avec certaines études réalisé à plus basses fréquences [45]. Néanmoins, il est important de rappeller que le phénomène d'amplification dans les tubes électroniques peut être fortement dépendant des conditions initiales à l'entrée de la ligne à retard. Les petites modulations peuvent ainsi engendrer de forts effets sur le gain du tube comme ont pû le montrer Whaley et al. [46] dans un TOP.

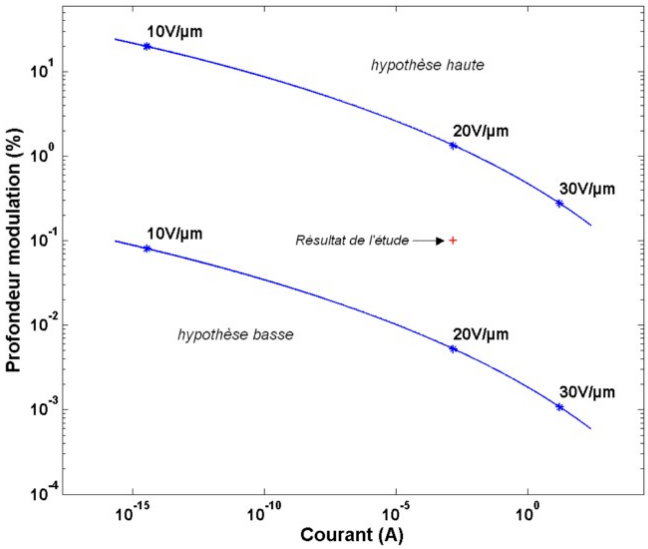


FIGURE 3.28 – Variation de la profondeur de modulation et du courant en fonction de la tension appliquée.

3.4.4 Conclusion

Dans cette partie, nous avons proposé le design de la cathode THz. Pour cela, nous avons tout d'abord analyser les implications de l'association du réseau concentrateur et du réseau de nanotubes. Les contraintes introduites par ces deux objets ont permis de déterminer la périodicité de la distribution de nanotubes. Cette étape a nécessicité la synthèse des résultats issus des précédentes analyses et à établir la distance de moindre écrantage dans le cas d'une distribution linéaire de nanotubes.

Sur la base de ce design, nous avons tenté de donner une évaluation quantitative des performances de la cathode THz. Celle-ci nous a mener à une densité de courant de 0.6A/cm^2, un courant de 1.5mA et une profondeur de modulation de 1‰. En optimisant les phénomènes d'amplication du champ optique sur la cathode, il est possible d'envisager des profondeurs de modulation de l'ordre de 1%.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons finalisé la structure de la cathode THz et calculé ses performances. Cette démarche théorique nous aura permis de dégager les paramètres clef de la cathode comme les caractéristiques du réseau d'émetteurs (hauteur, périodicité) ou les propriétés électroniques (densité de courant, profondeur de modulation). Leur connaissance fournira une base utile pour envisager la fabrication et la caractérisation des échantillons que nous aborderons dans le chapitre 4 de ce manuscrit.

La cathode THz se présente donc comme une cathode possédant un faisceau électronique d'une divergence inférieure à 5eV, d'une densité de courant de 0.6A/cm^2, d'un courant de 1.5mA et possédant une profondeur de modulation de l'ordre de 1‰. Une perspective d'améliorer cette valeur jusqu'à 1% est possible en optimisant l'amplification du champ optique sur la cathode. On doit noter finalement que la valeur de cette profondeur de modulation devra être analysée relativement à la réponse du tube électronique qui intégrera cette cathode.

Au delà de notre étude, la compréhension que nous avons donnée de l'émission de champ d'un nanotube individuel et des cathodes à nanotubes permettra d'améliorer les performances des cathodes traditionnelles en terme de densité de courant et divergence du faisceau émis.

Références

[1] RW Wood. A new form of cathode discharge and the production of x-rays, together with some notes on diffraction. Preliminary communication. *Physical Review Series I*, 5 :1–10, 1897.

[2] RW Wood. On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum. *Proceedings of the Physical Society of London*, 18 :269–275, 1902.

[3] EL Murphy and RH Good. Thermionic emission, field emission, and the transition region. *Physical review*, 102(6) :1464–1473, 1956.

[4] S. Iijima. Helical microtubules of graphitic carbon. *Nature*, 354(6348) :56–58, 1991.

[5] W.A. De Heer, A. Chatelain, and D. Ugarte. A carbon nanotube field-emission electron source. *Science*, 270(5239) :1179, 1995.

[6] AG Rinzler, JH Hafner, P. Nikolaev, P. Nordlander, DT Colbert, RE Smalley, L. Lou, SG Kim, and D. Tomanek. Unraveling nanotubes : field emission from an atomic wire. *Science*, 269(5230) :1550, 1995.

[7] ZF Ren, ZP Huang, JW Xu, JH Wang, P. Bush, MP Siegal, and PN Provencio. Synthesis of large arrays of well-aligned carbon nanotubes on glass. *Science*, 282(5391) :1105, 1998.

[8] KBK Teo, M. Chhowalla, GAJ Amaratunga, WI Milne, DG Hasko, G. Pirio, P. Legagneux, F. Wyczisk, and D. Pribat. Uniform patterned growth of carbon nanotubes without surface carbon. *Appl. Phys. Lett.*, 79 :1534, 2001.

[9] L. Nilsson, O. Groening, C. Emmenegger, O. Kuettel, E. Schaller, L. Schlapbach, H. Kind, JM Bonard, and K. Kern. Scanning field emission from patterned carbon nanotube films. *Applied Physics Letters*, 76 :2071, 2000.

[10] KBK Teo, M. Chhowalla, GAJ Amaratunga, WI Milne, G. Pirio, P. Legagneux, F. Wyczisk, D. Pribat, and DG Hasko. Field emission from dense, sparse, and patterned arrays of carbon nanofibers. *Appl. Phys. Lett.*, 80 :2011, 2002.

[11] RH Fowler and L. Nordheim. Electron emission in intense electric fields. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 119 :173–181, 1928.

[12] LW Nordheim. The effect of the image force on the emission and reflexion of electrons by metals. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 121 :626–639, 1928.

[13] I. Brodie and CA Spindt. Vacuum microelectronics. *Advances in electronics and electron physics*, 83 :1–106, 1992.

[14] E.W. Muller. Work function of tungsten single crystal planes measured by the field emission microscope. *Journal of Applied Physics*, 26 :732, 1955.

[15] R.D. Young. Theoretical total-energy distribution of field-emitted electrons. *Physical Review*, 113(1) :110–114, 1959.

[16] JW Gadzuk and EW Plummer. Field emission energy distribution (FEED). *Reviews of Modern Physics*, 45(3) :487–548, 1973.

[17] EH Hauge and JA Stovneng. Tunneling times : a critical review. *Reviews of Modern Physics*, 61(4) :917–936, 1989.

[18] M. Buttiker and R. Landauer. Traversal time for tunneling. *Physical Review Letters*, 49(23) :1739–1742, 1982.

[19] LV Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP*, 20 :1307–1314, 1965.

[20] P. Hommelhoff, C. Kealhofer, A. Aghajani-Talesh, Y.R.P. Sortais, S.M. Foreman, and M.A. Kasevich. Extreme localization of electrons in space and time. *Ultramicroscopy*, 109(5) :423–429, 2009.

[21] P. Hommelhoff, C. Kealhofer, and M.A. Kasevich. Ultrafast electron pulses from a Tungsten tip triggered by low-power femtosecond laser pulses. *Physical review letters*, 97(24) :247402, 2006.

[22] P. Hommelhoff, Y. Sortais, A. Aghajani-Talesh, and M.A. Kasevich. Field emission tip as a nanometer source of free electron femtosecond pulses. *Physical review letters*, 96(7) :77401, 2006.

[23] B. Barwick, C. Corder, J. Strohaber, N. Chandler-Smith, C. Uiterwaal, and H. Batelaan. Laser-induced ultrafast electron emission from a field emission tip. *New Journal of Physics*, 9 :142, 2007.

[24] MJ Hagmann. Photomixing in resonant laser-assisted field emission-a new technique for wide-band-tunable terahertz sources. *IEEE T. Microw. Theory.*, 52(10) :2361–2365, 2004.

[25] AV Melechko, VI Merkulov, TE McKnight, MA Guillorn, KL Klein, DH Lowndes, and ML Simpson. Vertically aligned carbon nanofibers and related structures : Controlled synthesis and directed assembly. *Journal of Applied Physics*, 97 :041301, 2005.

[26] N. de Jonge, M. Allioux, J.T. Oostveen, K.B.K. Teo, and W.I. Milne. Low noise and stable emission from carbon nanotube electron sources. *Appl. Phys. Lett.*, 87 :133118, 2005.

[27] O. Groening, OM Kuttel, E. Schaller, P. Groning, and L. Schlapbach. Vacuum arc discharges preceding high electron field emission from carbon films. *Applied Physics Letters*, 69 :476, 1996.

[28] R. Gao, Z. Pan, and Z.L. Wang. Work function at the tips of multiwalled carbon nanotubes. *Applied Physics Letters*, 78 :1757, 2001.

[29] W.A. De Heer, J.M. Bonard, K. Fauth, A. Châtelain, L. Forro, and D. Ugarte. Electron field emitters based on carbon nanotube films. *ADVANCED MATERIALS-DEERFIELD BEACH-*, 9 :87–89, 1997.

[30] MJ Fransen, T.L. Van Rooy, and P. Kruit. Field emission energy distributions from individual multiwalled carbon nanotubes. *Applied Surface Science*, 146(1-4) :312–327, 1999.

[31] G Allaire. *Analyse numérique et optimisation.* Ecole Polytechnique, 2004.

[32] CJ Edgcombe and U. Valdre. The enhancement factor and the characterization of amorphous carbon field emitters. *Solid State Electronics*, 45(6) :857–863, 2001.

[33] CJ Edgcombe and U. Valdre. Microscopy and computational modelling to elucidate the enhancement factor for field electron emitters. *Journal of Microscopy*, 203(2) :188, 2001.

[34] GC Kokkorakis, A. Modinos, and JP Xanthakis. Local electric field at the emitting surface of a carbon nanotube. *Journal of Applied Physics*, 91 :4580, 2002.

[35] E Minoux. *Etude et développement de sources électroniques à émission de champ à base de nanotubes de carbone. Application aux tubes hyperfréquences.* PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2006.

[36] L. Nilsson, O. Groening, P. Groening, and L. Schlapbach. Collective emission degradation behavior of carbon nanotube thin-film electron emitters. *Applied Physics Letters*, 79 :1036, 2001.

[37] E. Minoux, O. Groening, K.B.K. Teo, S.H. Dalal, L. Gangloff, J.P. Schnell, L. Hudanski, I.Y.Y. Bu, P. Vincent, P. Legagneux, et al. Achieving high-current carbon nanotube emitters. *Nano Lett.*, 5(11) :2135–2138, 2005.

[38] E.D. Palik and G. Ghosh. *Handbook of optical constants of solids.* Academic press, 1985.

[39] CF Bohren and DR Huffman. *Absorption and scattering of light by small particles.* Wiley-Interscience, 1983.

[40] RG Forbes, CJ Edgcombe, and U. Valdre. Some comments on models for field enhancement. *Ultramicroscopy*, 95(1-4) :57, 2003.

[41] B. Gault, A. Vella, F. Vurpillot, A. Menand, D. Blavette, and B. Deconihout. Optical and thermal processes involved in ultrafast laser pulse interaction with a field emitter. *Ultramicroscopy*, 107(9) :713–719, 2007.

[42] E.G. Pogorelov, A.I. Zhbanov, and Y.C. Chang. Field enhancement factor and field emission from a hemi-ellipsoidal metallic needle. *Ultramicroscopy*, 109(4) :373–378, 2009.

[43] Y. Wang, K. Kempa, B. Kimball, JB Carlson, G. Benham, WZ Li, T. Kempa, J. Rybczynski, A. Herczynski, and ZF Ren. Receiving and transmitting light-like radio waves : Antenna effect in arrays of aligned carbon nanotubes. *Appl. Phys. Lett.*, 85 :2607, 2004.

[44] K.B.K. Teo, E. Minoux, L. Hudanski, F. Peauger, J.P. Schnell, L. Gangloff, P. Legagneux, D. Dieumegard, G.A.J. Amaratunga, and W.I. Milne. Carbon nanotubes as cold cathodes. *Nature*, 437(7061) :968, 2005.

[45] L. Hudanski, E. Minoux, L. Gangloff, K.B.K. Teo, J.P. Schnell, S. Xavier, J. Robertson, W.I. Milne, D. Pribat, and P. Legagneux. Carbon nanotube based photocathodes. *Nanotechnology*, 19(10) :105201–105300, 2008.

[46] DR Whaley, BM Gannon, CR Smith, CM Armstrong, and CA Spindt. Application of field emitter arrays to microwave power amplifiers. *IEEE T. Plasma. Sci.*, 28(3) :727–747, 2000.

Chapitre 4

Préparation des cathodes THz

Sommaire

4.1 Introduction 133
4.2 Fabrication de la cathode THz 133
4.2.1 Fabrication du réseau métallique par lift-off 133
4.2.1.1 La lithographie électronique 133
4.2.1.2 La lithographie électronique sur couche d'or 135
4.2.1.3 La fabrication par lift-off 137
4.2.2 Croissance des nanotubes de carbone 140
4.2.2.1 Principe de la méthode PECVD 140
4.2.2.2 Croissance de nanotubes sur couche d'or 146
4.2.3 Fabrication du réseau par dépôt métallique isotrope sur microstructuration silicium. 148
4.2.4 La croissance sur le concentrateur silicium 150
4.2.5 Métallisation post-croissance 157
4.2.5.1 Étude sur cathode traditionnelle 157
4.2.5.2 Étude de la gravure de l'or sur la cathode THz 160
4.2.6 Conclusion 161
4.3 Le recuit laser des cathodes à nanotubes 162
4.3.1 Limitations du courant émis 162
4.3.1.1 Les types de recuit 163
4.3.2 Étude du recuit laser des cathodes orientées 166
4.3.2.1 Présentation de l'expérience 167
4.3.2.2 Impact sur l'apex du nanotube 168
4.3.2.3 Dispersion du recuit 170
4.3.3 Conclusion 172
4.4 Développement du banc de caractérisation 173
4.4.1 Les quantités mesurées 173
4.4.2 Le système électrique 174
4.4.3 La grille d'extraction 176
4.4.3.1 Homogénéité du champ électrique appliqué 177
4.4.3.2 Fabrication de grilles 178
4.4.3.3 Caractérisation de la transparence 180
4.4.4 Le contrôle optique par réflectométrie 180

4.4.4.1 Présentation du montage expérimental 180
4.4.4.2 Validation du montage 181
4.4.5 Conclusion 182
4.5 Conclusion et perspectives 183

4.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous allons étudier la préparation expérimentale de la cathode THz. En nous appuyant sur les remarques des chapîtres précédents, nous aborderons successivement les points suivants :

- **La fabrication** : dans la première partie de ce chapitre, nous présenterons la démarche qui a été envisagée pour réaliser la cathode THz. Nous appuierons celle-ci sur les procédés de fabrication de micro/nano électronique utilisés dans ce travail.
- **La fiabilisation** : afin d'accroître et stabiliser leurs performances, les cathodes à nanotubes de carbone doivent être soumises à un recuit thermique à 800°C pendant quelques minutes. Cependant, notre cathode est sensible aux fortes températures et nous conduira à proposer une nouvelle méthode de recuit. Celle-ci permettra un meilleur contrôle dans l'espace et dans le temps, de la température déposée sur le substrat. Ces résultats seront présentés dans la seconde partie de ce chapitre.
- **La caractérisation** : la cathode devra ensuite être caractérisée optiquement et électriquement avant son intégration dans le tube électronique. Cette étape est importante puisqu'elle constitue également la phase d'étalonnage de la réponse du composant. Les principes de cette caractérisation seront présentés dans la dernière partie de ce chapitre.

4.2 Fabrication de la cathode THz

Nous allons consacrer cette partie à la fabrication de la cathode THz. Pour cela, nous avons articulé notre présentation de manière chronologique afin de mettre en évidence l'évolution de notre démarche et l'émergence des solutions technologiques. Malgré l'ordre retenu, il est important de noter que les contraintes associées aux différents procédés conduisent souvent à l'interdépendance des étapes de fabrication. Cela appelle à une prise en compte globale de l'enchaînement des procédés dont nous tenterons de rendre compte à travers notre présentation.

Par ailleurs, il est à noter que l'ensemble des détails techniques des procédés utilisés dans ce travail a été rapporté en annexe de ce manuscrit.

4.2.1 Fabrication du réseau métallique par lift-off

Les largeurs des motifs du réseau que nous devons fabriquer se situent entre 150nm et 450nm pour une profondeur de 140nm. Le contexte technologique dans lequel cette étude a été effectuée nous a permis d'utiliser la technique de lithographie électronique pour fabriquer cette structuration. Nous allons donc donner les principales caractéristiques de cette méthode avant de détailler les résultats obtenus par la méthode de lift-off.

4.2.1.1 La lithographie électronique

La lithographie électronique est une technique utilisée depuis les années 1970 dont le principe repose sur le bombardement d'une ou plusieurs couches de résine(s) de polymères à l'aide d'un faisceau d'électrons accélérés. Les électrons sont émis dans un canon électronique par une pointe métallique en régime d'émission de champ. Les faisceaux utilisées de nos jours sont caractérisés par des vitesses électroniques comprises entre 10keV et 100keV. Une fois accélérés, les électrons se déplacent selon l'axe d'une colonne dans laquelle la collimation

puis la focalisation du faisceau sont contrôlées à l'aide de lentilles magnétiques.

Dès lors que la résine a été bombardée avec une quantité suffisante d'électrons, celle-ci s'en trouve chimiquement modifiée. Pour donner une mesure de cette quantité, on utilise la notion de dose qui permet d'évaluer le nombre d'électrons traversant la résine par unité de surface. Pour un faisceau électronique cylindrique, on explicite la dose à partir de la relation suivante :

$$D = \frac{T \times I}{\pi R^2}$$

Avec D la dose en Coulomb/μm^2, T le temps d'exposition en seconde, I le courant en Ampère et R le rayon du faisceau en microns. La prise en compte de cette simple relation est importante pour trouver un compromis entre la taille du motif et la durée des lithographies.

Lorsque les électrons pénètrent dans la résine et le substrat, ceux-ci subissent une série de collisions élastiques et inélastiques avec la matière. La figure 4.1 illustre cette situation schématiquement en suivant la trajectoire d'un électron dans la résine et le substrat d'un échantillon bombardé par un faisceau électronique. Le volume décrit par la pénétration des électrons dans le substrat forme la "poire d'interaction". On décompose usuellement les mécanismes collisionnels en deux catégories selon que les électrons soient diffusés vers l'avant ou vers l'arrière :

- Le forward scattering ou diffusion vers l'avant : cette composante de diffusion correspond à l'interaction des électrons incidents avec les nuages électroniques des atomes de la résine et du substrat. Les collisions élastiques résultantes dévient faiblement les électrons et conduisent à l'élargissement du faisceau électronique. Les collisions inélastiques se produisent également et augmentent les niveaux d'excitation moléculaires. Elles permettent ainsi d'induire une modification chimique locale de la résine en assurant la dissociation des chaînes de polymères.
- Le backward scattering ou rétrodiffusion : cette composante de diffusion correspond à l'interaction des électrons avec les noyaux atomiques du substrat. Dans ce cas, la diffusion est essentiellement élastique et se produit à de larges angles. Après une série de plusieurs interactions, les électrons peuvent ainsi être redirigés vers la résine. Ce phénomène contribue ainsi à une seconde insolation de la résine. Cela est d'autant plus important que les atomes du substrat possèdent des noyaux lourds.

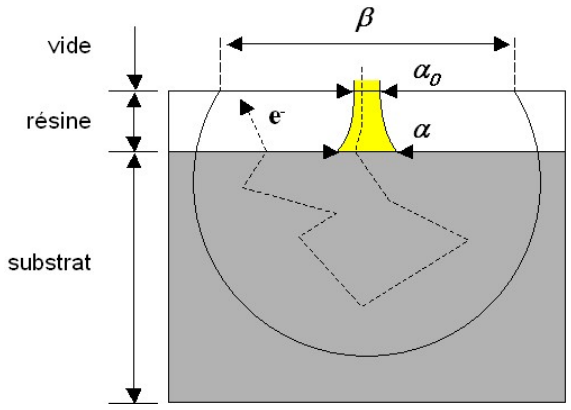


FIGURE 4.1 – Représentation schématique d'une trajectoire électronique dans un substrat insolé. On a reporté les dimensions associées aux paramètres de proximité α et β.

Les effets de proximité : La combinaison de ces deux types de diffusion provoque donc l'insolation de la résine sur des zones beaucoup plus larges que le simple point focal du faisceau électronique. Ce phénomène appelé "effet de proximité" peut affecter fortement la résolution d'une lithographie. Les étalements spatiaux des électrons en diffusion forward et backward sont usuellement décrits par un modèle à double gaussienne. Sur la base des notations de la figure 4.1, nous pouvons écrire la relation suivante :

$$D(r) = \frac{D_0}{1+\eta}\left(\frac{1}{\pi\alpha^2}exp\left(-\frac{r^2}{\alpha^2}\right) + \frac{\eta}{\pi\beta^2}exp\left(-\frac{r^2}{\beta^2}\right)\right) \tag{4.1}$$

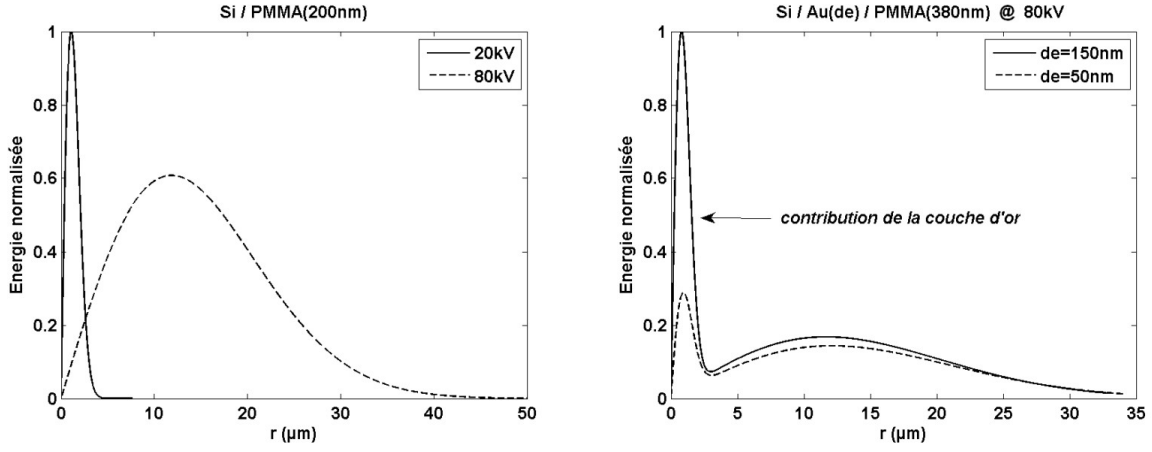
Avec r la coordonnée radiale ($r = 0$ correspondant à l'axe du faisceau électronique), D la dose, α la dimension du faisceau après la diffusion forward dans la résine, β la dimension associée au phénomène de diffusion backward et η le rapport entre l'énergie déposée dans la résine par les électrons backward sur celle déposée par les électrons forward. Après avoir simulé les trajectoires électroniques, il est possible de calculer cette fonction et ainsi de connaître les dimensions typiques qui pourront être résolues en lithographie électronique.

4.2.1.2 La lithographie électronique sur couche d'or

Nous pouvons illustrer le phénomène d'effet de proximité à partir de notre procédé de fabrication des réseaux par lift-off. Celle-ci requiert l'insolation d'une couche de résine déposée sur une couche d'or sur un substrat en silicium. L'évaluation des effets de proximité dans cette configuration a été motivée par le fait que les atomes d'or sont plus massif que les atomes de silicium usuellement rencontrés en microélectronique. Leur impact sur la résolution de la lithographie est un élément important pour orienter les procédés de fabrication. Par exemple, dans ce travail, deux systèmes de lithographie électronique étaient à notre disposition : l'un avec un faisceau d'énergie 20kV et l'autre de 80kV mais en phase d'installation et de développement. Il fût alors intéressant de déterminer si la résolution de nos lithographies sur film métallique serait suffisante en utilisant le faisceau de plus faible énergie. Pour répondre à cette question, un logiciel spécifiquement dédié à la correction des effets de proximité aurait pu être utilisé. Toutefois, n'ayant pas accès à ce type de logiciel, nous avons appuyé notre démarche sur le logiciel CASINO [1] permettant la simulation des trajectoires électroniques dans différents substrats. Il permet ainsi la détermination des paramètres α, β et η.

Pour caractériser le phénomène de rétrodiffusion et déterminer le paramètre β sur notre substrat, nous présentons sur la figure 4.2 l'énergie rétrodiffusée dans une surface élémentaire à distance r de l'axe du faisceau électronique.

Sur le graphe 4.2(a), cette contribution est évaluée pour deux faisceaux de 20kV et 80kV incident sur un substrat de silicium recouvert d'une couche de résine PMMA (en anglais PolyMethyl MethAcrylate = PMMA) de 200nm d'épaisseur. Pour ces deux énergies, on obtient comme attendu l'allure gaussienne du type $r\exp(-r^2/\beta^2)$. On constate également que l'augmentation de l'énergie du faisceau électronique permet une réduction locale de l'énergie rétrodiffusée. Cet effet s'explique par l'allongement des trajectoires électroniques dans le substrat qui agrandit la poire d'interaction pour un même nombre d'électrons incidents et permet ainsi de réduire la densité locale d'énergie rétrodiffusée. Cette observation met donc en évidence l'intérêt du faisceau de 80kV pour réduire les effets de proximité.



(a) (b)

FIGURE 4.2 – Etude de l'influence de l'énergie du faisceau électronique et de la présence d'un film d'or sur la quantité d'énergie électronique rétrodiffusée par le substrat

Sur le graphe 4.2(b), l'énergie du faisceau électronique est fixée à 80kV et on considère l'introduction d'une couche d'or de 50nm puis 150nm entre le silicium et la résine. On assiste alors à l'émergence d'une seconde gaussienne de rétrodiffusion s'exprimant aux courtes distances et dépendante de l'épaisseur de la couche métallique. Celle-ci est entièrement dû aux collisions élastiques des électrons sur les noyaux des atomes d'or. Cette réponse est ainsi typique d'une lithographie sur un film métallique où deux composantes de rétrodiffusion s'expriment, l'une à grande distance dû aux électrons pénétrant jusque dans le silicium et l'autre à courte distance dû aux collisions directes sur les atomes métalliques. Ce calcul indique qu'une augmentation de l'épaisseur du film métallique va conduire à un accroissement de la rétrodiffusion à faible distance. Cet effet est donc très pénalisant pour la précision des lithographies.

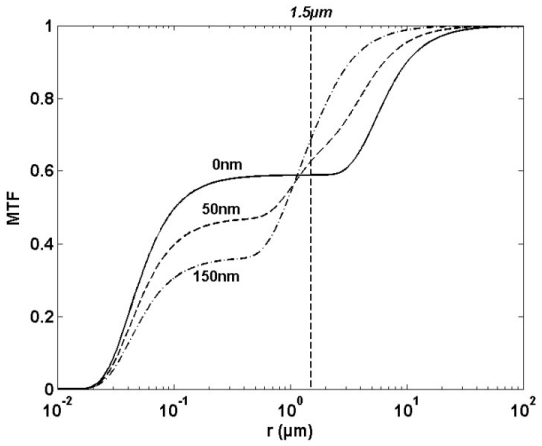


FIGURE 4.3 – Influence de l'épaisseur d'un film d'or sur le contraste de réseaux périodiques réalisés par lithographie électronique (MTF = Modulation Transfert Function)

Cette analyse fournit un moyen qualitatif pour apprécier le comportement du multicouche

insolé par le faisceau électronique. Mais il est possible de quantifier davantage notre approche en exprimant la transformée de Fourier de l'expression 4.1 afin d'analyser le contraste de la résine en fonction de la fréquence spatiale. Cette étude, importante pour la réalisation de réseaux périodiques, est présentée sur les graphes 4.2 à 20kV et 80kV en fonction de l'épaisseur de la couche d'or. En observant la courbe à épaisseur nulle sur la figure 4.3a, on remarque la forme typique de la fonction de transfert de modulation (FTM) d'une résine sur silicium [2]. En introduisant le film d'or, on observe comme attendu la dégradation du contraste de la lithographie aux faibles périodes dûes à la diffusion élastique des électrons dans l'or. Toutefois, on constate que celle-ci ne réduit pas le contraste correspondant à la périodicité de notre structure.

La simulation des trajectoires électroniques sur un substrat résine/or/silicium, nous donc a permis de mesurer l'impact de la couche métallique sur les propriétés de la lithographie à réaliser. Il apparaît que les effets de proximité sont bien présents à 20kV et influencés par la présence de la couche d'or. Ils ne seront toutefois pas rédhibitoires pour fabriquer le motif du réseau concentrateur par lift-off.

4.2.1.3 La fabrication par lift-off

La première méthode que nous avons utilisée pour réaliser les réseaux métalliques se base sur la technique du lift-off. La figure 4.4 présente les principales étapes du procédé que nous avons mis au point avec un faisceau électronique de 20kV.

Celui-ci se base sur un substrat silicium à la surface duquel nous réalisons l'enchaînement des étapes suivantes :

- **(a) Le dépôt d'une couche d'or :** durant cette étape, on dispose le substrat dans une chambre d'évaporation sous vide en regard d'un creuset contenant de l'or. En chauffant celui-ci, on provoque l'évaporation des atomes d'or. La surface substrat est alors soumise à un flux d'atomes d'or qui permet le dépôt de la couche métallique. Toutefois, le dépôt direct de l'or sur le substrat de silicium engendre des contraintes pouvant conduire à la dislocation de la couche d'or. Une couche de titane de 5nm est donc préalablement déposée sur le silicium pour éviter ce problème.

  Concernant l'épaisseur de la couche d'or, celle-ci doit théoriquement mesurer au minimum 10nm pour éviter la perturbation des ondes de surface par le substrat (effet de peau) et ne doit pas excéder 50nm pour minimiser les effets de proximités durant la lithographie électronique. Nous avons ainsi choisi de déposer une épaisseur initiale de 40nm d'or.

- **(b) Le dépôt d'un bicouche de résine :** nous déposons ensuite successivement deux couches de résine sur notre substrat par la technique de spin-coating. La première couche de résine est une résine de PolyMethyl GlutarImide (PMGI-SF5) d'épaisseur 180nm et la seconde est une couche de Polymethyl Methacrylate (PMMA-A4) d'épaisseur 200nm. Après chaque dépôt le substrat subit un recuit thermique à 200°C afin de permettre l'évaporation du solvant et le durcissement de la résine.
- **(c) L'insolation électronique et (d) le développement des couches de résines** : après avoir lithographié les couches de résine, nous procédons au développement des zones insolées à l'aide de deux solvants sélectifs. Pour enlever la PMMA, nous employons un bain de MIBK (Methyl IsoButyl Ketone) et pour enlever la PMGI nous employons un bain de MF-319 (Tetra Methyl Ammonium Hydroxide). La durée de chaque développement est contrôlée à l'aide d'un bain de rinçage permettant d'arrêter la dissolution de la résine. Celui-ci est composé d'isopropanol (IPA) pour la PMMA et d'eau désionisée (EDI) pour la PMGI.

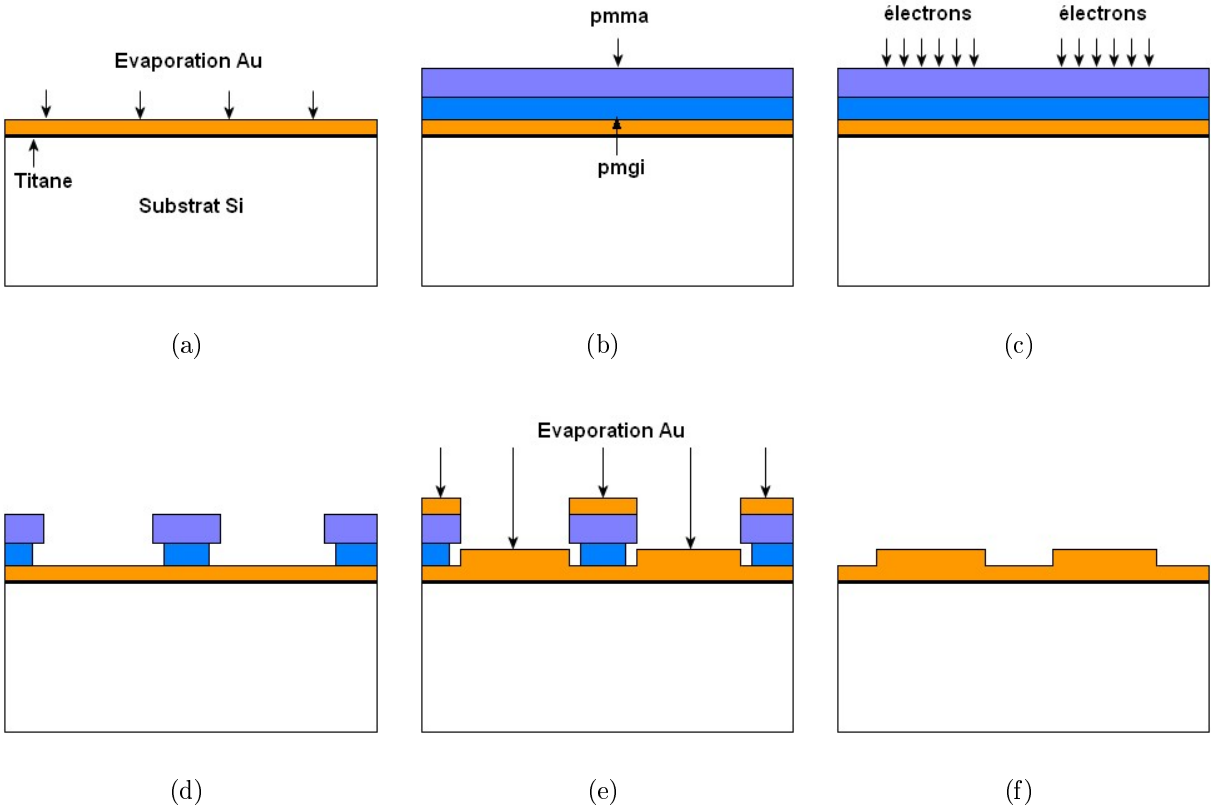
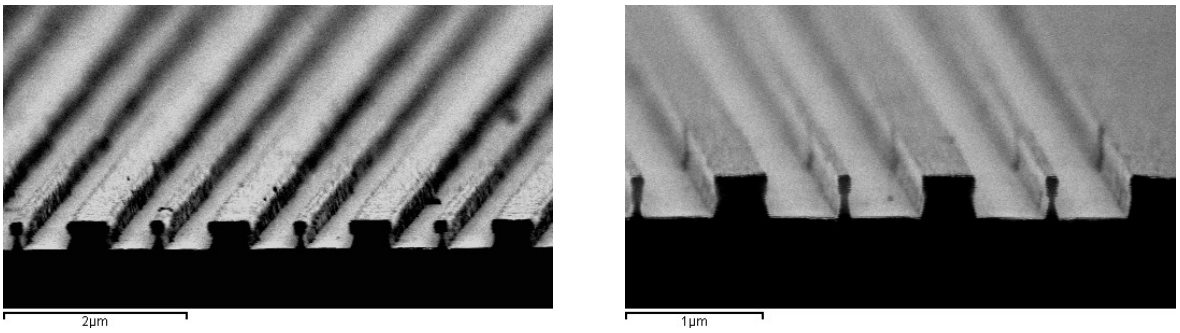


FIGURE 4.4 – Etapes de fabrication des réseaux métalliques par un procédé lift-off

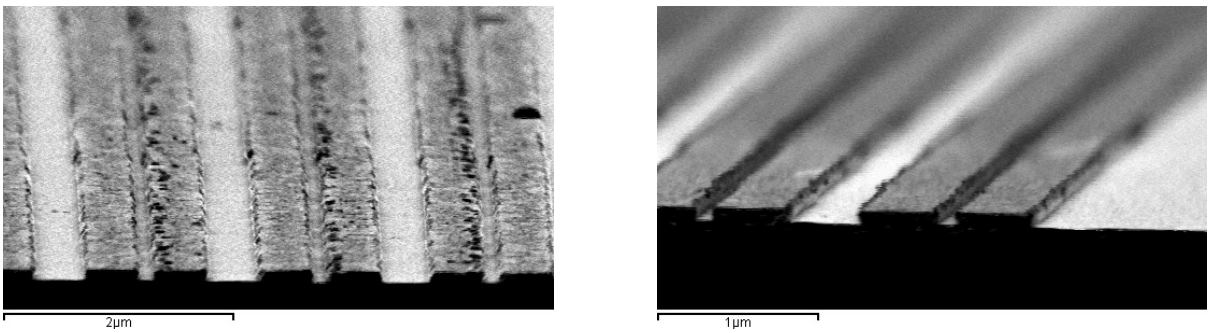
La figure **(d)** montre que l'ajustement de la sous-gravure de la PMGI doit permettre de réaliser un profil de type "casquette". La figure 4.5a donne une illustration de ce profil pour la réalisation d'un réseau de type Bragg. Toutefois, le profil de la sous-gravure de la PMGI indique que la solution de MF-319 tend à graver la résine de manière isotrope. Cela provoque donc une sous-gravure quasi-totale des lignes de PMGI dont la hauteur et la largeur sont égales. Pour améliorer l'anisotropie de la gravure, nous avons utilisé un solvant de TEAH (Tetra Ethyl Ammonium Hydroxide). Dans ce cas, la figure 4.5b montre la faible amélioration obtenue.



(a) (b)

FIGURE 4.5 – Profil de la résine après le développement avec (a) TMAH et (b) TEAH.

- **(e) Le dépôt anisotrope d'une couche d'or** : nous utilisons une nouvelle fois la technique d'évaporation pour effectuer le dépôt d'une couche de 140nm d'or. Cette méthode présente l'avantage de déposer les matériaux de manière très directionnelle ($\pm 0.05°$ sur le réseau) et permet d'obtenir un dépôt très anisotrope. Durant cette phase, le profil casquette du bicouche de résine permet d'éviter qu'un dépôt d'or ne se forme sur les flancs de la résine.
- **(f) Le lift-off de la résine** : la casquette de résine a permis de maintenir la discontinuité du film d'or déposé sur le substrat. Elle autorise donc l'infiltration d'un solvant sous la couche de métal qui a été déposée sur la résine. Nous utilisons pour cela un bain de N-Méthyl-2-Pyrrolidone (NMP) chauffé à 60°C. Le profil du réseau est alors complètement reconstitué comme présenté sur la figure 4.6. On remarque toutefois qu'en raison de la trop faible sous-gravure de la résine PMGI, des collerettes d'or sont présentes sur les bords des créneaux du réseau.



(a) (b)

FIGURE 4.6 – Créneaux métalliques après l'étape de lift-off

Nous disposons désormais d'un procédé permettant de fabriquer des réseaux en or. Nous allons donc maintenant considérer la croissance des nanotubes à la surface d'un tel subtrat.

4.2.2 Croissance des nanotubes de carbone

Dans cette partie, nous allons considérer la croissance des nanotubes à la surface de différents substrats. Nous présenterons tout d'abord les bases de la croissance sur silicium. Nous analyserons ensuite les croissances sur couche mince d'or.

4.2.2.1 Principe de la méthode PECVD

La liste des différentes méthodes de croissance des nanotubes a été détaillée dans le chapitre 1 de ce manuscrit. Nous allons donc centrer notre explication sur celle qui sera mise en oeuvre dans cette étude, la croissance par PECVD (en anglais Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition).

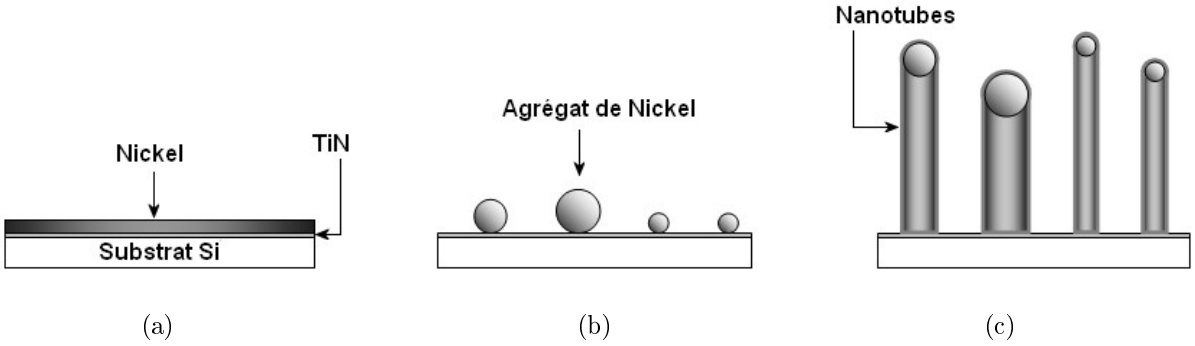
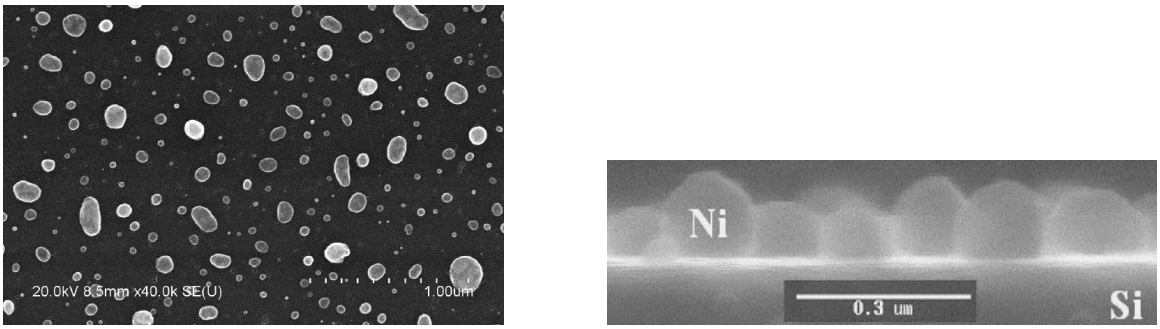


FIGURE 4.7 – Etapes de la croissance orientée des nanotubes de carbone multiparois par PECVD avec successivement : (a) le dépôt d'une couche mince du catalyseur de nickel sur un substrat de silicium, (b) la formation des agrégats de nickel à 700°C, (c) la croissance des nanotubes assistée par plasma à 700°C

Préparation du substrat : Comme le montre la figure 4.7a, la phase initiale de préparation du substrat commence par le dépôt d'une couche de quelques nanomètres d'un catalyseur de croissance sur le substrat de la cathode. Pour cela, plusieurs métaux peuvent être utilisés : le cobalt (Co), le fer (Fe), le nickel (Ni) ou un alliage de ces trois métaux. Cette couche mince ne doit pas être déposée directement sur le substrat de silicium de la cathode. En effet, avec les hautes températures atteintes lors de la croissance, l'association du nickel et du silicium formerait des siliciures de nickel (NiSi, $NiSi_2$) qui rendraient la croissance impossible. Pour éviter ce phénomène, un matériau doit être utilisé comme barrière de diffusion entre le silicium et le nickel. Celui-ci doit être stable chimiquement et mécaniquement jusqu'à des températures de 800°C. Sur la base de précédents travaux menés par notre laboratoire [3], nous avons utilisé dans cette étude une barrière en nitrure de titane (TiN) d'une épaisseur de 15nm et un catalyseur en nickel d'une épaisseur de 7nm.

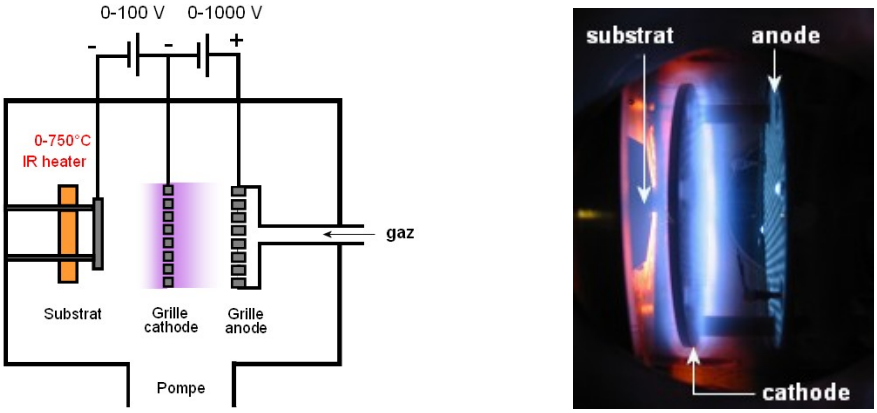
Formation des nanocatalyseurs : Durant la phase préliminaire à l'étape de croissance, l'échantillon est soumis à une augmentation de température dans une chambre à vide. Celui-ci passe de la température ambiante à 700°C en quelques minutes. La figure 4.8 montre l'état d'une couche mince de nickel de 7nm après un recuit sous vide à 700°C. On constate que le film s'est fragmenté pour former par coalescence des agrégats de nickel. On génère ainsi un ensemble de particules de tailles nanométriques qui seront autant de catalyseurs élémentaires de croissance.



(a) (b)

FIGURE 4.8 – Etat du subtrat à l'issu de l'étape d'agrégation du nickel à 700°C.

Croissance PECVD : Après formation des agrégats de nickel, il est possible de débuter la croissance des nanotubes de carbone par PECVD. Elle consiste à activer un mélange de gaz pour créer des entités réactives qui vont se déposer, réagir et former de nouveaux composés à la surface du substrat. Dans ce travail, on a utilisé le mélange des 2 gaz suivants : le premier est l'isopropanol (IPA) qui est le gaz précurseur de carbone et le second est la vapeur d'eau qui est le gaz de gravure. Ce procédé de croissance permet d'obtenir des croissances de nanotubes à des températures comprises entre 550°C et 700°C. Ces températures élevées sont nécessaires à la décomposition du gaz et à la diffusion du carbone dans les particules de catalyseur [4]. Au cours de la croissance, on assiste également à un dépôt de carbone amorphe sur l'ensemble de la cathode. Pour éviter cela, la vapeur d'eau est introduite dans la chambre afin de graver ce dépôt parasite.

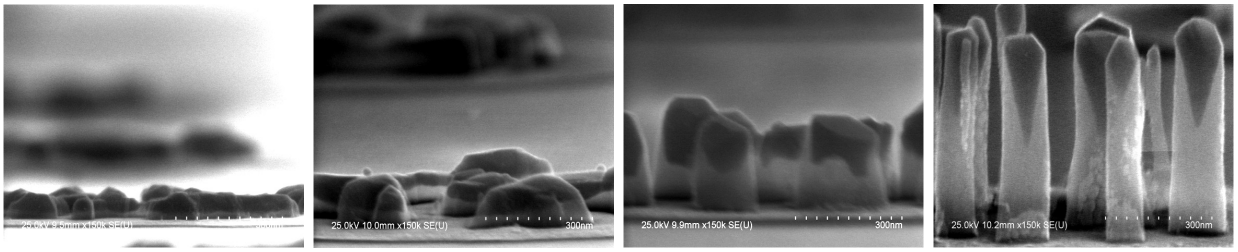


(a) (b)

FIGURE 4.9 – (a) Présentation schématique de la chambre de croissance PECVD. (b) Plasma de la chambre de croissance durant une phase de croissance.

La figure 4.9 précise la position des différents éléments et la polarisation des électrodes au sein de la chambre de croissance. Le plasma est activé en appliquant une différence de tension négative de l'ordre de -700V entre la grille cathode et la grille anode. La différence de

tension entre le substrat et la grille cathode est appelée la tension d'extraction. Elle applique un champ électrique perpendiculaire au substrat qui permet d'extraire les molécules ionisées du plasma pour les diriger vers le substrat. Il s'établit ainsi un courant dit d'extraction qui permet la mesure du flux ionique incident sur la cathode.



(a) (b) (c) (d)

FIGURE 4.10 – Formation des nanotubes durant les premières minutes de la réaction catalytique.

Après l'introduction des gaz dans l'enceinte, la formation du plasma et l'application de la tension d'extraction, la croissance des nanotubes peut débuter. La figure 4.10 présente alors l'évolution du substrat au voisinage des particules de nickel durant les premières minutes de croissance. En raison de la faible adhérence du nickel sur le film de TiN, on constate que chaque particule de nickel est détachée du substrat et maintenue au sommet du nanotube au cours de la croissance. Durant cette phase, le carbone diffuse dans les particules de nickel qui provoquent en surface la précipitation du carbone sous forme de plans graphitiques. La formation de nanotubes verticaux est alors le résultat de deux mécanismes. Tout d'abord, le champ électrique appliqué sur le substrat permet de contrôler la direction de la croissance en exerçant une force électrostatique au sommet du nanotube. Ensuite, le plasma permet de graver le carbone déposé sur la cathode de manière anisotrope. La particule de nickel agit ainsi comme un masque qui protége la structure graphitique formée en aval du flux ionique. Ces deux phénomènes conditionnent à la formation d'une structure graphitique verticale qui peut s'effectuer sur une hauteur de plusieurs dizaines de micromètres.

Durant cette étude, une observation de la particule métallique au microscope électronique par transmission a été effectuée. Notre objectif était de détailler la structure et la composition chimique du catalyseur après la croissance. La figure 4.11 présente le résultat de cette analyse en repérant par des cadres les plans cristallins des différentes espèces identifiées. On constate la présence de nickel ainsi que de plusieurs oxydes métalliques hydrogénés. Ces espèces sont le résultat de la chimie oxydante mise en oeuvre dans le procédé de croissance. En effet, l'introduction de la vapeur d'eau durant la croissance engendre un plasma réactif d'ions oxygène qui oxydent le catalyseur. On remarque également l'absence de plans graphitiques au sommet en conséquence due à la gravure plasma.

Cette analyse conduit à relativiser les calculs effectués sur la particule dans le chapitre 3 où nous l'avions supposée entièrement composée de nickel. L'amplification optique du champ électrique pourrait ainsi être moins bonne que prévue en raison de la présence d'oxydes métalliques notamment à l'apex.

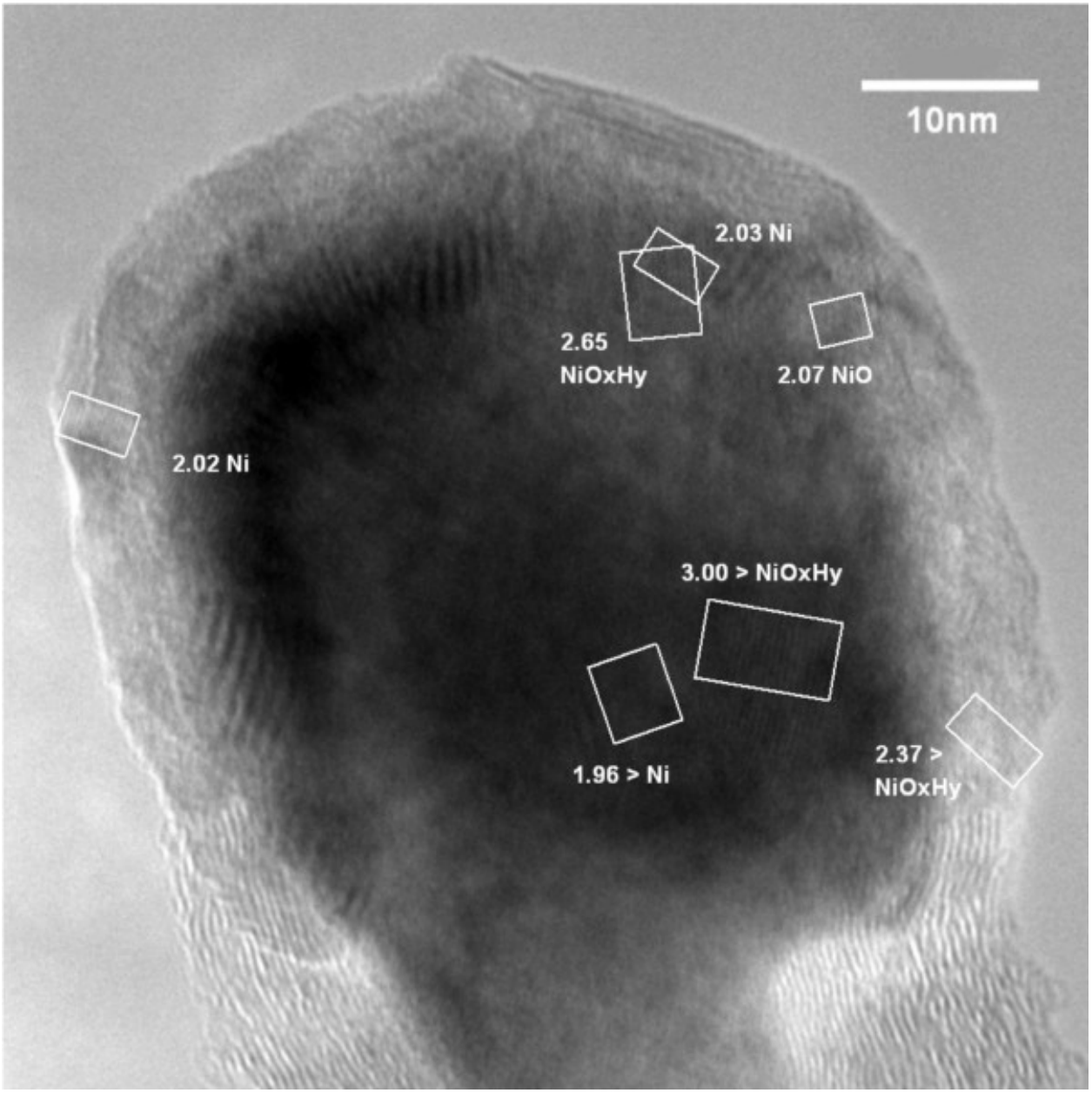


FIGURE 4.11 – Analyse TEM de la particule catalytique au sommet d'un nanotube à l'issu de la croissance PECVD (*observation ONERA*).

Croissance de réseaux : En s'appuyant sur la méthode PECVD que nous venons de décrire, la formation des réseaux ordonnés de nanotubes verticaux devient possible. Celle-ci nécessite toutefois le contrôle de la localisation du dépôt de la barrière de TiN et du catalyseur de nickel. Nous utilisons pour cela une technique de lift-off basée sur l'insolation d'un bicouche de résine. La figure 4.12 montre le cas du bicouche SPR700(1.2µm)/LOR3A(500nm) utilisé en lithographie optique qui permet de fabriquer des plots de TiN/Ni de diamètre 1µm.

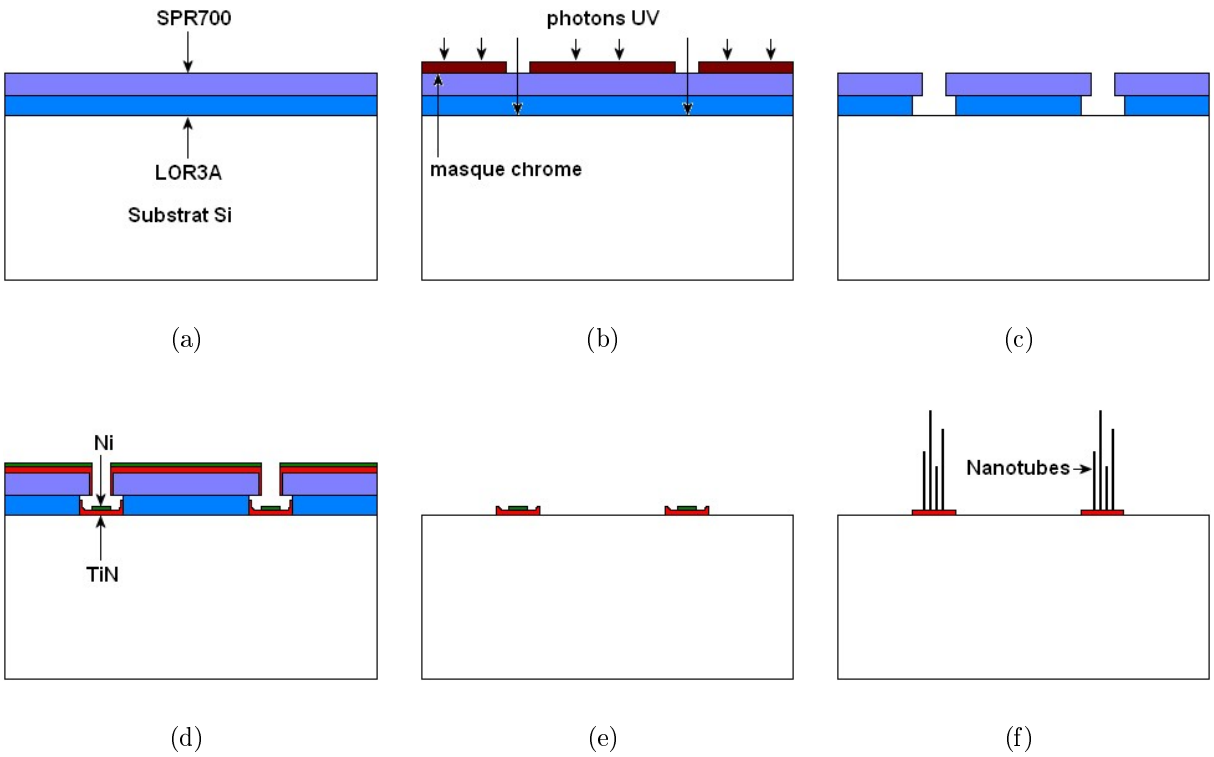
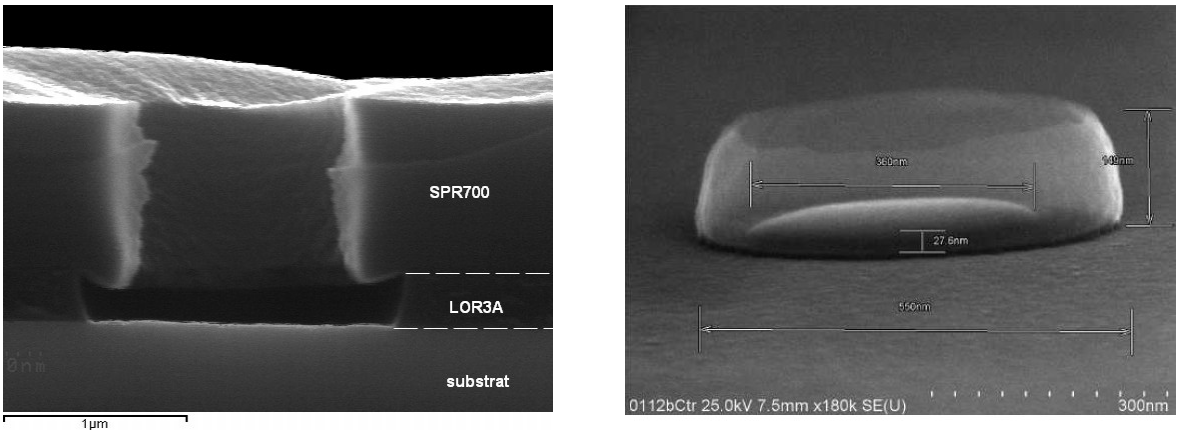


FIGURE 4.12 – Etapes de préparation du substrat pour la croissance PECVD des nanotubes sur des plots de TiN/Ni de diamètre 1µm.

Le masque en chrome utilisé durant l'étape d'insolation de la figure 4.12b permet de transférer dans la résine le dessin d'un réseau de plots à maille hexagonale ou carrée. La période de celui-ci correspond à la distance de moindre écrantage entre émetteur de champ ($p = 2h$). Cela permet d'aboutir après développement au profil de résine illustré sur la figure 4.12c. On dépose ensuite le TiN par la méthode de pulvérisation cathodique puis le Ni par la méthode d'évaporation. Le substrat est alors dans la situation de la figure 4.12d et imagé sur la figure 4.13a.

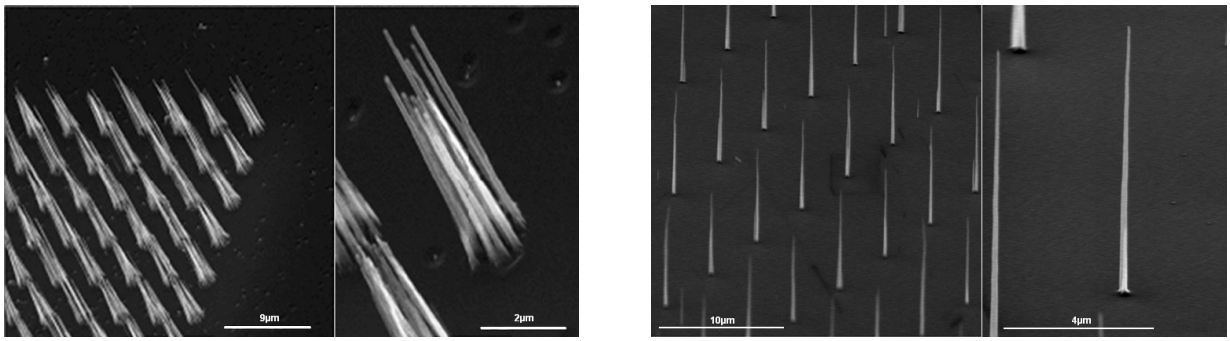
Après dépôt du couple TiN/Ni, l'opération de lift-off est effectuée pour finaliser la préparation du substrat. Après cette étape, on obtient la situation de la figure 4.12e qui est imagée sur la figure 4.13b. On constate qu'une collerette de TiN s'est formée autour du plot. Celle-ci est due au caractère isotrope de la méthode de pulvérisation qui engendre un dépôt de métal sur les flancs de la résine. Cette collerette parasite subsiste parfois après l'étape de lift-off et peut être partiellement détruite par un traitement aux ultrasons.



(a) (b)

FIGURE 4.13 – Images représentant (a) une ouverture de résine de 1µm de diamètre après développement, (b) un plot de TiN/Ni après l'étape de lift-off.

Après l'étape de croissance PECVD, le substrat est à l'étape de la figure 4.12f correspondant à l'image 4.14a. On constate que plusieurs nanotubes par plot se sont formés au cours de la croissance. Cela s'explique en observant la densité d'agrégats que la figure 4.8a permet d'apprécier. On dénombre ainsi plusieurs agrégats de nickel à l'échelle d'un disque de 1µm qui conduisent à autant de croissances de nanotubes.
Pour faire tendre la géométrie de la cathode vers un réseau idéal de nanotubes individuels, il est nécessaire de réduire le diamètre du plot de TiN/Ni déposé typiquement jusqu'à 150nm. La taille du dépôt permet alors de ne former qu'un seul nanocluster de Nickel par plot. Nous pouvons atteindre cette dimension par lithographie électronique à l'aide du procédé bicouche PMMA/PMGI qui a été détaillé pour la fabrication des réseaux. La photo 4.14b illustre le résultat obtenu à l'issu de la croissance après la mise en oeuvre d'un tel procédé.



(a) (b)

FIGURE 4.14 – Images de réseaux de nanotubes (a) après dépôt de plots de diamètre 1µm (lithographie optique), (b) après dépôt de plots de diamètre 150nm (lithographie électronique).

4.2.2.2 Croissance de nanotubes sur couche d'or

A la suite des premières réalisations de réseaux de diffraction en or, notre travail s'est orienté vers la croissance de nanotubes sur des couches minces d'or. Il était alors nécessaire de permettre la croissance des nanotubes tout en assurant la tenue chimique et mécanique de la couche d'or microstructurée jusqu'à une température de 550°C. Pour cela, une technique encapsulation de la couche d'or a été envisagée pour répondre à plusieurs problèmes :

- L'or et le silicium forme un eutectique à 363°C. Par conséquent, il convient de déposer une barrière de diffusion entre le silicium et l'or pour éviter ce phénomène durant la croissance.
- L'exposition du substrat au plasma de croissance est susceptible de modifier la qualité du métal déposé. En effet, l'oxydation, le dépôt de carbone amorphe et la gravure ionique sont des phénomènes perturbant la qualité optique (conductivité, rugosité) des surfaces métalliques. Le dépôt d'un film protecteur à la surface du réseau métallique a donc été considéré pour résoudre ce problème.

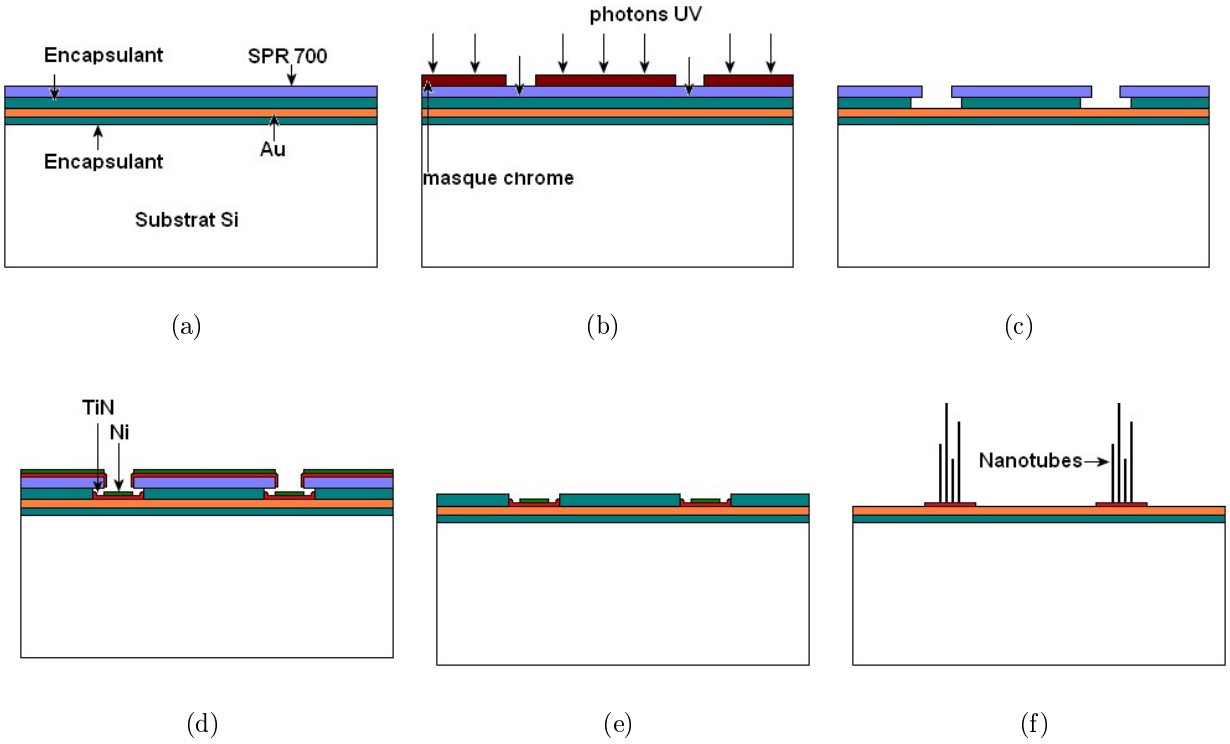
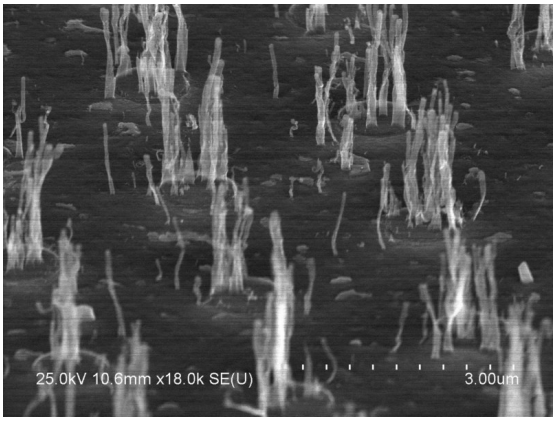


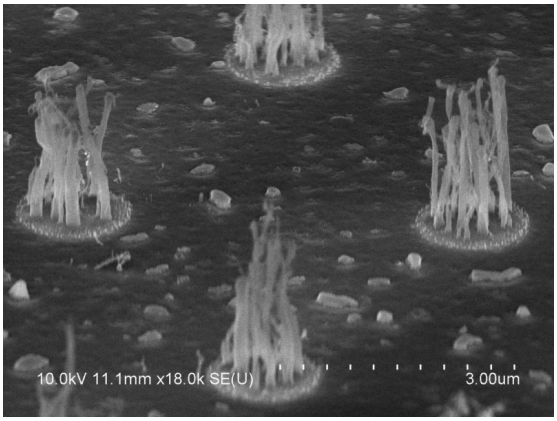
FIGURE 4.15 – Etapes de préparation des substrats conduisant à la croissance PECVD des nanotubes sur substrats métalliques.

La méthode qui a été conçue pour répondre à ces problèmes est présentée sur les schémas de la figure 4.15 dans le cas d'une couche d'or non structurée. Elle considère une encapsulation intégrale de la couche d'or avant l'étape de croissance. Pour cela, nous avons retenu trois matériaux compatibles chimiquement avec le silicium et l'or jusqu'à 550°C : l'oxyde de silicium (SiO_2), le nitrure de silicium (Si_3N_4) et le molybdène (Mo). Le nitrure de titane (TiN) n'a pas été envisagé car son dépôt en couche mince étendue est connu pour être trop fortement contraint. Dans chaque cas, la couche d'or a été déposée entre deux couches de 100nm du matériau encapsulant.

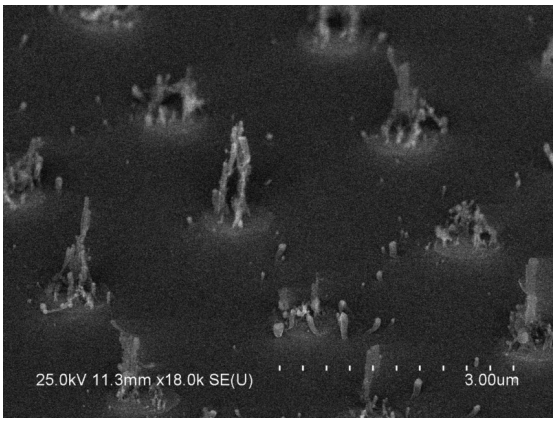
Après l'insolation de la résine et l'étape de développement, le profil casquette nécessaire pour l'opération de lift-off est obtenue par la sous-gravure du matériau encapsulant qui n'a donc pas joué le rôle attendu. On utilise de l'acide fluorhydrique pour graver le SiO_2 et Si_3N_4 et une solution commerciale *Moly Etch* pour graver le Mo. Pour les trois gravure, on utilise un bain de rinçage d'eau désionisée. Après avoir effectué la gravure, les dépôts et le lift-off, le substrat se trouve dans la configuration **(e)**.



(a)



(b)



(c)

FIGURE 4.16 – Croissance PECVD des nanotubes sur film d'or à 550°C avec encapsulation (a) Nitrure de silicium (Si_3N_4), (b) Silice (SiO_2) et Molybdène (Mo).

Ensuite, les différents substrats ont été soumis indépendamment à une croissance à 550°C. Les résultats pour Si_3N_4 et SiO_2 sont présentés sur les figures 4.16a et b. Dans ces deux cas, on constate que la surface est fortement dégradée par l'apparition d'une multitude d'ilôts micrométriques résultant de la diffusion de l'or à travers le matériau encapsulant. La structure des nanotubes est également très dégradée dans ce cas. La figure 4.16c donne le résultat pour Mo. On peu voir que la surface est beaucoup plus régulière et semble avoir contenu la diffusion. Toutefois, les nanotubes de carbone résultant de cette croissance présentent une taille anormalement petite, possèdent une gravure importante au niveau de leur base et sont d'une très mauvaise qualité cristalline.

D'après ce résultat, nous voyons qu'un travail important doit être réalisé pour que la solution d'encapsulation puisse s'imposer. Celui-ci nécessiterait notamment une étude complète de la qualité du dépôt des couches de Si_3N_4 et SiO_2 (rugosité, contraintes, défauts) ainsi qu'une étude de la croissance sur matériau métallique comme Mo. Avant d'entreprendre une telle analyse, nous avons choisi d'explorer une autre voie technologique qui permettrait de déposer l'or sur le substrat après la croissance des nanotubes. En conservant un substrat silicium au cours de la croissance, cette alternative s'appuie sur l'expérience de notre laboratoire sur les croissances sur silicium et élimine donc les problèmes de diffusion. Nous allons développer cette solution dans la suite de notre présentation.

4.2.3 Fabrication du réseau par dépôt métallique isotrope sur microstructuration silicium.

La solution que nous allons proposer envisage la fabrication du réseau concentrateur en silicium. Celle-ci nécessite de parvenir à la gravure anisotrope du silicium qui est connue pour être bien maîtrisée par des technologies microélectroniques. La croissance de nanotubes sera ainsi réalisée directement sur silicium avant le dépôt d'or et permettra d'éviter les problèmes associés à la présence de l'or lors de la croissance. Le procédé que nous avons mis au point comprendra donc le dépôt de la couche d'or sur le substrat à l'issu de l'étape de microstructuration sur silicium. Les différentes étapes de ce procédé sont données sur la figure 4.17.

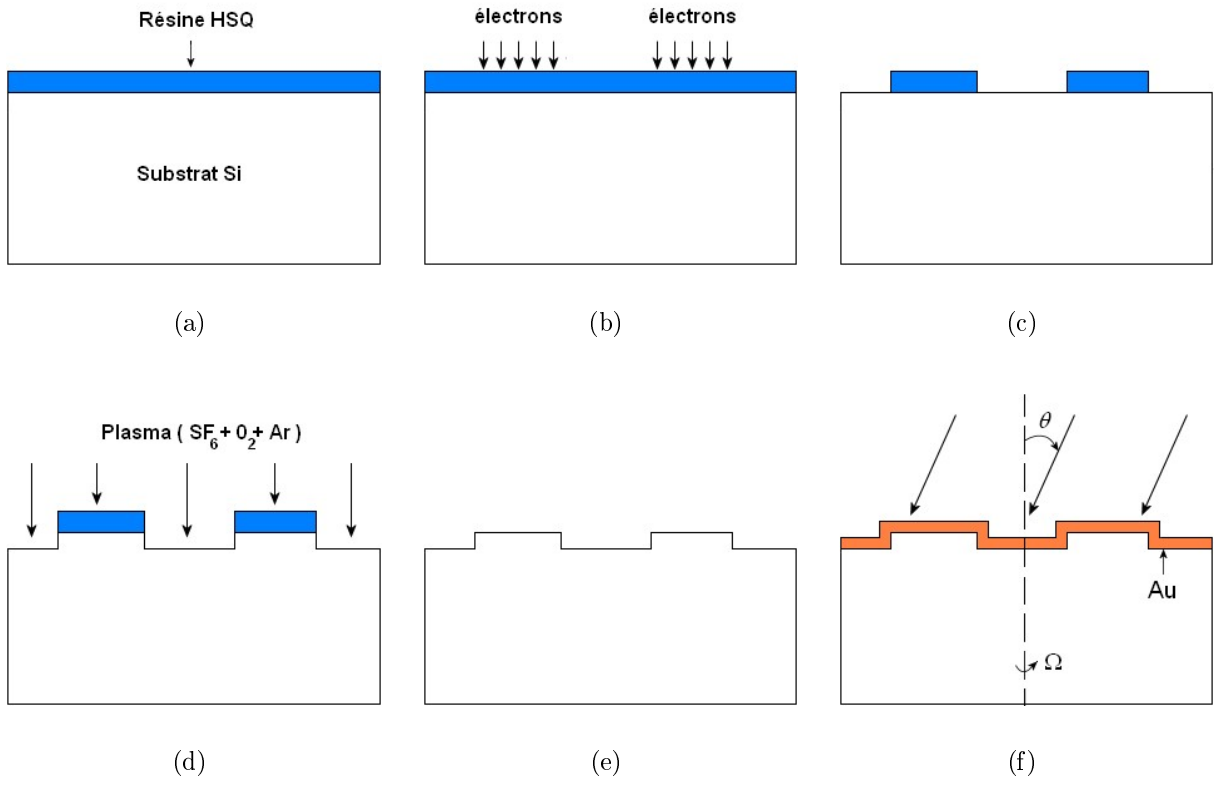
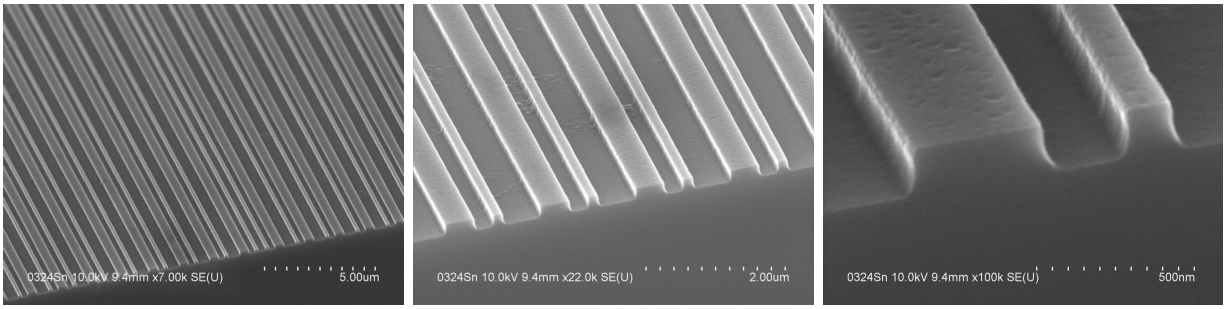


FIGURE 4.17 – Etapes de fabrication des réseaux métalliques utilisant la technique de dépôt isotrope.

Nous commençons par déposer une couche de résine HSQ par spin-coating sur le substrat. Celle-ci doit alors dégazer pendant 12h à température ambiante pour permettre son durcissement. Nous avons utilisé cette résine à contraste négatif dans notre procédé car elle possède une composition proche de la silice qui lui confère une bonne résistance à la gravure ionique. A la différence d'une résine positive, le développement d'une résine négative ne conserve que les zones qui ont été insolés durant la lithographie. Cette caractéristique est illustrée par les étapes (b) et (c) de la figure 4.17.

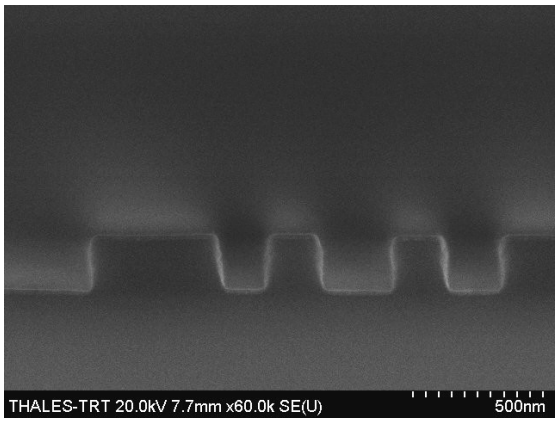


(a) (b) (c)

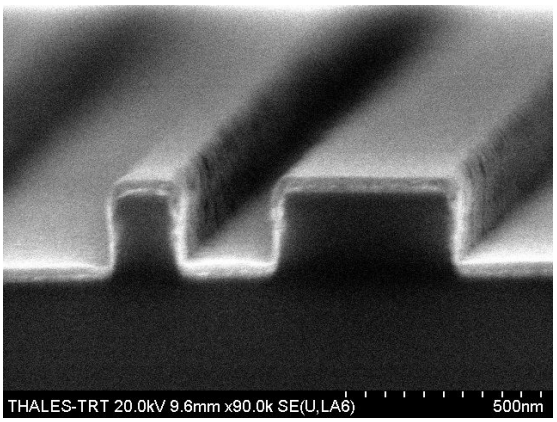
FIGURE 4.18 – Réseau en silicium vue par la tranche après la gravure de la résine HSQ.

Après le développement, la figure 4.17d montre que le substrat est ensuite soumis à une gravure ionique réactive par un plasma alimenté avec un mélange gazeux d'hexafluorure de soufre (SF_6), d'oxygène (O) et d'argon (Ar). On aboutit alors à une gravure anisotrope du subtrat sur une épaisseur de 140nm qui est nécessaire à la réalisation du réseau concentrateur. Les portions de résine restantes après l'étape de gravure sont enlevés par gravure humide avec une solution d'acide Fluorhydrique. Le substrat se trouve alors dans la configuration illustrée sur la figure 4.17e et présentée sur les images de la figure 4.18. Dans la suite de ce travail, nous allons considérer l'intégration de nanotubes à la surface de ce subtrat structuré. Néanmoins, pour préparer l'étape de métallisation post-croissance, nous devons vérifier que ces réseaux en silicium peuvent être uniformément recouverts d'une couche d'or.

Le dépôt isotrope de l'or : Pour permetttre l'isotropie du dépôt, nous choisissons d'adapter le dépôt d'or effectué dans la méthode de fabrication des réseaux par lift-off. L'échantillon est ici incliné de 60° par rapport à l'axe de révolution qui passe par le centre du creuset de la chambre d'évaporation. La figure 4.17f illustre cette disposition particulière qui permet d'exposer les flancs du réseau au flux d'atomes. Cela doit ainsi permettre d'engendrer un dépôt homogène de la couche d'or sur le réseau concentrateur. Pour cela les vitesses de dépôt et de rotation du substrat sont ajustées pour permettre le dépôt de 9nm d'or sur 10 rotations complètes du réseau.



(a)



(b)

FIGURE 4.19 – Réseaux vus par la tranche après l'étape de métallisation (a) avec 20nm d'or, (b) avec 40nm d'or.

La figure 4.19 présente deux réalisations de cette opération de dépôt pour des épaisseurs de 20nm et 40nm. On constate que l'épaisseur du film métallique est plus faible sur les flancs des créneaux. Il sera donc nécessaire de déposer une épaisseur d'or plus importante que prévu pour assurer la continuité de la couche métallique au niveau des flancs.

4.2.4 La croissance sur le concentrateur silicium

La présence de l'or durant la croissance des nanotubes rend la fabrication de la cathode THz difficile. Aussi, nous avons opté pour une intégration directe des nanotubes sur des réseaux concentrateurs en silicium. La fabrication des réseaux silicium et celle des nanotubes ont été précédemment présentées indépendamment. Nous allons maintenant considérer l'association de ces deux objets en utilisant le réseaux de silicium obtenu à l'issu de l'étape (e) de la figure 4.17.

Pour respecter le design de la cathode THz, nous devons maitriser le dépôt des plots de TiN/Ni à la surface des créneaux du réseau concentrateur. Avant cela, leur diamètre doit être déterminé pour que les nanotubes obtenus respectent les dimensions imposées. Pour cela, on relie de manière approximative le rayon du plot de nickel au rayon du nanotube par la relation suivante :

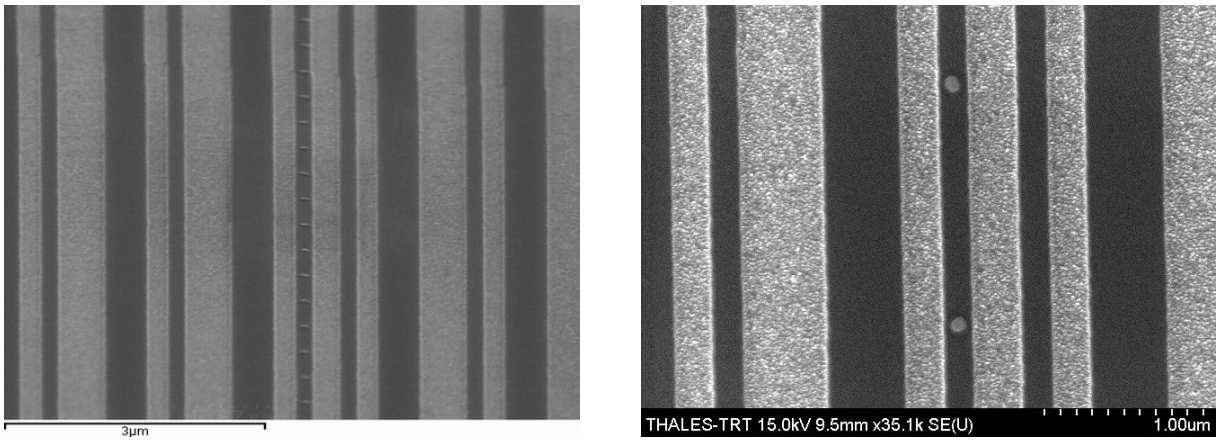
$$r_{cnt} = \sqrt[3]{\frac{3}{4} r_{plot}^2 h_{plot}}$$

Avec r_{cnt} le rayon du nanotube, r_{plot} et h_{plot} respectivement le rayon et la hauteur du plot. Cette relation traduit l'équivalence du volume cylindrique du plot et du volume approximativement sphérique de la particule catalytique. Pour obtenir un nanotube d'une hauteur de 1µm de rapport d'aspect h_{cnt}/r_{cnt} de 200, ce calcul conduit à un diamètre de plot de 10nm. Cette dimension est en amont des techniques maîtrisée dans le contexte de cette étude. A la place, nous avons considéré des plots de 80nm conduisant à des diamètres nanotubes 4 fois plus grand que dans le cas théorique. Cette augmentation conduit à réduire le facteur d'amplification ($\beta \propto h/r$) d'un facteur facteur 4. Sur ces cathodes, on s'attendra donc à observer une augmentation du champ électrique macroscopique d'un facteur 4 pour extraire un courant équivalent à nos cathodes traditionnelles.

Pour assurer le dépôt localisé des plots de TiN/Ni, un alignement particulièrement précis a dû être maîtrisé à l'aide d'un nanomasqueur électronique 80kV. Les figures 4.21a et 4.21b donnent un aperçu du premier et du deuxième niveau de lithographie. L'alignement entre ces deux niveaux est effectué par la fabrication préalable de marques d'alignement (carrés de 8µm situés à 300µm du réseau) qui fournissent un référentiel commun aux deux motifs lithographiés. Nous présentons sur les figures 4.21c et 4.21d le résultat de cette étape d'alignement. On distingue assez nettement la présence des plots déposés sur le créneau du concentrateur grâce à la différence de contraste électronique entre le nickel et le silicium.

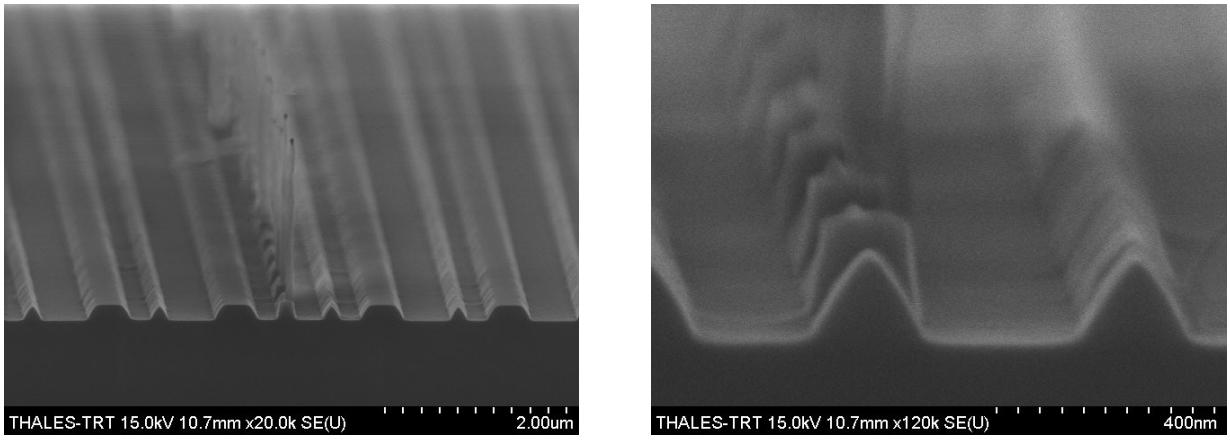
(a) (b)

FIGURE 4.20 – Visualisations graphiques du fichier de programmation du nanomasqueur électronique 80keV (premier niveau d'insolation en gris, deuxième niveau en rouge).



(a) (b)

FIGURE 4.21 – Résultat de l'alignement des plots de TiN/Ni sur le réseau concentrateur avec (a) vue élargie et (b) vue rapprochée.

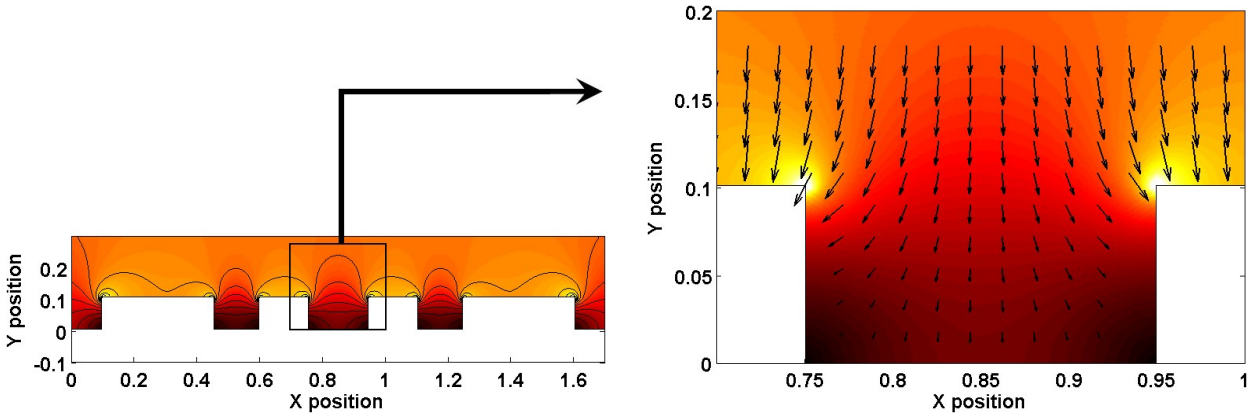


(a) (b)

FIGURE 4.22 – Substrat vu par la tranche après l'étape de croissance avec (a) une vue large et (b) une vue rapprochée.

La figure 4.22 présente la tranche de cet échantillon observée après la croissance des nanotubes. On constate qu'une gravure importante des créneaux du réseau concentrateur s'est produit durant cette étape. Plus précisément, on constate que cette gravure déforme préférentiellement les bords des créneaux. Il est intéressant de noter que les portions des créneaux recouverts de TiN sont moins gravées que les autres.

Pour expliquer l'effet d'érosion ionique que nous venons d'observer, nous devons considérer l'orientation du champ électrique à la surface de l'échantillon durant la croissance. En effet, comme mentionné sur le schéma de la figure 4.9a, un potentiel est appliqué sur le substrat afin d'assurer l'orientation verticale de la croissance et l'existence du plasma dans l'espace cathode grille.

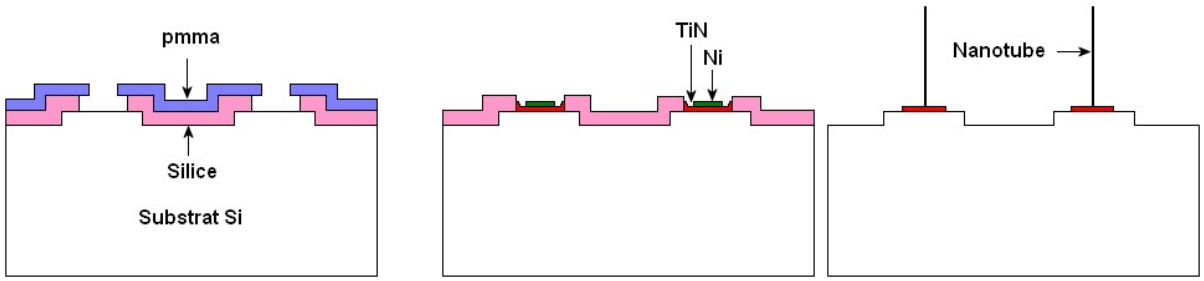


(a) (b)

FIGURE 4.23 – Simulation du champ électrique au voisinage du réseau concentrateur avec (a) une vue générale avec isolignes de champ et (b) une vue rapprochée avec champ de vecteurs.

Pour analyser la configuration du champ électrique au voisinage de notre cathode, nous effectuons une simulation du potentiel électrique à la surface de notre réseau. La figure 4.23 présente la distribution des isolignes de champ sur la figure 4.23a et l'orientation du champ électrique sur la figure 4.23b. On constate que les isolignes de champ sont fortement perturbées par la présence de la structuration du réseau. L'orientation du champ électrique indique que les bords des créneaux génèrent un effet de pointe important. Celui-ci induira donc localement un effet de lentille électrostatique pour les particules chargées positivement et provoquera ainsi la focalisation du flux ionique sur les bords des créneaux. Cet effet explique donc l'aspect de la gravure observé sur la figure 4.22.

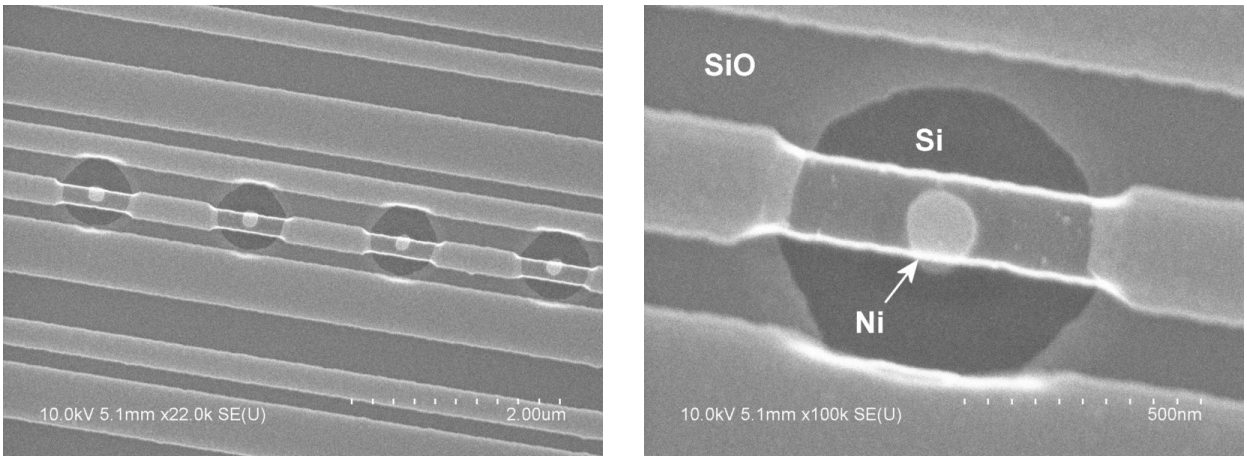
A la suite de cette observation, nous avons envisagé des moyens pour réduire la gravure des créneaux. Nous avons ainsi étudié une solution combinant une meilleure protection du subtrat et une optimisation du plasma croissance. La protection du substrat a tout d'abord été envisagée sur la base du procédé de la figure 4.24.



(a) (b) (c)

FIGURE 4.24 – Etapes de préparation du substrat avec couche protectrice en silice contre la gravure ionique.

Celui-ci se base sur un bicouche PMMA(200nm)/SiO_2(50nm) et permet de déposer les plots par lift-off conformément à notre précédente description de la méthode. Toutefois, la couche de silice peut alors être conservée après le lift-off de la PMMA tel que présenté sur la figure 4.24b. Cette couche de 50nm devrait ainsi permetttre une protection de la surface du silicium de l'agression par le plasma de croissance. En cela, elle agira comme une couche tampon qui devra avoir majoritairement disparu après la croissance. Si quelques résidus de silice subsistent après la gravure, une gravure très brève du substrat à l'acide Fluorhydrique pourra être envisagée (les nanotubes sont chimiquement très stables et ne sont pas gravés par cette solution). Les images correspondant à ce stade de la fabrication sont présentées sur la figure 4.25. On constate que l'alignement du plot sur le créneau s'est correctement déroulé. On distingue également la présence de la silice dont la gravure trop importante a dessiné le disque sombre autour du plot. Ce point a été amélioré dans les versions ultérieures de ce procédé. On note également que le TiN est difficilement visible sur cet image car son constrate est proche de celui du silicium.

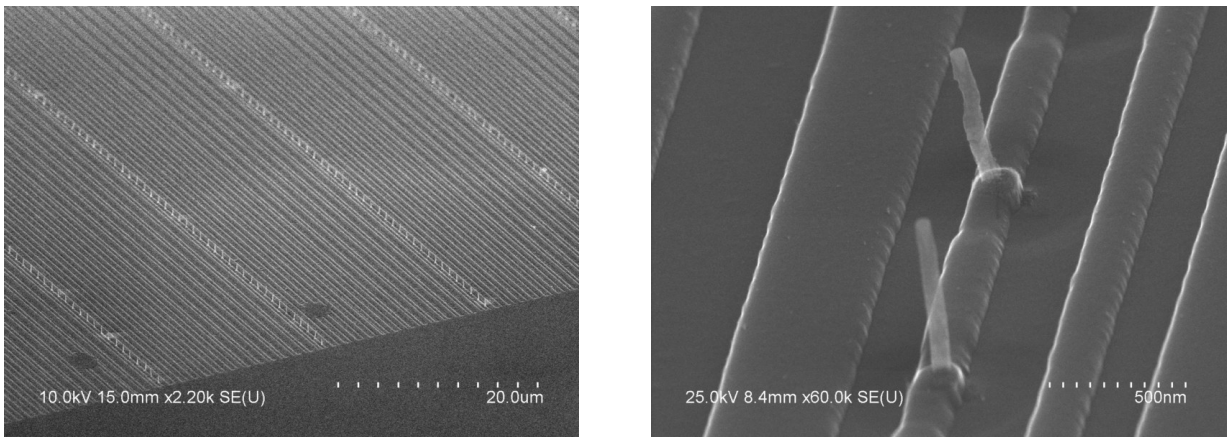


(a) (b)

FIGURE 4.25 – Substrat avant croissance protégé par une couche de silice de 50nm.

La figure 4.26 présente le résultat de la croissance réalisée sur cet échantillon. On peut remarquer que le pied de chaque nanotube est entouré d'une légère oréole. Celle-ci se situe aux endroits qui ne sont pas protégés par la couche silice durant la croissance. On montre ainsi que la silice produit bien un effet retardateur sur la gravure du substrat. On constate aussi que les flancs des créneaux semblent toujours subir une gravure trop importante. Il serait donc intéressant d'augmenter l'épaisseur du revêtement de silice pour améliorer la protection du substrat. Néanmoins, l'épaisseur de cette couche influe directement sur la résolution de la technique du lift-off et serait incompatible avec l'objectif de tendre vers des diamètres de plot de 10nm.

Par ailleurs, on peut remarquer que la portion du créneau située sous le plot de TiN est mieux protégée de la gravure. Ceci a pour effet de déformer le créneau du concentrateur de manière trop importante pour que nous puissions valider le concept de cathode THz. Toutefois, cela n'implique pas qu'il faille impérativement tendre vers une réplique fidèle du motif du concentrateur simulé dans le chapitre 2. En effet, nous avons pu vérifier au cours de nos simulations que de légères perturbations de la crénelure du concentrateur pouvaient être tolérée notamment au niveau des bords des créneaux (arrondissement, dépôts).

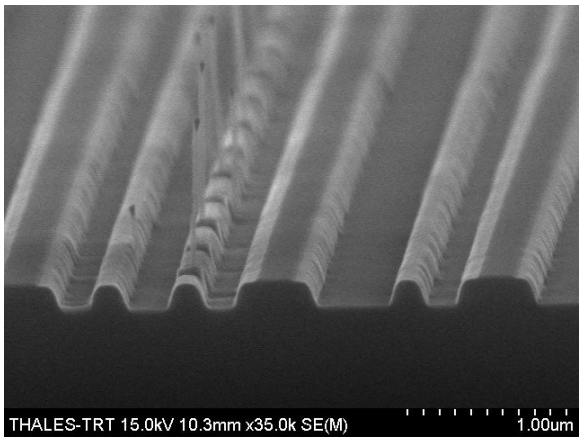


(a) (b)

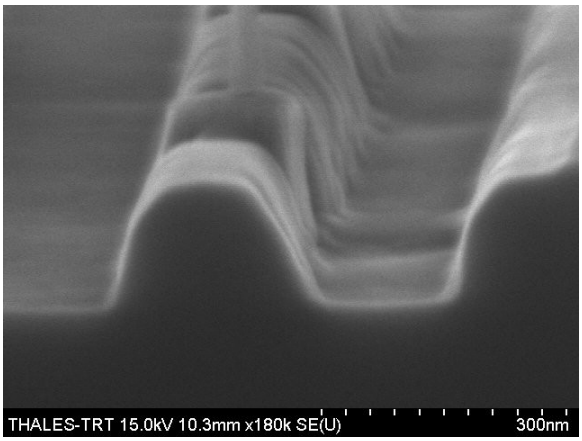
FIGURE 4.26 – Images MEB présentant un substrat après l'étape de croissance avec (a) vue large et (b) vue rapprochée.

La réduction de la gravure du réseau silicium provoquée par le plasma de croissance a également fait l'objet d'une optimisation conduite par le *Laboratoire de physique des interfaces et Couches minces*. La stratégie adoptée a consisté à agir sur les paramètres permettant de réduire les facteurs aggravant du phénomène de gravure que sont la densité du plasma, la composition du plasma, l'énergie des ions et le temps de gravure. En particulier, l'impact des opérations suivantes a été étudié :

- **diminution du potentiel et du courant d'extraction** : L'abaissement du potentiel et du courant d'extraction mènent respectivement au ralentissement de l'énergie des ions du plasma et à la réduction flux ionique incident sur le substrat. Cela permet ainsi de diminuer la gravure mais engendre également le ralentissement de la croissance des nanotubes. En effet, la réaction de catalyse est directement dépendante de la quantité de carbone qui est incidente par unité de temps sur les catalyseurs. Elle est donc dépendante du flux et de l'énergie du gaz précuseur.
- **régulation du rapport des débits d'isopropanol et de vapeur d'eau** : le contrôle de ce rapport permet d'ajuster la vitesse de croissance des nanotubes et le rapport dépôt/gravure à la surface de la cathode. Celui-ci a été légèrement augmenté pour permettre d'augmenter la densité du plasma en carbone.



(a)

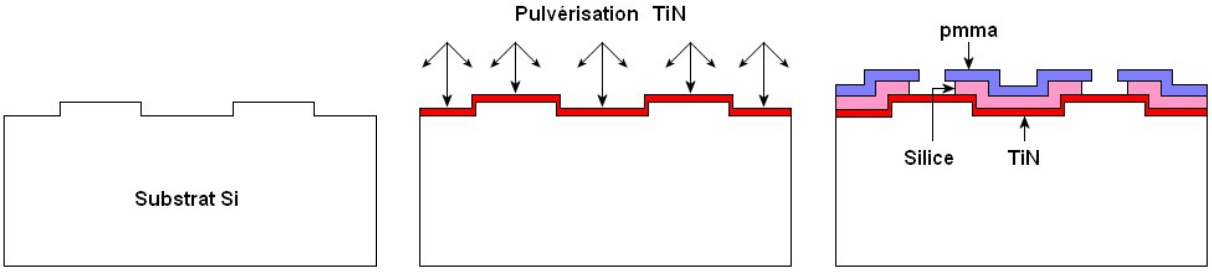


(b)

FIGURE 4.27 – Images présentant un substrat vu par la tranche après l'étape de croissance avec (a) une vue large et (b) une vue rapprochée.

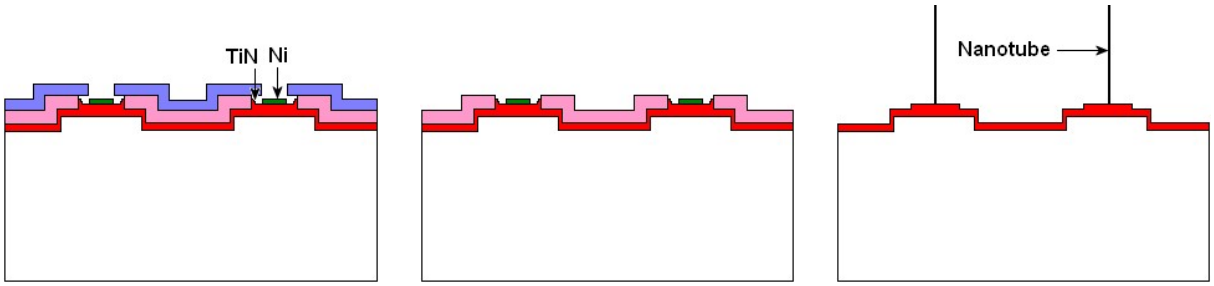
La figure 4.27 présente deux clichés illustrant le résultat à l'issu de cette optimisation. Nous pouvons constater que la gravure des points anguleux a été réduite en comparaison avec celle de la figure 4.22. Sur la base de ce résultat, il a paru envisageable d'exploiter ce type d'échantillon pour étudier la phase de métallisation post-croissance de la cathode.

Perspectives : Néanmoins, dans un objectif de perfectionnement de la cathode THz, nous proposons sur les figures 4.28 et 4.29, un ensemble d'étapes ouvrant sur la réalisation de cathodes plus respectueuses de notre design original. Ce nouveau procédé a été conçu à la suite du résultat obtenu au niveau des plots de TiN sur la figure 4.22. En effet, nous avions alors relevé que ceux-ci semblaient offrir une bonne protection du profil du créneau à la gravure. Il est à noter cependant qu'un dépôt de TiN d'une épaisseur de 15nm est trop contraint pour être déposé en pleine plaque. Nous proposons donc d'optimiser ce dépôt, notamment en diminuant son épaisseur, pour qu'il puisse recouvrir l'intégralité du réseau. L'efficacité de cette solution sera prochainement évaluée dans notre laboratoire.



(a) Étape 1 (b) Étape 2 (c) Étape 3

FIGURE 4.28 – Étapes 1 à 3 de préparation du substrat adaptées à la protection des créneaux par le dépôt d'une couche de Nitrure de Titane (TiN) par pulvérisation cathodique.



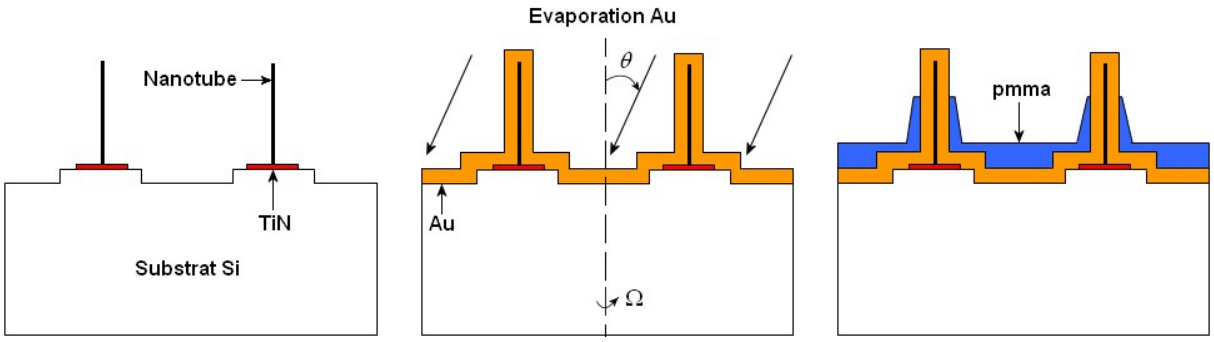
(a) Étape 4 (b) Étape 5 (c) Étape 6

FIGURE 4.29 – Étapes 4 à 6 de préparation du substrat adaptées à la protection des créneaux par le dépôt d'une couche de Nitrure de Titane (TiN) par pulvérisation cathodique.

4.2.5 Métallisation post-croissance

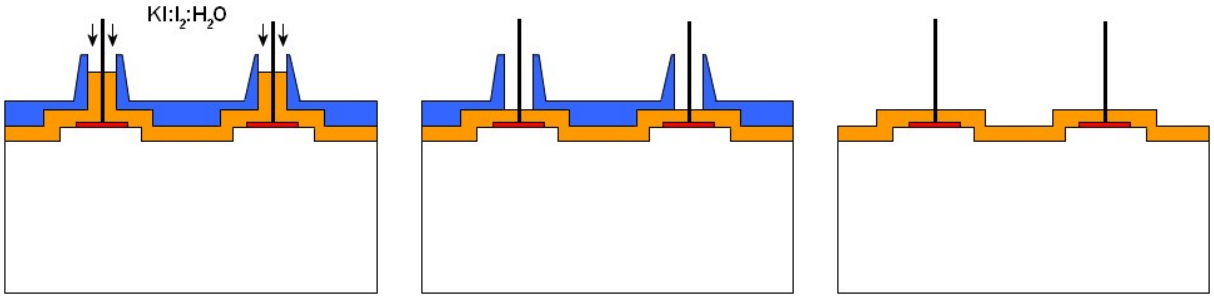
4.2.5.1 Étude sur cathode traditionnelle

Dès lors que la croissance des nanotubes sur la cathode THz est effectuée, il est nécessaire de métalliser celle-ci pour permettre l'existence des ondes de surface. Mais ce dépôt qui va recouvrir intégralement les nanotubes est néfaste pour le phénomène d'émission de champ. En effet, cette couche additionnelle engendre une diminution du rapport d'aspect et diminue ainsi le facteur d'amplification de l'émetteur de champ. Par exemple, pour un dépôt de 40nm, l'amplification du champ électrique chute typiquement de 60%. Outre ce problème géométrique, la présence de l'or au sommet du nanotube rend l'extraction électronique très instable. En effet, la jonction tunnel se situe alors à l'interface or/vide qui est connue pour être électriquement plus instable que l'interface nanotube/vide (notamment en raison des états localisés). Au cours de cette étude, une réponse à ce problème a été envisagée.



(a) Etape 1 (b) Etape 2 (c) Etape 3

FIGURE 4.30 – Etapes 1 à 3 présentant le procédé de gravure sélective de l'or le long des nanotubes.



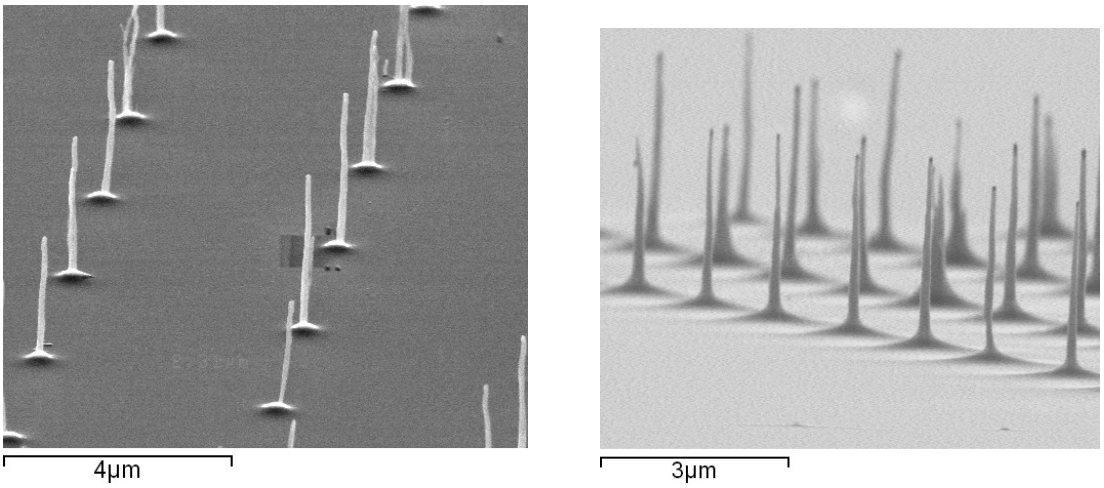
(a) Etape 4 (b) Etape 5 (c) Etape 6

FIGURE 4.31 – Etapes 4 à 6 présentant le procédé de gravure sélective de l'or le long des nanotubes.

Plus précisément, un procédé pour graver sélectivement l'or déposé le long des nanotubes et le garder sur le réseau a été mis au point. Celui-ci est schématisé sur les figures 4.30 et 4.31 et les résultats illustrés dans le cas d'une cathode traditionnelle sur les images de la figure 4.32. Les nanotubes de cette cathode possèdent une hauteur voisine de 5µm, un rayon de 25nm et sont répartis sur un réseau à maille carré de période 5µm. La mise en oeuvre de cette opération s'appuie sur le substrat que nous présentons sur l'étape **(a)** de la figure 4.30.

L'opération doit ensuite se dérouler comme suit :

- **Dépôt d'or par évaporation** : A l'étape **(b)**, on procède à la métallisation de la cathode par la méthode d'évaporation et en inclinant l'échantillon par rapport à la source atomique de 60°. On reprend alors les conditions obtenues durant la fabrication du réseau d'or pour obtenir le dépôt isotrope. A la fin de ce dépôt, les nanotubes sont recouverts d'or.



(a) (b)

FIGURE 4.32 – (a) Substrat à l'issu de la métallisation et(b) à l'issu du résinage.

- **Enduction de résine** : A l'étape **(c)**, une couche de résine PMMA est déposée par spin-coating à la surface de l'échantillon. Le rapport d'aspect des nanotubes provoque alors la discontinuité du film de résine au sommet des nanotubes. Cependant, le dépôt de la résine contraint mécaniquement les nanotubes et doit être exécutée de manière très douce. Pour cela, on commence par déposer la résine sur la cathode au repos. On impose alors une très faible accélération (100tr/s/min) ainsi qu'une faible vitesse (2000tr/s). A la fin du dépôt, on peut voir sur l'image 4.32b que la viscosité de la résine engendre un élargissement au niveau du pied des nanotubes.
- **Gravure humide de l'or** : A l'étape **(d)**, on procède ensuite à la gravure chimique de l'or avec une solution[1] de $KI:I_2:H_2O$. La solution commence par graver l'or au sommet du nanotube, puis se glisse entre la résine et le nanotube jusqu'à sa base de ce dernier.

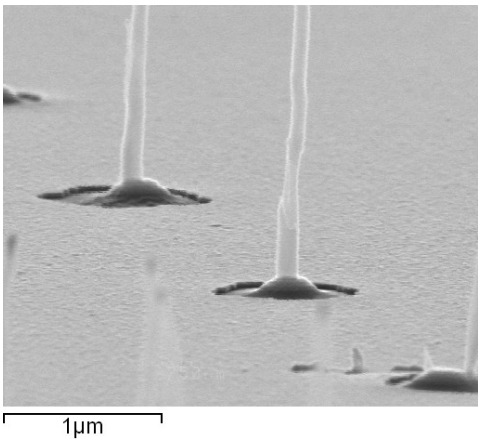
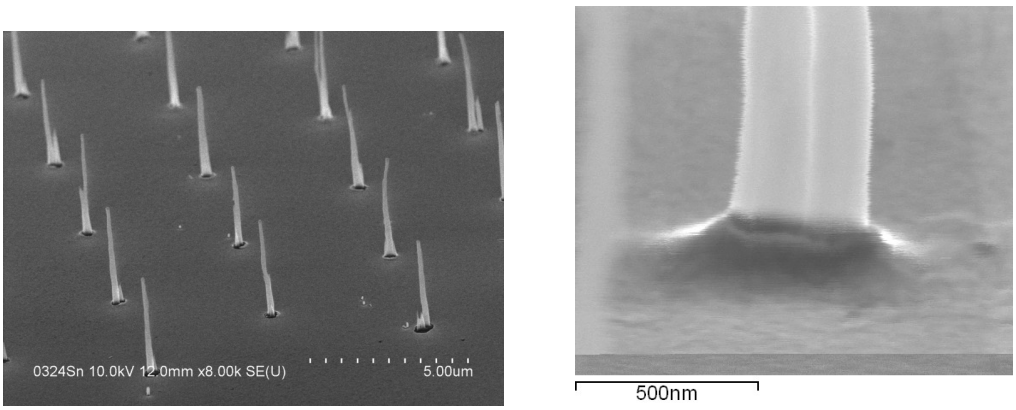


FIGURE 4.33 – Substrat après la gravure avec la solution de $KI:I_2:H_2O$ et dérésinage.

- **Nettoyage du subtrat** : Comme présenté à l'étape **(e)**, on doit contrôler précisément l'arrêt de la gravure avec un bain de rinçage d'eau désionisée. En dissolvant la résine dans l'acétone, on parvient finalement à l'étape **(f)** comme en témoignent l'image 4.33 dans un cas de sous-gravure importante et les images 4.34 dans un cas mieux contrôlé.



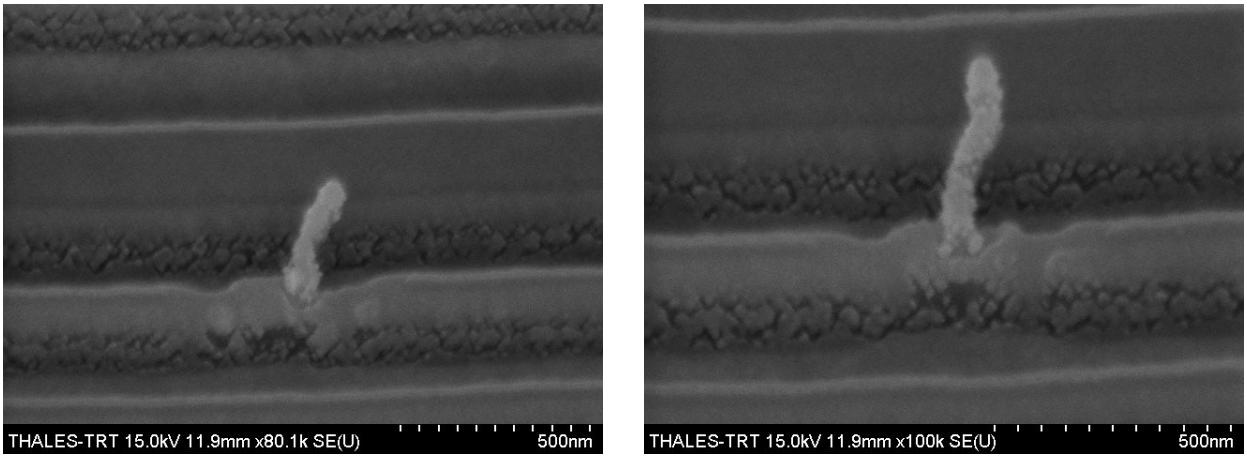
(a) (b)

FIGURE 4.34 – Substrat après calibration du temps de gravure de l'or.

1. On rappelle en effet que le diiode (I_2) réagit avec l'or selon la réaction : $2\,Au + I_2 \longrightarrow 2\,AuI$. Dans la solution de $KI:I_2:H_2O$, l'iodure de potassium (KI) favorise la solubilité de AuI

4.2.5.2 Étude de la gravure de l'or sur la cathode THz

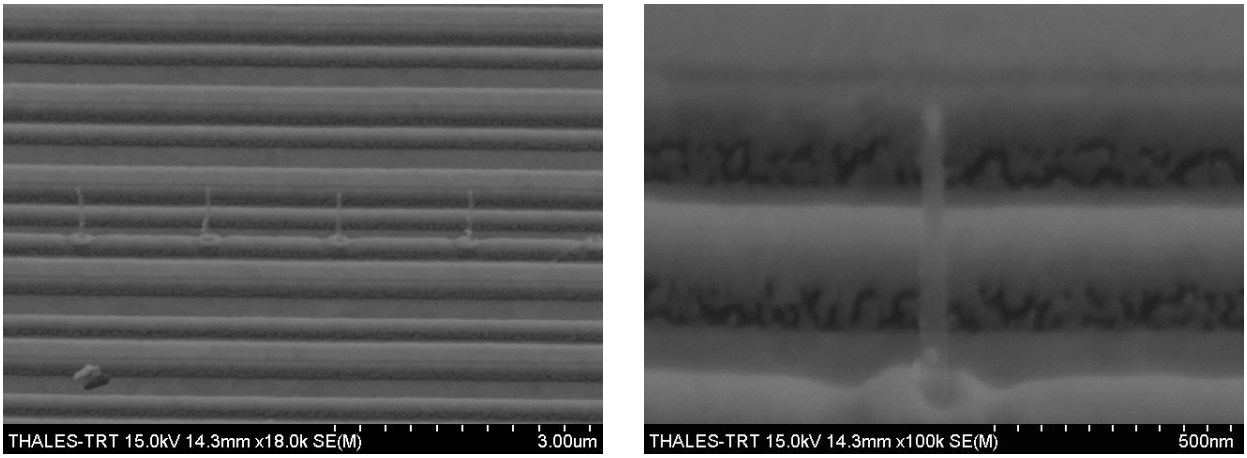
Après avoir mis au point la gravure de l'or sur une cathode traditionnelle, nous allons appliquer ce procédé sur une cathode THz. Pour cela, nous utilisons une cathode à l'issu de la croissance des nanotubes sur silicium que nous exposons au dépôt d'or par évaporation. Toutefois, dans une phase de validation préalable, nous avons simplement métalliser la cathode par une évaporation en incidence normale et sans rotation du substrat.



(a) (b)

FIGURE 4.35 – Cathode THz après le dépôt d'or.

Le résultat de la métallisation est présenté sur la figure 4.35. On peut noter que le flanc des créneaux du réseau n'est pas correctement recouvert en résultat de l'orientation en incidence normale du flux d'atomes d'or. Comme attendu, on remarque également que les nanotubes sont complètement recouvert par le dépôt d'or.



(a) (b)

FIGURE 4.36 – Cathode THz de la figure 4.35 après gravure sélective de l'or sur les nanotubes.

Nous avons ensuite appliqué le procédé de gravure sélective de l'or sur cette cathode. Le résultat obtenu à l'issu de cette étape est présenté sur les images de la figure 4.36. On constate alors que l'or déposé sur les nanotubes a été complètement enlevé. On peut également remarquer que l'or est toujours présent sur le substrat en observant les flancs des créneaux sur lesquels l'inhomogénéité sur dépôt métallique est toujours visible. Ces éléments indiquent donc la réussite de la dernière étape de notre procédé de fabrication des cathodes THz.

4.2.6 Conclusion

Au cours de cette partie, la mise au point de la fabrication de la cathode THz a été menée jusqu'à son terme. En affinant notre connaissance des procédés utilisés et la prise en compte de leurs contraintes technologiques, nous avons progressivement réussi à envisager un cheminement viable à la fabrication de ce composant. Nous avons notamment réussi à assurer la réalisation d'un réseau métallique de faible rugosité malgré le passage du substrat par une phase de bombardement ionique et des températures supérieures à 500°C.

Pour cela, plusieurs procédés ont été mis au point. On peut noter le procédé bicouche PMMA/PMGI dont l'utilisation s'est généralisée à la fabrication des plots des cathodes à nanotubes. On note également la conception d'un procédé original permettant la gravure sélective d'un film d'or sur les nanotubes. Celui-ci a permis de réaliser entièrement la conception de la cathode THz et a récemment donné lieu à l'écriture d'un brevet au sein de notre laboratoire.

Nous tenons cependant à mentionner deux axes d'étude pour la suite de ce travail :

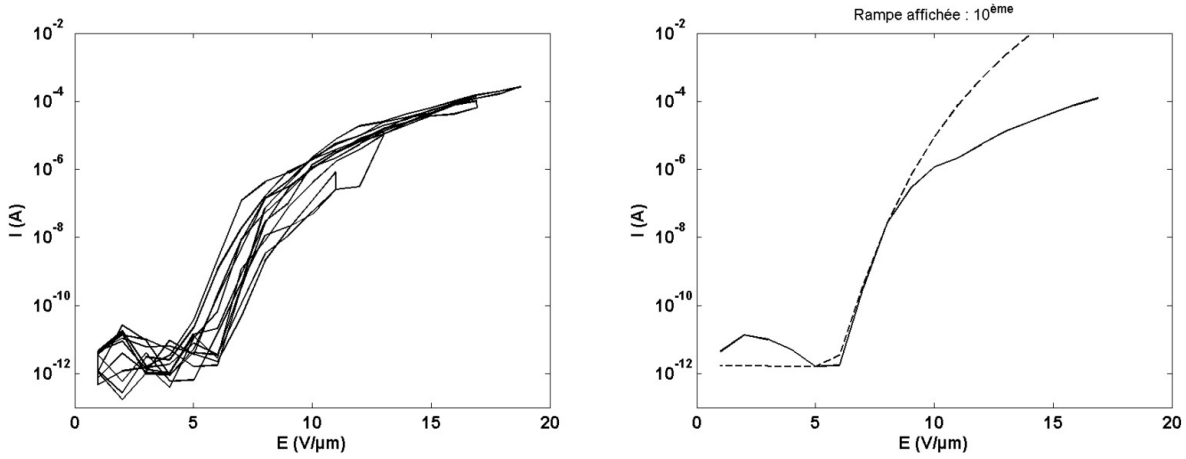
- **Amélioration de la protection des créneaux à la gravure** : La gravure qui se produit durant le procédé de croissance déforme encore trop les créneaux du réseau concentrateur en silicium. Une solution a été proposée pour réduire l'impact de la gravure durant cette étape en suivant le procédé de la figure 4.29.
- **Amélioration des propriétés mécaniques des nanotubes** : L'étape de métallisation post-croissance de la cathode reste critique. En effet, les nanotubes fins présentent une plus grande fragilité que les nanotubes traditionnels et présentent un risque important de chute au cours de l'étape de gravure humide de l'or. Ce problème doit être résolu en améliorant conjointement la maitrise du procédé de gravure de l'or, pour réduire les contraintes imposées aux nanotubes, et la maîtrise du procédé de croissance des nanotubes, pour améliorer la résistance structurelle de ces derniers.

4.3 Le recuit laser des cathodes à nanotubes

L'étape de recuit est primordiale pour accroître la densité de courant émise par une cathode à nanotubes. Dans sa pratique usuelle, elle nécessite de porter le substrat de la cathode à des températures supérieures à 700°C pendant plusieurs minutes. Mais cet accroissement thermique est très défavorable aux substrats sensibles à la diffusion comme peut l'être celui de la cathode THz. Ce recuit est néanmoins souhaitable pour des nanotubes ayant subi plusieurs traitements défavorables à l'émission de champ : oxydation par le plasma de gravure, résidus de résine, immersion dans la solution de $KI:I_2:H_2O$. Dans cette partie, nous allons donc présenter une méthode suceptible de résoudre cette problématique en utilisant un recuit par laser impulsionnel.

4.3.1 Limitations du courant émis

Le courant émis par une cathode à nanotube est soumis à plusieurs limitations auxquelles l'opération de recuit peut apporter une amélioration. Nous allons donner deux illustrations des limites qui surviennent lors de l'émission électronique après croissance. Pour cela, nous allons successivement commenter les graphes de la figure 4.37.



(a) (b)

FIGURE 4.37 – Courant émis par une cathode à nanotubes en fonction du champ électrique mascroscopique appliqué (a) sur l'ensemble des rampes de tension appliquées, (b) lors de la 10ème rampe de tension.

La variabilité du courant : Le graphe 4.37a présente une évolution typique de la réponse courant-champ électrique d'une cathode à nanotubes. Pour cela, on polarise la cathode avec une série de "rampes" de tension, chaque rampe correspondant à un accroissement puis une réduction progressive de la tension entre deux limites données. Durant cette opération, on effectue usuellement une série d'une dizaine de rampes comprises entre 0V et une tension limite supérieure dont la valeur est incrémentée entre chaque rampe de la série.

Au cours de cette opération, on observe sur le graphe l'apparition d'un courant dans le système de mesure pour des champs électriques macroscopique voisins de 5V/µm, dès lors que

celui-ci excède le seuil de sensibilité de l'appareil de mesure [1]. On constate alors que émission de courant est très fluctuante de sorte qu'il soit impossible de superposer les caractéristiques de deux rampes successives. Cette instabilité est un phénomène bien connu en émission de champ dont l'origine a été mentionnée dans le chapitre 3 (voir 3.2.3.1). La surface au sommet du nanotube est en effet composée d'un certain nombre d'adsorbats dont la présence perturbe localement le champ électrique appliqué au sommet du nanotube. Etant faiblement fixés au sommet du nanotube, ils sont susceptibles de se déplacer ou d'être désorbés pendant l'émission sous l'effet du champ électrique et de l'élévation de la température du sommet. Leur présence implique donc une variabilité accrue du courant qui tend à se stabiliser à mesure que le nombre de rampes et que le courant d'émission augmentent.

La saturation du courant : Le graphe 4.37b présente l'allure de la courbe courant-champ électrique au cours de la 10ème rampe de tension appliquée sur la cathode présentée en 4.37a. La courbe pointillée représente le fit de cette courbe obtenu à l'aide de l'équation de Fowler-Nordheim. Celui-ci décrit l'évolution du courant telle qu'elle devrait se poursuivre dans le cas idéal. Mais en pratique, on observe toujours une saturation du courant telle qu'elle apparaît à 8V/µm sur la courbe continue du graphe [2]. Ce phénomène, étudié par Minoux et al. [3, 5], est associé à la résistance globale du nanotube (pied, corps, sommet). Celle-ci engendre une série d'accumulation de charges qui provoquent la discontinuité locale du potentiel de la cathode au voisinage du nanotube. Cela engendre un affaiblissement du champ électrique appliqué à l'apex du nanotube dont l'importance augmente proportionnellement avec le courant circulant dans le nanotube (loi d'Ohm). Ce mécanisme conduit ainsi à une saturation progressive du courant d'émission. Ce fonctionnement en régime résistif est également associé à une élévation de température de l'émetteur de champ par effet Joule qui limite thermiquement les performances de la cathode au risque de provoquer la destruction des nanotubes.

4.3.1.1 Les types de recuit

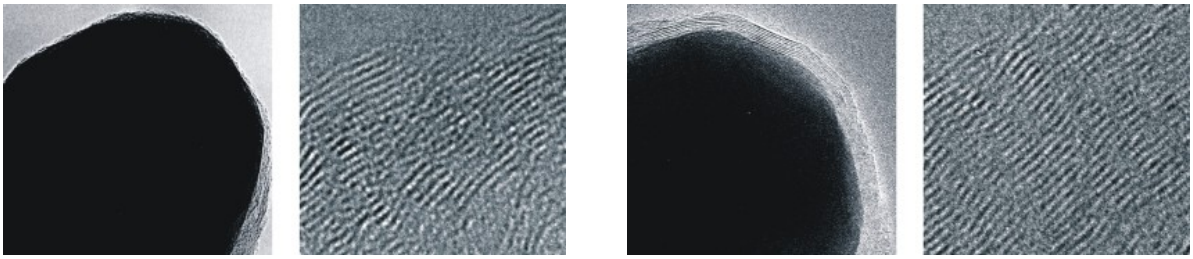
Lors de précédentes études, le recuit thermique a démontré sa capacité à résoudre et/ou minimiser les problèmes que nous venons de présenter. Parmi les méthodes utilisées pour parvenir à la condition de recuit, nous allons présenter deux voies principales avec le recuit par four et le recuit par laser impulsionnel. Dans le premier cas, nous détaillerons le principe général du recuit thermique en nous appuyant sur l'expérience de notre laboratoire. Dans le deuxième cas, nous détaillerons les différentes approches du recuit laser sur la base d'une brève étude bibliographique.

Le recuit four : Lors de précédent travaux, Minoux et al. [5] étudièrent l'influence du recuit thermique sur la structure cristalline des nanotubes de carbone PECVD. Des cathodes sorties de croissance furent soumises, pendant quelques minutes, à des températures de l'ordre de 800°C sous-vide puis à trois types de mesures :

- **Caractéristiques courant-tension** : ces mesures montrèrent un décalage du seuil de saturation des cathodes vers de plus fortes tensions. En suivant ainsi plus longtemps la caractéristique de Fowler-Nordheim, ces cathodes passèrent d'une densité de courant de 0.1A/cm^2 à 1A/cm^2.

1. Le champ électrique auquel apparait ce courant constitue le "seuil d'émission" de la cathode.
2. Le champ électrique auquel apparait ce phénomène constitue le "seuil de saturation" de la cathode.

– **Observations au microscope électronique à transmission** : celles-ci permirent de mieux comprendre le phénomène impliqué dans cette amélioration électrique. Les images de la figure 4.38, présentent l'évolution avant/après recuit de nanotubes représentatifs des cathodes étudiées. Avant le recuit, on constate la présence d'un certain désordre dans les feuillets du nanotube ainsi que l'absence de feuillets à son sommet par suite du bombardement ionique durant la croissance. Après le recuit, l'apport d'énergie a permis de favoriser un meilleur alignement des feuillets graphitiques. Le carbone résiduel contenu dans le nickel en fin de croissance a également été expulsé en périphérie de la particule, notamment au sommet du nanotube où de nouveaux plans graphitiques sont apparus. Ceux-ci assurent ainsi en terme de conduction électrique, la continuité graphitique du nanotube.



(a) (b)

FIGURE 4.38 – Images TEM permettant la comparaison de la cristallinité des nanotubes (a) avant l'opération de recuit, (b) après l'opération de recuit.

– **Observations en microscopie Raman** : selon le type d'arrangements cristallographiques présents dans une structure carbonée, celle-ci possède des réponses dans différentes parties du spectre Raman. Pour les nanotubes multiparois, on isole usuellement deux pics résonants correspondant respectivement aux modes de vibrations tangentiels du nanotube (pic G) et aux modes de couplage phonon-électron du graphite (pic D). Le premier est un indice de l'existence des nanotubes tandis que le second indique la qualité cristalline de ces derniers. Un substrat composé de nanotubes de bonne qualité maximise ainsi le rapport des intensités des deux pics I_G/I_D et minimise leur largeurs à mi-hauteur. En accord avec les observations en microscopie électronique, les spectres Raman des cathodes avant et après recuit montrèrent l'augmentation du rapport I_G/I_D.

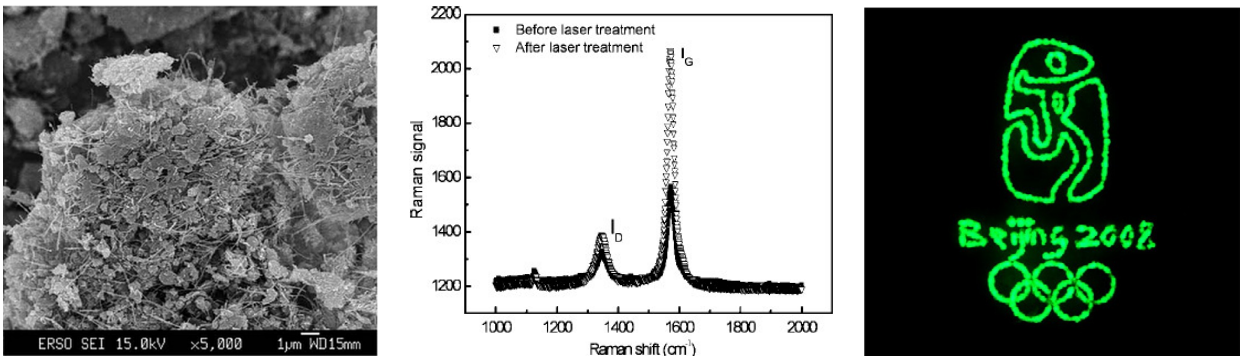
Par conséquent, les informations recueillies durant cette étude montrent par un ensemble concordant d'observations que l'opération de recuit conduit à une amélioration des propriétés électroniques des nanotubes. On retiendra plus particulièrement les points suivants pour la suite de notre discussion :

– En favorisant la désorption de l'apex du nanotube et en précipitant de nouveaux plans graphitiques au sommet, le recuit permet de réduire la variabilité du courant émis.
– En améliorant la résistivité du nanotube, le recuit permet de réduire le phénomène d'accumulation de charge dans le nanotube. Le phénomène de saturation du courant apparait ainsi à de plus forts courants.

Ce recuit four a donc prouvé son intérêt pour augmenter les performances de nos cathodes. Néanmoins, sa portée se limite aux substrats peu sensibles à la diffusion. Pour surmonter

ce problème, nous avons étudié la possibilité de réaliser ces recuits par laser impulsionnel. En effet, l'irradiation laser possède l'avantage de pouvoir mieux contrôler la localisation du dépôt de chaleur en limitant celui-ci à la surface de la cathode.

Le recuit laser : Depuis une dizaine d'années, différentes études ont été consacrées au recuit par laser impulsionnel des nanotubes [6–12]. En utilisant différentes longueurs d'onde (UV, visible, infrarouge), l'objectif de ces approches porte sur la réduction de la tension du seuil d'émission et l'augmentation de l'homogénéité spatiale de l'émission des cathodes à nanotube pour les écrans plats. Par conséquent, celles-ci ont toutes envisagé des substrats composés de poudres de nanotubes multiparois déposés par des techniques bas-coût de nano-impression. L'image de la figure 4.39a donne un aperçu de ce type de dépôt à la surface d'une cathode [9].



(a) (b) (c)

FIGURE 4.39 – (a) Poudre de nanotubes multiparois utilisée pour les écrans plats à émission de champ. (b) Amélioration de la cristallinité obtenue après l'insolation d'une telle poudre avec un laser 10.6μm. (c) Image sur écran phosphorescent d'une cathode à nanotube en régime d'émission de champ après une insolation sélective effectuée avec un laser 10.6μm. *(illustrations [9, 11])*.

Lors de ces travaux plusieurs effets ont été évoqués pour discuter des améliorations constatées en terme de densité de courant et homogénéité spatiale. Le tableau 4.1 récapitule les différentes conditions et hypothèses avancées. Dans cette liste, on peut remarquer que les deux domaines de l'ultraviolet et de l'infrarouge se distinguent par les effets produits.

Dans la gamme infrarouge, les effets produits sont purement thermiques. Dans ce cas, on assiste à un comportement similaire au recuit four avec une amélioration de la cristallinité comme le montre l'évolution du signal Raman observé sur la figure 4.39b. Les études dans cette gamme de longueur d'onde ont récemment mené à l'écriture laser sur écran grâce à un asservissement mécanique du faisceau [11]. Cette irradiation contrôlée permet ainsi de sélectionner précisément les zones dont on souhaite décaler le seuil d'émission. La figure 4.39c présente un résultat original de cette technique obtenue sur un écran phosphore après polarisation de la cathode irradiée.

Equipe	λ	Atmosphère	Effet
Sawada et al. [7]	349nm	vide	photogénération de défauts
Zhao et al. [6]	266nm et 349nm	vide, air	photodécomposition
Rochanachirapar et al. [8]	248nm	N_2,O_2, air	non précisé
Chen et al. [9]	(10.6µm ?)	vide	recuit
Hwang et al. [10]	1064nm	air	recuit, oxydation thermique
Chen et al. [11]	10.6µm	vide	recuit, décomposition thermique
Kim et al. [12]	248nm	air	photogénération de défauts

TABLE 4.1 – Présentation des études sur le recuit laser des cathodes à nanotubes

Dans le domaine UV, l'énergie des photons est importante et peut provoquer la photodécomposition les espèces chimiques qui composent le substrat. L'action d'une irradiation laser UV est donc plus complexe puisque l'énergie incidente produira à la fois un recuit thermique et une photodécomposition. La dissociation moléculaire intéresse les applications écrans plats puisqu'elle peut permettre de décomposer sélectivement les molécules organiques qui composent les poudres de nanotube. Ce point est mis en évidence sur le tableau 4.2. On note alors que l'utilisation de longueurs d'onde inférieures à 343.5nm pourra causer la dissociation des liaisons C−C et dégrader également la cristallinité des nanotubes et ceci n'est pas souhaitable dans notre cas. Certaines études ont néanmoins avancé l'intérêt de produire des défauts dans le carbone pour favoriser l'augmentation du nombre de sites émetteurs et l'homogénéïté de l'émission de courant [7, 12] .

Liaison	Energie (eV)	λ (nm)	Laser	Energie (eV)	λ (nm)
O−O	1.5	826.6	Nd-Yag (1ère Harmonique)	1.17	1064
O−H	3.79	327.2	Nd-Yag (2ème Harmonique)	2.33	532
H−H	4.52	274.3	Nd-Yag (3ème Harmonique)	3.5	354.6
C−H	4.28	289.7	Nd-Yag (4ème Harmonique)	4.77	266
C−C	3.61	343.5	Laser KrF	5	248

TABLE 4.2 – Présentation des énergies de différentes liaisons atomiques et de différentes raies d'émission laser.

L'irradiation laser offre donc des perspectives intéressantes pour l'amélioration des performances des cathodes. Elle se distingue néanmoins du recuit four par les effets qu'elle produit (photodécomposition, décomposition thermique, génération de défauts). Elle est également très intéressante dans notre cas puisqu'elle permet de localiser l'élévation de température à la surface de l'échantillon. Elle offre ainsi un moyen de limiter les phénomènes diffusion se produisant aux interfaces des couches minces impliqués dans les cathodes à nanotubes comme les photocathodes à jonctions PIN ou les cathodes THz.

4.3.2 Étude du recuit laser des cathodes orientées

Nous proposons d'analyser brièvement dans cette partie l'impact du recuit laser sur nos cathodes. Cette technique semble mener à une approche différente du recuit qu'il serait intéressant d'analyser dans le contexte des cathodes à nanotube orientés verticalement. A notre connaissance, une telle étude n'a jamais été envisagée sur un réseau de nanotubes orientés pour l'application des tubes électroniques.

4.3.2.1 Présentation de l'expérience

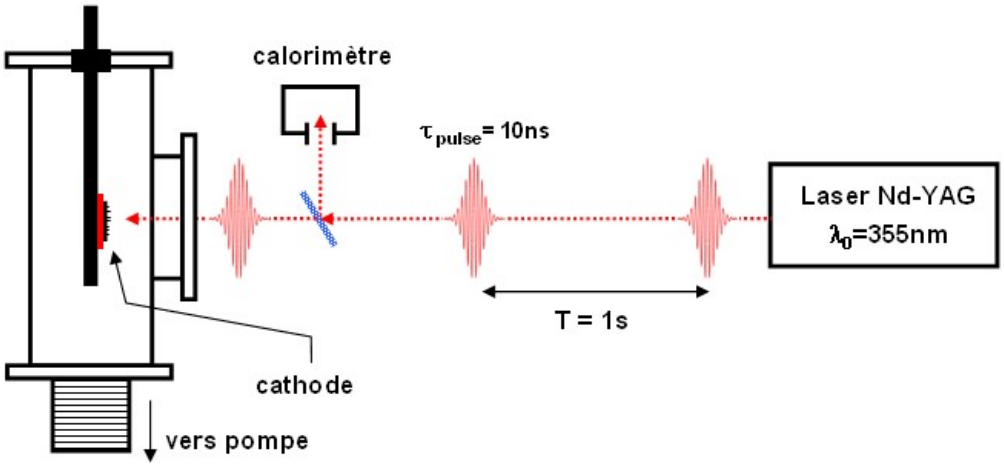


FIGURE 4.40 – Vue schématique présentant l'expérience de recuit par laser impulsionnel

L'expérience que nous avons mise en place pour observer le recuit laser de nanotubes est présentée sur la figure 4.40 et imagée sur la figure 4.41. Elle se compose d'une enceinte sous-vide cylindrique munie en son centre d'un bras axial dont l'extrémité permet la fixation de la cathode dans l'alignement du faisceau laser. Dans cette expérience, l'effet principalement recherché se concentre sur l'apex du nanotube. Aussi, pour chaque irradiation de nos échantillons, nous avons considéré uniquement la configuration d'incidence normale.

Dans ce montage, des réseaux de nanotubes individuels ont été positionnées derrière un hublot en quartz transparent à 95% aux UV dans la gamme 190nm-450nm. Le faisceau laser est issu du 3ème harmonique d'un laser Nd-Yag délivrant des pulses gaussiens de largueur à mi-hauteur 10ns d'une énergie pouvant atteindre 1J/cm^2 avec une fréquence de répétition jusqu'à 10Hz. Une lame de verre est disposée sur le chemin optique du laser pour diriger 8% de l'énergie du faisceau vers un calorimètre permettant le contrôle de la quantité d'énergie qui est envoyée sur l'échantillon.

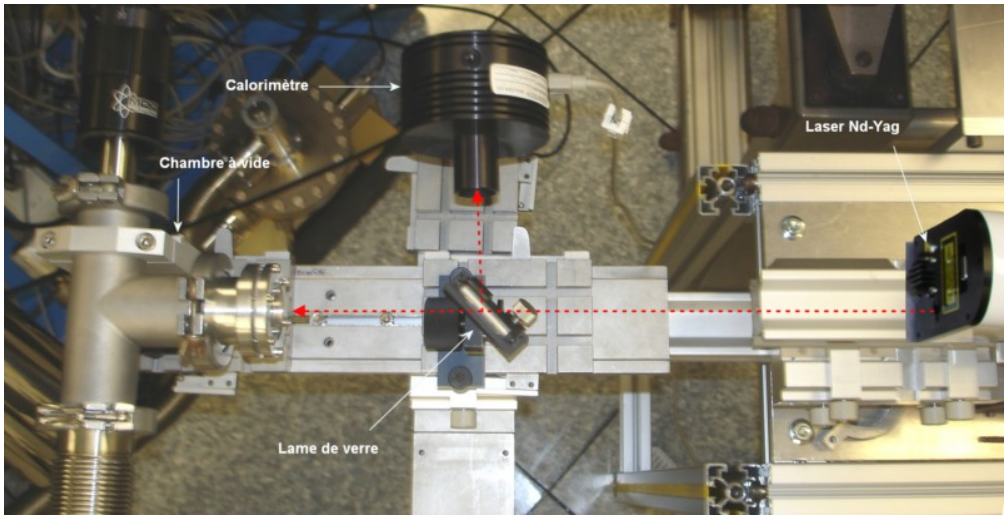
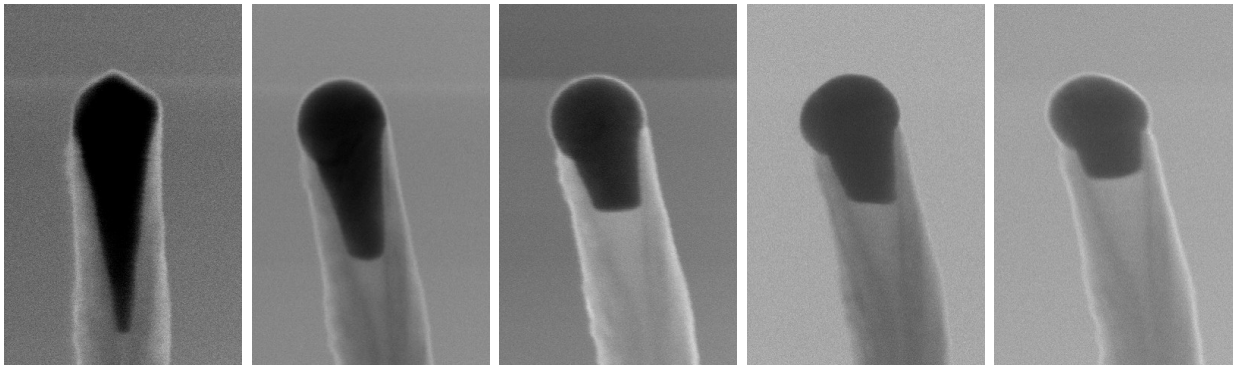


FIGURE 4.41 – Photographie de l'expérience de recuit par laser impulsionnel

4.3.2.2 Impact sur l'apex du nanotube

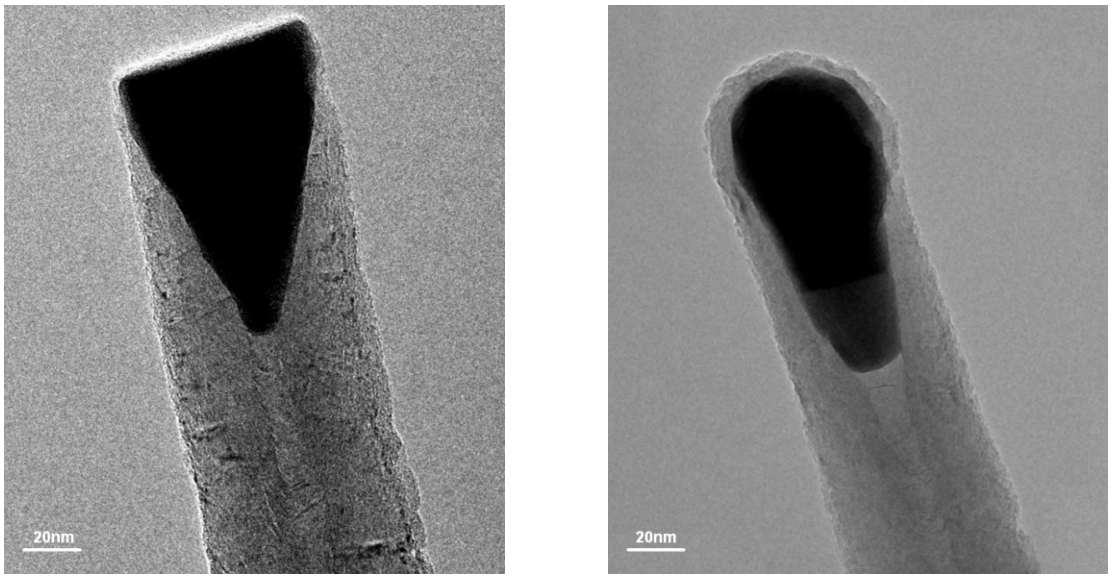
Pour vérifier la tolérance des nanotubes au rayonnement laser, nous avons considéré l'irradiation d'une première cathode par des pulses de puissances croissantes. Sur celle-ci, nous avons identifié le sommet d'un nanotube particulier dont nous avons suivi l'évolution par microscopie électronique à balayage entre chaque pulse délivré. Nous avons d'abord imagé celui-ci dans son état initial tel que présenté sur la figure 4.42a. On peut alors constater que la particule catalytique présente une géométrie anguleuse. Ceci est une caractéristique générale des apex de nanotubes issus de la chimie oxydante à base d'isopropanol et de vapeur d'eau utilisée durant la croissance.



(a) 0mJ/cm^2 (b) 30mJ/cm^2 (c) 55mJ/cm^2 (d) 80mJ/cm^2 (e) 140mJ/cm^2

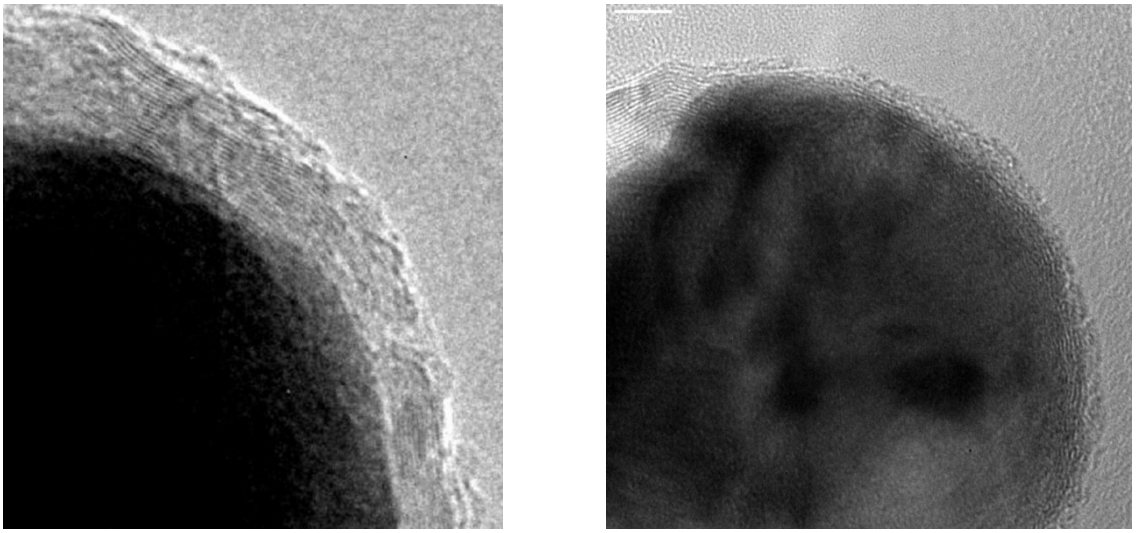
FIGURE 4.42 – Sommet d'un nanotube soumis à des pulses laser de densités d'énergie croissantes.

Nous avons ensuite procédé à une incrémentation de la densité d'énergie incidente sur la cathode. Pour les puissances considérées sur la figure 4.42, on remarque que l'irradiation laser provoque une reconfiguration progressive de la géométrie de la particule. Dans un premier temps, celle-ci passe de la géométrie anguleuse **(a)** aux géométries présentées en **(b)** ou **(c)** dont l'extrémité supérieure est devenue hémisphérique. On note également la rétractation de l'extrémité inférieure de la particule au centre du nanotube. Ces éléments indiquent qu'en absorbant une partie de l'énergie du rayonnement incident, la particule subit un accroissement thermique jusqu'au voisinage de sa température de fusion. Dès lors que celle-ci est atteinte, on assiste à une relaxation des tensions de surface au niveau des points anguleux et une évolution de la particule vers une géométrie minimisant son énergie de surface. Cet effet provoque donc un arrondissement progressif de la particule à mesure que la puissance incidente augmente. Pour chaque densité d'énergie considérée, un équilibre thermique s'établit entre la particule et le nanotube conduisant à un équilibre géométrique de la particule. Nous avons ainsi pu vérifier l'équivalence de forme entre des particules exposées 1 fois et 5 fois au pulse laser. Dans un deuxième temps, dès lors que l'énergie dépasse le seuil de 100mJ/cm^2, on observe sur les images **(d)** et **(e)** que la contrainte excercée par la gaine graphitique amène la particule à sortir du nanotube pour libérer le volume sphérique qu'elle cherche à occuper. Les dimensions initiales de la particule mènent effectivement à une sphère d'un diamètre plus important que celui du nanotube qui contraint ainsi la particule à s'extraire du sommet.



(a) (b)

FIGURE 4.43 – Images TEM de deux sommets de nanotubes (a) avant et (b) après recuit laser 50mJ/cm^2.



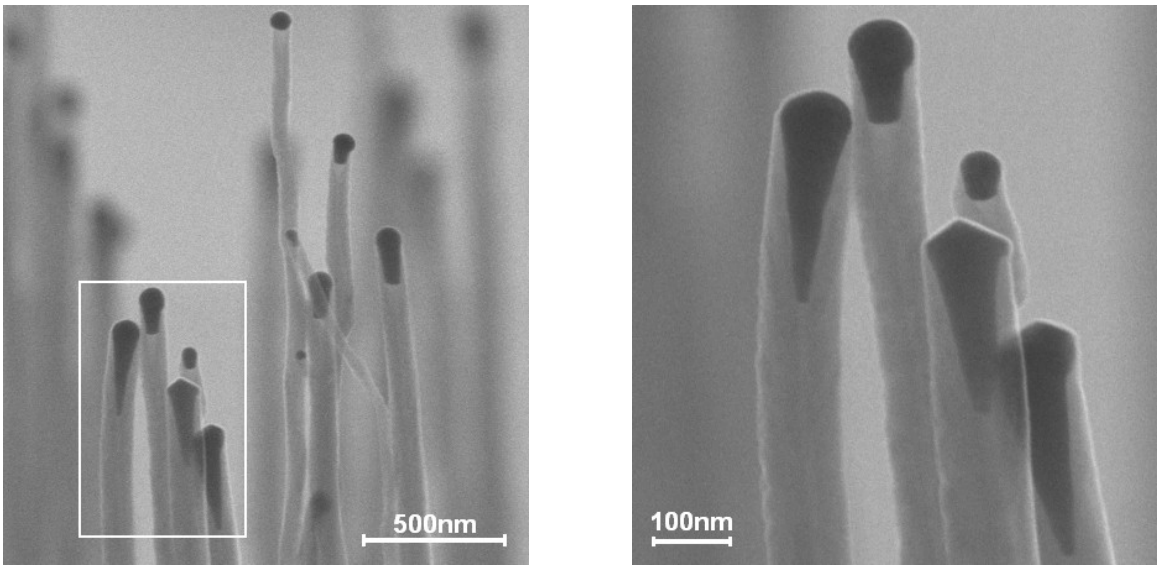
(a) (b)

FIGURE 4.44 – Images TEM de sommets de nanotubes après recuit laser présentant une encapsulation graphitique de l'apex. (a) Zoom au sommet du nanotube de la figure 4.43b. (b) Autre nanotube.

Une étude en microscopie électronique à transmission a ensuite été réalisée pour analyser ce phénomène en terme de cristallinité. Cette technique d'observation étant destructrice, une première cathode a été observée avant recuit et une seconde après un recuit à 50mJ/cm^2. Nous avons sélectionné un pulse d'une densité d'énergie raisonnable de sorte que les particules catalytique ne soient pas expulsées du sommet. Les images de deux nanotubes de chaque cathode sont présentées sur la figure 4.43. Sur l'image (a), on constate que le nanotube présente la nature anguleuse précédemment évoquée avec la gravure des plans graphitiques au sommet qui résulte de la gravure ionique. Sur l'image (b), on peut voir que le catalyseur a subi l'opération de recuit par ses formes arrondies. On remarque aussi l'apparition d'une gaine graphitique autour de la particule. La figure 4.44a présente un zoom sur le sommet de ce nanotube sur lequel la présence des plans graphitiques est confirmée. La figure 4.44b montre que sur d'autres nanotubes de la même cathode, les feuillets peuvent être générés en dessous d'une couche de carbone amorphe. Dans ces deux cas, la continuité graphitique du nanotube est assurée. Pour d'autres nanotubes, on assiste simplement à une reconfiguration hémisphérique de l'apex comme celui présenté sur la figure 3.7 du chapitre 3.

4.3.2.3 Dispersion du recuit

Lors de notre étude, nous avons soumis au recuit laser des cathodes avec nanotube ayant crûs sur des plots catalytiques de 1µm de diamètre. Comme nous avons pû le voir précédemment, cela implique la présence de plusieurs nanotubes de diamètres différents sur chaque plot. La figure 4.45 montre le résultat obtenu à la suite d'un recuit par un pulse de 30mJ/cm^2. On constate que la fusion des particules de nickel n'est pas homogène et qu'elle semble dépendre du diamètre des nanotubes.



(a) (b)

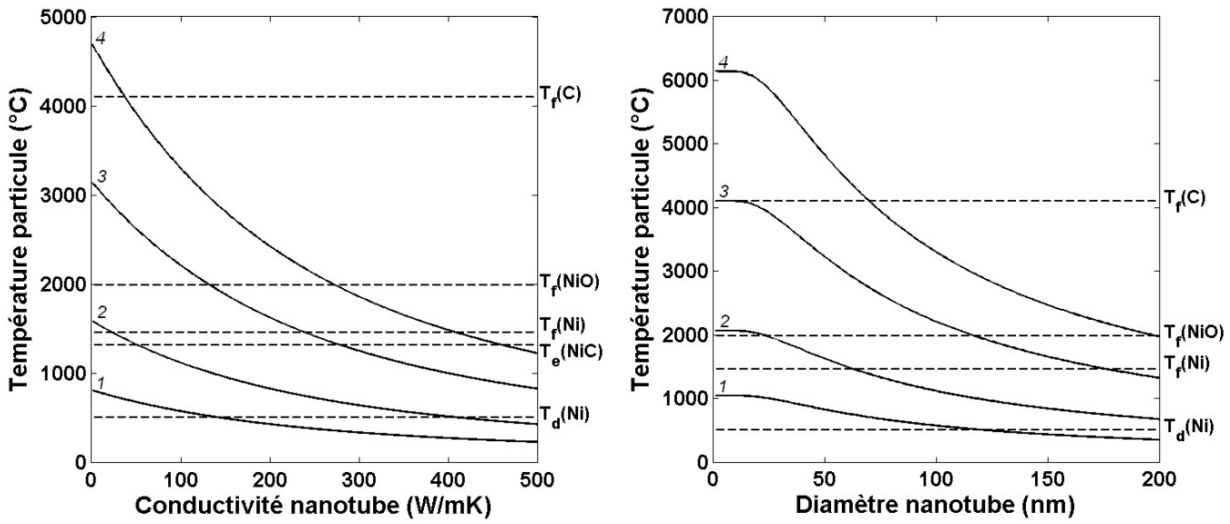
FIGURE 4.45 – (a) Sommets de nanotubes de différents diamètres après recuit laser à 30mJ/cm^2 nanotubes sur un plot de 1µm. (b) Zoom sur la partie encadrée.

Pour comprendre ce phénomène, nous simplifions le mécanisme de dissipation thermique du nanotube en considérant uniquement le transport 1D de la chaleur par conduction. Dans

cette approche, nous négligeons la dissipation radiative dont l'impact, à la température pic de 6000K, n'engendre qu'une différence de température de l'ordre de 5°K. Comme le laser est en incidence normale sur la cathode, nous supposons que l'énergie du pulse est uniquement déposée au sommet de la particule catalytique d'où elle diffuse ensuite vers le pied du nanotube qui est maintenue à la température du substrat. Dans ces conditions, la température que l'apex de la particule atteint après la durée t_p du pulse est décrite par la relation suivante :

$$T_{apex}(t_p) = P_a R_{th}(1 - exp(-t_p/\tau)) + T_{sub} \quad avec \quad \tau = R_{th} C_p \tag{4.2}$$

Avec T_{apex} et T_{sub} respectivement les températures de l'apex du nanotube et celle du substrat, P_a la puissance absorbée par la particule, R_{th} la résistance thermique du nanotube, C_p la capacité calorifique du nickel. La puissance absorbée est évaluée dans le volume défini par la longueur de pénétration de l'onde dans le nickel à 355nm au sommet du catalyseur. La résistance du nanotube est calculée avec la formule $R_{th} = h_{cnt}/\kappa_{cnt} S_{cnt}$ avec respectivement h_{cnt} la hauteur, S_{cnt} la section et κ_{cnt} la conductivité thermique du nanotube. Cette dernière a été déterminée de manière expérimentale pour les nanotubes multiparois et la littérature indique qu'elle est comprise entre 25W/mK [13] et 200W/mK [14].



(a) (b)

FIGURE 4.46 – Analyse de la température d'apex en fonction de (a) la conductivité du nanotube et (b) du diamètre du nanotube avec des densités d'énergie de 25mJ/cm^2 (courbe 4), 50 mJ/cm^2 (courbe 3), 100mJ/cm^2 (courbe 2) et 150mJ/cm^2 (courbe 1)).

Nous pouvons examiner la valeur de la conductivité de nos nanotubes à partir de la formule 4.2. Pour cela, nous utilisons les paramètres du nanotubes irradié sur la figure 4.42, c'est à dire $h_{cnt} = 5\mu m$ et $r_{cnt} = 50nm$. Nous présentons sur la figure 4.46 l'évolution de la température de l'apex du nanotube après un pulse laser en fonction de la valeur de la conductivité du nanotube. On reporte les valeurs des température de fusion du carbone $T_f(C)$, du nickel $T_f(Ni)$, de l'oxyde de nickel $T_f(NiO)$ et la température d'eutectique du carbure de nickel $T_e(NiC)$. On indique également la température d'apparition des mécanismes de diffusion du nickel obtenue par notre expérience de clusterisation du nickel sur

silicium $T_d(Ni)$. On constate qu'en dessous de 40W/mK pour un pulse de 140mJ/cm^2, la particule atteint la température de fusion du carbone et devrait conduire à la destruction du sommet du nanotube. Par ailleurs, on constate qu'au delà de 140W/mK pour un pulse de 30mJ/cm^2, la température de diffusion en surface du nickel n'est pas dépassée. Ces deux phénomènes, fusion du carbone et absence de diffusion, n'ont pas été observés sur la figure 4.42. Par conséquent, cela nous indique un ensemble de valeurs dans lequel la conductivité de notre nanotube doit se trouver. Pour approcher cette valeur dans nos calculs, nous supposerons une valeur de 100W/mK.

En utilisant cette valeur de la conductivité, nous représentons ensuite sur la figure 4.46 l'évolution de la température d'apex en fonction du diamètre du nanotube. Comme cela est observé sur la figure 4.45, nous pouvons constater que la température diminue à mesure que le rayon du nanotube augmente. Ce phénomène est directement associé à la résistance du nanotube dont la valeur diminue proportionnellement à l'inverse du rayon du nanotube. Cette observation est très importante dans la perspective du recuit de nanotubes plus fins dont nous avons précédemment recommandé l'usage pour les cathodes.

4.3.3 Conclusion

Dans cette partie, nous avons rappelé les limites traditionnelles des cathodes à nanotubes avant de discuter des méthodes de recuit qui permettent de s'en affranchir. Le recuit four était une solution jusqu'alors intéressante mais problématique pour les cathodes possédant des substrats sensibles à la diffusion. Les recuits laser possèdent en revanche l'avantage de pouvoir localiser le dépôt de chaleur à distance des interfaces sensibles et ainsi de minimiser le processus de diffusion. L'effet du laser sur les nanotube de carbone reste néanmoins complexe dés lors que la longueur d'onde approche du domaine UV, cumulant le phénomène de recuit à celui de photodissociation.

En ce positionnant à la longueur d'onde de 354nm, nous avons démontré que l'effet d'une irradiation laser pouvait être très intéressant pour les performances de nos cathodes. En effet, par l'intermédiaire d'une calibration de l'énergie incidente et d'une observation en microscopie électronique, nous avons pu mettre en évidence une reconfiguration hémisphérique de la particule catalytique ainsi que la précipitation de nouveaux plans graphitiques à son sommet. De la même manière que le recuit four mais sans en subir les inconvénients, le recuit laser devrait donc permettre d'améliorer la résistance globale des nanotubes. La reconfiguration géométrique de l'apex devrait également permettre l'uniformisation du facteur d'amplification des nanotubes et ainsi favoriser l'augmentation de la densité de nanotubes émetteurs sur notre cathode. Des caractérisations électriques sont actuellement en cours dans notre laboratoire pour analyser l'impact de ce recuit sur les performances des cathodes à nanotubes.

Par ailleurs, nous avons également mentionné un effet de dispersion du recuit en fonction de la taille de la particule. Son impact sera particulièrement important à considérer pour recuire les cathodes avec des nanotubes plus fins. Nous avons également remarqué qu'une modélisation de celui-ci pouvait conduire à une estimation approximative de la conductivité de nos nanotubes.

4.4 Développement du banc de caractérisation

Après avoir successivement envisagé la fabrication des cathodes THz puis un moyen de fiabiliser et accroître leurs performances, nous allons maintenant présenter le montage expérimental qui permettra d'effectuer leur caractérisation. Celui-ci sera envisagé dans cette partie à travers plusieurs étapes. Tout d'abord, nous présenterons les principales quantités à mesurer pour valider le fonctionnement de ces cathodes. Celles-ci orienteront ensuite notre exposé vers une présentation et validation des sous-ensembles fonctionnels du banc de caractérisation.

4.4.1 Les quantités mesurées

Les caractéristiques de la mesure : Il est attendu que le comportement de notre cathode permette de générer un faisceau électronique modulé à une fréquence de 1THz. Ce signal étant plus important à faibles courants (voir fin chapitre 3), il impose à notre système de mesure d'être à la fois très sensible et très rapide, très sensible pour détecter des courants de l'ordre du dizième ou centième de fA et très rapide pour résoudre la composante de ce courant modulée à 1THz.

Par ailleurs, la mesure d'un faisceau électronique modulé dans cette gamme d'amplitudes et de fréquences est difficilement réalisable avec les anodes conventionnelles du type plan métallique ou type photodiode dont les fréquences de coupure n'excèdent pas 100GHz. Aussi, pour parvenir à caractériser nos cathodes malgré ces difficultés, nous avons adopté une stratégie de mesure basée sur une détection indirecte du phénomène de mélange.

La mesure indirecte de la modulation : Celle-ci repose sur l'analyse des processus non-linéaire que nous avons établie dans le chapitre 3. Nous avions alors indiqué que la non-linéarité de la jonction menait simultanément à l'existence de plusieurs composantes de mélange dans le courant tunnel. On distingue principalement le signal différence de fréquence et le signal de rectification, tout deux possédant des intensités égales si les puissances associées aux deux longueurs d'ondes incidentes (raies du laser bifréquence) restent égales. Par conséquent, la mesure du courant rectifié fournit un moyen indirect permettant de valider l'existence du courant de mélange et d'accèder à son amplitude.

Plus précisément, l'étude du courant de rectification présente deux avantages. Tout d'abord, elle ne nécessite pas l'emploi d'un laser bifréquence et simplifie ainsi le dispositif de mesure mis en oeuvre. Ensuite, elle permet de réduire la fréquence de modulation du faisceau en dessous des fréquences de coupures des dispositifs traditionnels d'anode.

Dans cette approche préliminaire à l'intégration dans le tube électronique, nous avons donc envisagé l'utilisation d'un laser monofréquenciel pour caractériser nos cathodes. Dès lors, le moyen de caractérisation le plus simple du phénomène de rectification consiste à comparer l'intensité du courant pendant et après l'illumination avec le laser. Toutefois, une telle expérience ne peut s'affranchir du phénomène de dilatation thermique de l'émetteur. En effet, en absorbant le rayonnement laser incident, le nanotube va subir une dilatation longitudinale qui va conduire à un léger accroissement du champ électrique d'apex. Cette contribution thermique au courant émis ne permet pas d'envisager une mesure avec un laser continu. Aussi, nous avons envisagé le couplage d'un modulateur 1GHz-10GHz à notre source

laser continue pour dépasser les fréquence de dilation thermique typiquement de l'ordre de 1µs.

La composition du banc de caractérisation : Le dispositif expérimental que nous allons développer vise à detecter un courant de rectification modulé entre 1GHz et 10GHz. Dans cette partie, nous allons détailler le développement du banc de mesure associé à cette mesure. Celui-ci se compose principalement :

- **d'un système de mesure électrique** : son rôle est d'assurer la mesure du courant émis par la cathode en régime continu dans la gamme des courants typiquement inférieur au fA.
- **d'un système de mesure optique** : son rôle est de permettre le contrôle du couplage optique du faisceau laser avec les ondes de surface se propageant sur les réseaux concentrateurs de la cathode.
- **d'un système de mesure hyperfréquence** : son rôle est de mesurer la modulation du faisceau électronique induite par la modulation hyperfréquence 1-10GHz du faisceau laser.

Nous allons successivement aborder ces différents points.

4.4.2 Le système électrique

Dans cette expérience, nous utilisons un montage type triode tel que présenté sur la figure 4.47. Ce montage est dit triode puisqu'il se compose de trois électrodes avec une cathode, une grille d'extraction et une anode.

Le pompage : Ce montage est inséré directement dans une enceinte à ultra-vide dans laquelle un système de pompage composé d'une pompe primaire "Adixen Drytel" turbo et une pompe ionique "Vaclon Plus" permet d'atteindre des pressions de l'ordre de 10^{-8}-10^{-9}mbar. Le système de pompage fonctionne simultanément avec un système d'étuvage permettant de chauffer la structure de l'enceinte jusqu'à 100°C. Cet étuvage permet d'atteindre la pression désirée en quelques heures (typiquement 5h).

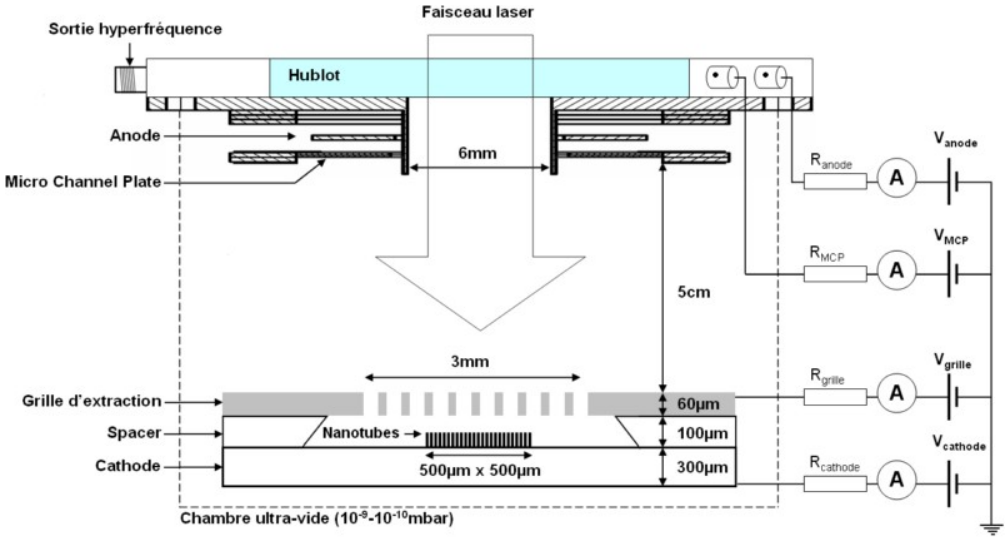
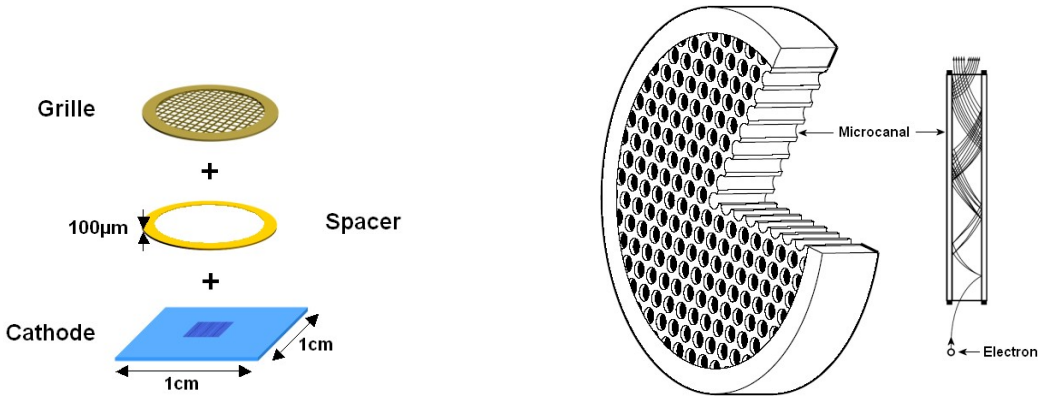


FIGURE 4.47 – Schéma du dispositif de caractérisation électrique des cathodes THz.

L'espace cathode-grille : Cet ensemble est présenté dans partie inférieure de la figure 4.47 et reporté en 3 dimensions sur la figure 4.48a. La grille d'extraction est placée à une distance d'environ 100µm de la cathode par l'intermédiaire d'une cale d'épaisseur en silice suprasil® posée directement sur la cathode. Celle-ci est percée par un trou tronconique de diamètre 5mm afin d'alonger les chemins de fuite.

La cathode est polarisée négativement via une source de tension que l'on protège des claquages électriques par une résistance $R_{cathode} = 100\text{M}\Omega$. On mesure la tension appliquée à l'aide d'un pont diviseur de tension de rapport 1/1000. La grille d'extraction est reliée à la masse et l'on mesure le courant de grille I_{grille} grâce à un ampéremètre protégé par une résistance $R_{grille} = 100\text{M}\Omega$.

L'espace anode : Pour la mesure du courant, deux systèmes d'anode ont été envisagés au cours de cette étude. Le premier est constitué d'une simple électrode métallique plane. Celui-ci nous a permis de réaliser les caractérisations électriques en régime de fort courant continu pour le recuit laser. Le second montage est présenté sur la figure 4.47. Il intercale en amont de cette anode plane une seconde électrode permettant l'amplification du courant. Il s'agit d'un "microchannel plate" dont la structure métallique est composée d'un réseau de microcanaux qui est présenté sur la figure 4.48. Lorsqu'un électron du faisceau électronique entre en collision avec les atomes de la surface l'électrode, son énergie de quelques keV est suffisante pour arracher plusieurs électrons de leurs couches externes. En accélérant ceux-ci dans chaque microcanal, on favorise la formation d'une cascade de collisions menant à des gains de 10^6 à 10^8 sur l'intensité du faisceau électronique incident. Ce système permet la détection de faibles courants et une grande rapidité avec des temps de réponse de l'ordre de 0.5ns. Par ailleurs, on note que toutes les électrodes de ce système sont munies d'un trou central afin de permettre l'illumination de la cathode par un laser en incidence normale [1].



(a) (b)

FIGURE 4.48 – Vues schématiques (a) du montage cathode intégré, (b) de la structuration d'un microchannel plate.

1. nota : les dimensions relatives des éléments de la figure 4.48 ne sont pas à l'échelle.

Quelques paramètres : Le champ appliqué sur la cathode s'exprime par la formule suivante :

$$E_{appliqué} = \frac{V_{cathode} - V_{grille} - R_{grille}I_{grille} - R_{cathode}I_{cathode}}{d_{cathode-grille}}$$

Le courant total de la cathode étant égal à :

$$I_t = I_{grille} + \frac{1}{G}I_{anode}$$

Avec G le gain en intensité fourni par le microchannel plate. On peut également définir la transparence électrique de la grille comme étant :

$$T_{el} = \frac{I_{anode}}{GI_t}$$

Les appareils de mesures : Plusieurs appareils ont été utilisés pour la caractérisation de nos cathodes en régime DC. Parmi ceux-ci, nous distinguons principalement :

- Les sources de tensions :
  - Une source continue BERTAN 205A-10R avec une tension de sortie entre 0 et ±10kV et un courant de sortie entre 0 et 2.5mA.
  - Une source continue BERTAN 205A-10P avec une tension de sortie entre 0 et ±3kV et un courant de sortie entre 0 et 10mA.
  - Une source continue Keithley 248 avec une tension de sortie entre 0 et ±5kV et un courant de sortie entre 0 et 5mA.
- Les mesures de courant :
  - Un Keithley 2636 permettant la mesure de courants jusqu'à 1pA, pour mesurer le courant d'anode.
  - Un Keithley 2612 permettant la mesure de courants jusqu'à 1pA, pour mesurer le courant de grille.

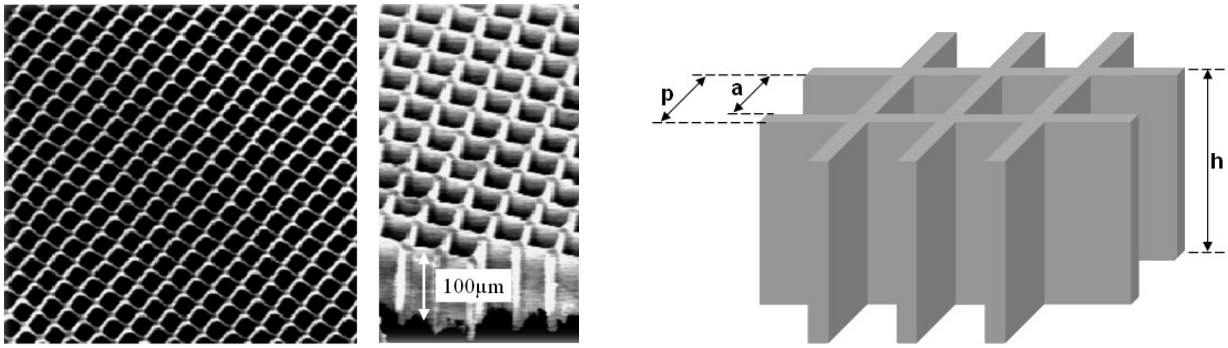
Le pilotage du banc de test DC : Un programme ACS Keithley a été réalisé durant cette étude afin de permettre le pilotage de ces instruments et l'enregistrement des données mesurées.

4.4.3 La grille d'extraction

La grille d'extraction est un élément important du système électrique. L'application d'un champ électrique de l'ordre de 20V/µm sur celle-ci doit permettre d'extraire les électrons de la surface de la cathode de manière homogène. Pour parvenir à cela, une simple plaque métallique pourrait être envisagée. Mais dans la perspective applicative des tubes électroniques, on utilise une électrode (grille) possédant une transparence électronique afin de transmettre les électrons jusqu'au voisinage de la ligne à retard du tube. Par ailleurs, pour assurer le pilotage optique de la cathode, celle-ci doit également posséder une bonne transparence optique afin de ne pas trop réduire la puissance du faisceau sur la cathode.

Afin de traiter ces problématiques cruciales pour l'intégration de notre cathode dans un tube électronique, nous avons travaillé sur l'amélioration de la transparence des grilles. Pour illustrer le point de départ de notre travail, nous donnons un exemple de grille sur la figure 4.49a. Celle-ci est fabriquée à partir d'un substrat de silicium fortement dopé pour assurer une bonne conductivité. Les dimensions d'une telle grille sont définies par les 3 paramètres p, a et h détaillés sur le schéma 4.49b. Pour la grille présentée, nous avons typiquement

p=20µm, a= 15µm et h=100µm. Les transparences électriques et optique respectivement obtenues dans ce cas sont de l'ordre de 30% et 55%.



(a) (b)

FIGURE 4.49 – (a) Image MEB d'une grille en silicium fabriquée selon le modéle existant avant ce travail. (b) Définition des paramètres caractéristiques de la maille d'une grille.

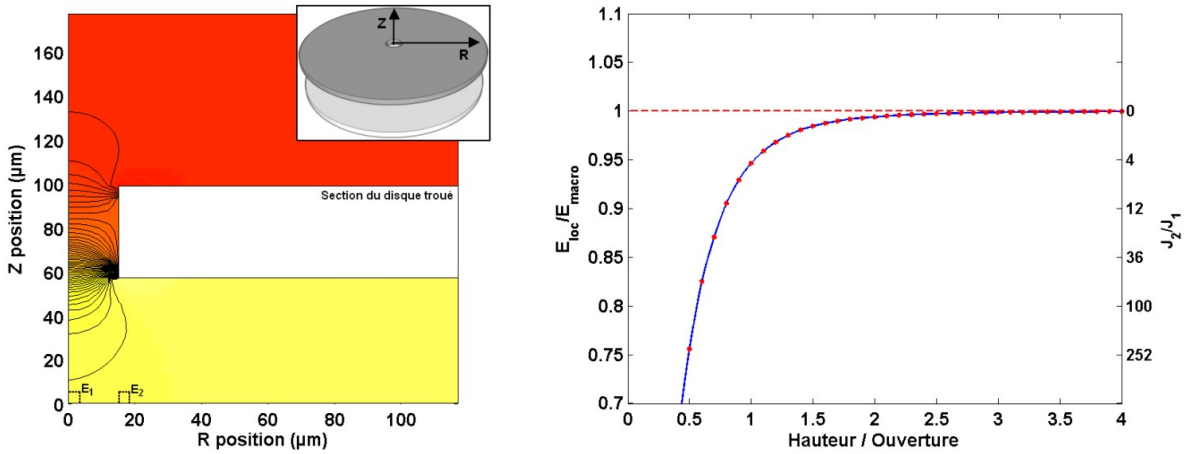
Une diminution de 55% de la puissance optique incidente sur notre cathode constitue une limitation trop importante pour l'observation du phénomène de mélange. Nous allons présenter dans la suite l'ensemble des résultats qui concerne l'amélioration de cette transparence.

4.4.3.1 Homogénéité du champ électrique appliqué

L'augmentation de la transparence optique et électrique des grilles est importante pour préserver l'intensité des faisceaux électronique et optique. Pour y parvenir, il est nécessaire de procéder à une réduction du facteur de remplissage a/p. Cette réduction doit nécessairement faire intervenir une augmentation de la période pour que l'épaisseur des barreaux de la grille reste accessible à fabrication par lithographie optique, compatible avec la fabrication d'objets étendus.

Dans cette perspective, le rapport entre la période de la grille et la distance cathode-grille doit être analysé avec précaution pour ne pas conduire à l'application d'un champ électrique inhomogéne sur la cathode. Dans ce cas, la cathode ne pourrait pas être exploitée à sa performance maximale. Pour fournir une première approche à ce problème, nous avons traité le cas du champ électrique généré entre une électrode plane et une électrode trouée tel que présenté dans l'encadré de la figure 4.50a.

Nous avons ensuite analysé l'évolution de la moyenne spatiale du champ électrique à deux endroits de la surface de la cathode. Ces deux sites sont reportés sur la figure 4.50a et respectivement situés à la verticale du centre et à la verticale du rebord du trou. La surface d'intégration choisie est un carré de côté $h = 5$µm représentative des variations du champ électrique à l'échelle du nanotube.



(a) (b)

FIGURE 4.50 – Simulation du champ électrique au voisinage d'un disque troué avec (a) présentation de l'espace de calcul et (b) évolution du rapport E_1/E_2 en fonction du rapport hauteur du disque sur ouverture du trou central.

Le graphe 4.50b présente le rapport des champs électriques moyens E_1 et E_2 en fonction du rapport hauteur/ouverture. Comme attendu, on peut constater que le champ devient très uniforme dans le cas où la plaque se situe infiniment loin de la cathode. Son rapprochement engendre au contraire une dégradation progressive de cette distribution homogène. Dans le cas où la hauteur et l'ouverture sont égales, l'inhomogéneité atteint 5% de la valeur du champ. L'échelle à la gauche du graphe présente la variation relative de la densité de courant à la surface de la cathode pour un nanotube de rapport d'aspect 200. On constate qu'une variation de 5% correspond à une variation d'un facteur 4 sur la densité de courant et reste acceptable. Mais dès lors que ce point est dépassé, la situation s'aggrave car une variation de 15% du champ provoque une variation d'un facteur 36 de la densité de courant.

Au vu de ces résultats, il semble que la distance minimale à considérer soit fixée par un rapport d'égalité entre la distance cathode-grille et la période de la grille. Néanmoins, notre approche simplificatrice ne rend pas compte de l'effet de pointe engendré par chaque barreau de grille. Celui-ci est un facteur aggravant et devra être pris en compte dans de future étude pour analyser plus finement l'inhomogéneïté induite dans ce cas.

4.4.3.2 Fabrication de grilles

La grille d'extraction est un grille en silicium dopé p^+ d'épaisseur 60µm, micro-usinée par gravure profonde par ICP-RIE (en anglais Inductively Coupled Plasma - Reactive Ion Etching). Le procédé complet de fabrication est décrit sur la figure 4.51. On part du substrat en silicium que l'on oxyde thermiquement sur une épaisseur 1.5µm sur l'une de ces deux faces. Celle-ci constituera une couche d'arrêt pour la gravure. On réalise ensuite une étape de lithographie optique sur la face opposée avec différents motifs de grille :

- des ouvertures de 45µm au pas de 50µm, soit a/p=0.9
- des ouvertures de 95µm au pas de 100µm, soit a/p=0.95

La résine restante après l'étape de développement va servir de masque pour la gravure profonde du silicium sur l'épaisseur de 60µm du substrat. Le motif de la grille est ainsi reproduit dans le substrat et permet de former la grille après la gravure chimique de la couche d'arrêt en silice. Les deux faces de la grille sont ensuite métallisées en molybdène afin d'améliorer leur conductivité électrique. La zone percée représente finalement une zone de 3mm au centre de la grille.

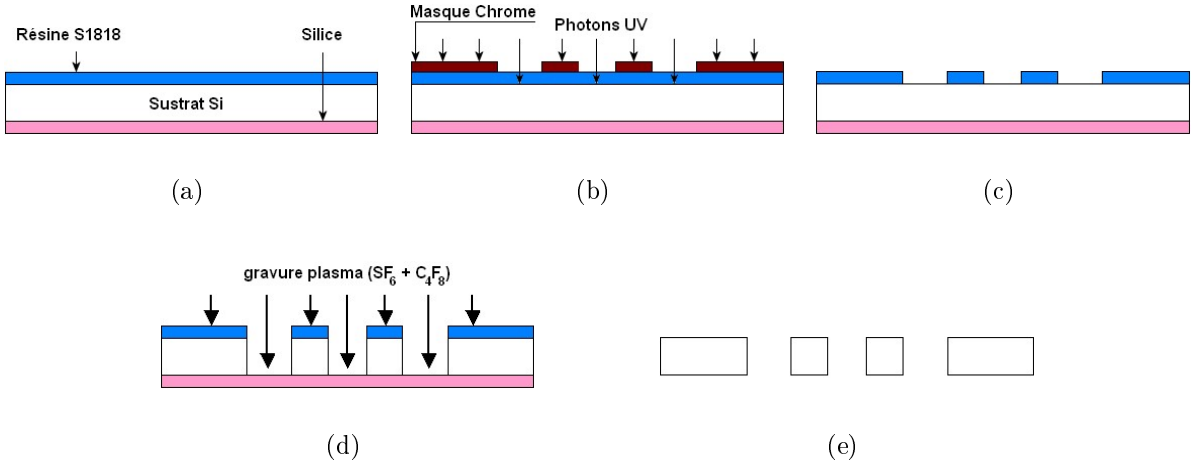


FIGURE 4.51 – Principales étapes du procédé de fabrication des grilles silicium.

Un aperçu en microscopie électronique des différentes grilles obtenues est donné sur la figure 4.52. On distingue les grilles précédemment utilisées en (a) et les deux types nouvellement fabriqués en (b) et (c). L'encadré de la figure 4.52b présente une vue par la tranche après clivage. Il permet ainsi de rendre compte de la qualité de l'anisotropie de la gravure obtenue.

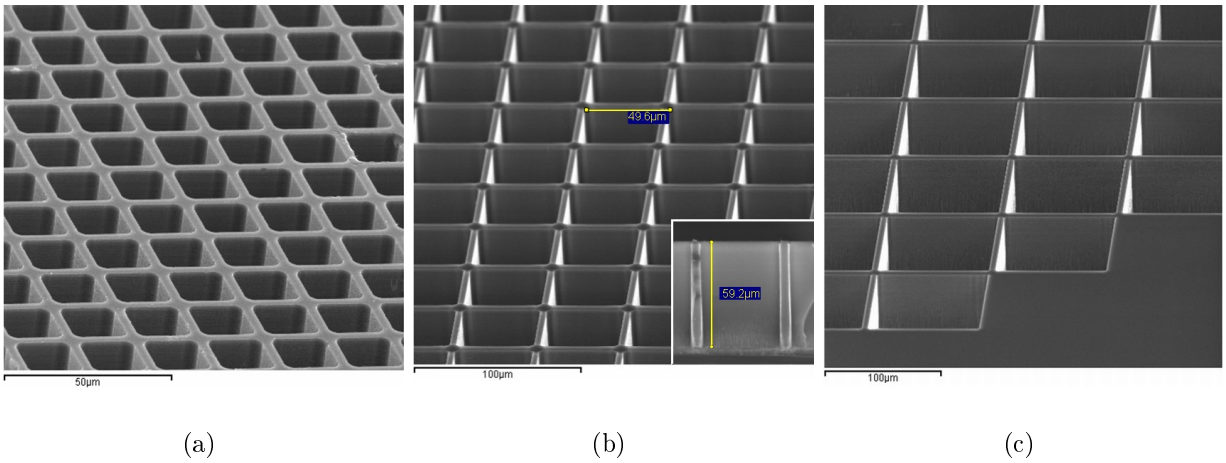


FIGURE 4.52 – Images MEB de grilles réalisées avant ce travail avec paramètres (a) *(a=15*µm, *p=20*µm*)* et durant ce travail avec paramètres (b) *(a=45*µm, *p=50*µm*)* et (c) *(a=95*µm, *p=100*µm*)*

4.4.3.3 Caractérisation de la transparence

La transparence électronique de ces grilles a ensuite été analysée dans le montage électrique décrit plus haut. Pour toutes les grilles utilisées, la cale d'espacement a permis de maintenir une distance hauteur/periode<1. Les résultats de transparences électronique sont indiquées sur la figure 4.53 pour la gamme de tension de fonctionnement des cathodes en tube électronique. L'amélioration de la transparence électronique de grille a été clairement observée et cela de manière approximativement proportionnelle à la surface ouverte de chaque grille.

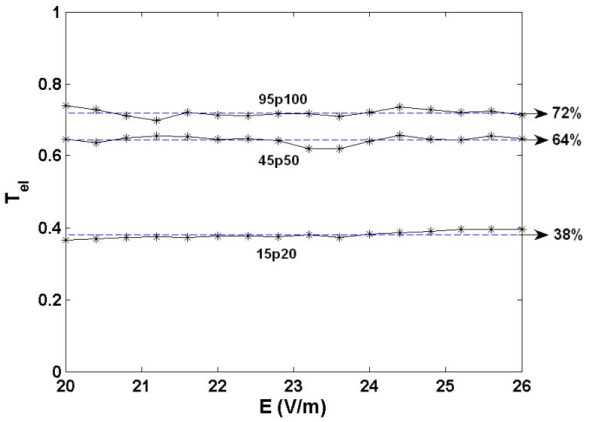


FIGURE 4.53 – Evolution de la transparence électronique des grilles en fonction de la maille réalisée. (*Notation : "15p20"* $\equiv$ *ouverture de* $a = 15\mu m$ *au pas de* $p = 20\mu m$).

En conclusion, notre travail sur les grilles d'extraction aura permis un accroissement de la transparence électronique de 38% à 72% et un accroissement de la transparence optique de 56% à 90%.

4.4.4 Le contrôle optique par réflectométrie

Pour assurer le couplage du rayonnement laser aux nanotubes, il est nécessaire d'éclairer le réseau métallique de notre cathode à la longueur d'onde de résonance de la cavité de surface. Celle-ci a été déterminée par nos simulations mais sera susceptible de varier en fonction des imperfections introduites par nos procédés de fabrication. La maîtrise du couplage implique donc la mise en oeuvre d'une caractérisation optique de la réponse spectrale du réseau métallique.

Durant cette étude, nous avons donc travaillé à la réalisation d'un banc optique permettant d'effectuer cette mesure. Dans cette partie, nous allons détailler la nature de ce montage et présenter les résultats obtenus.

4.4.4.1 Présentation du montage expérimental

Nous retrouvons ici la problématique de la caractérisation spectrale du champ proche des réseaux métalliques. Dans le chapitre 2, nous avions distingué deux catégories de méthodes, celles permettant la mesure du champ lointain et celles permettant la mesure du champ proche. Ne disposant pas des instruments permettant le contrôle du champ proche à la

longueur d'onde de 1.55µm, nous avons conçu un banc de réflectométrie présenté sur la figure 4.54 autorisant la caractérisation spectrale du champ lointain en incidence normale.

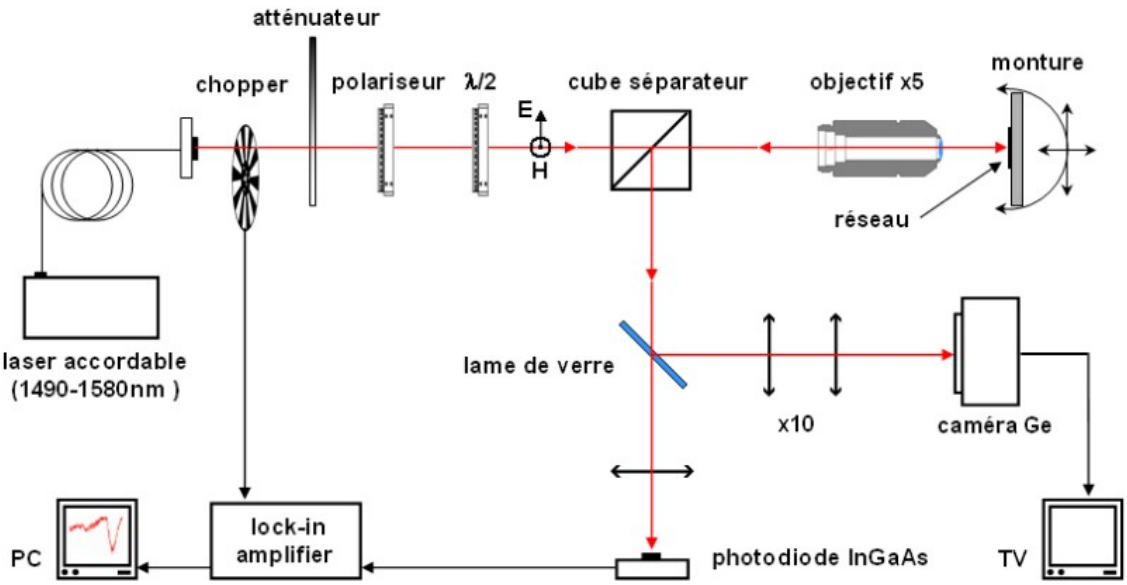


FIGURE 4.54 – Présentation schématique du banc de réflectométrie

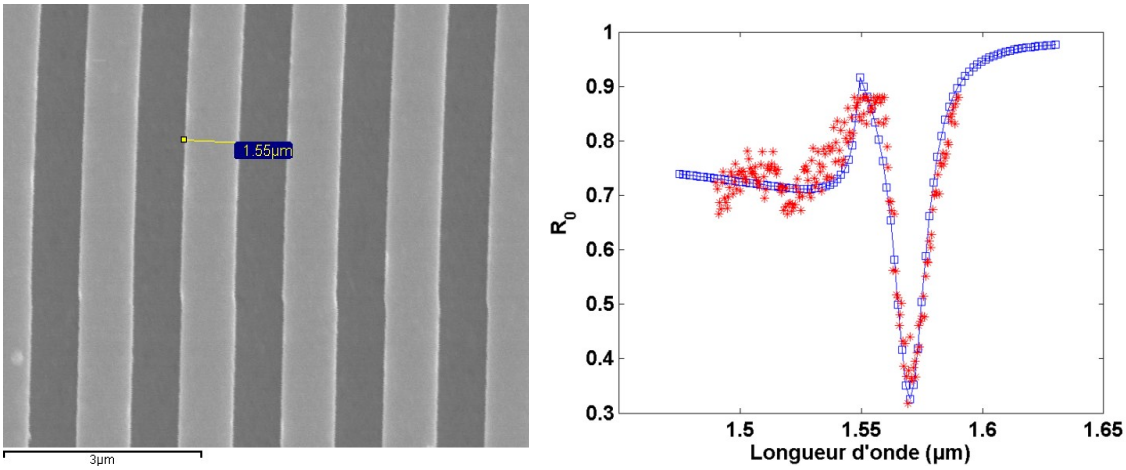
Dans notre montage, un laser TUNICS accordable entre 1490nm et 1580nm a été utilisé pour l'éclairement du réseau. Le contrôle polarimétrique du faisceau est assuré par la combinaison d'un polariseur et d'une lame $\lambda/2$ permettant successivement la sélection de la polarisation incidente puis sa rotation dans la configuration Transverse Magnétique (TM). Un système de détection synchrone (chopper+amplificateur lock-in) a été utilisé pour minimiser les perturbations du signal provenant des vibrations mécaniques induites par la proximité du dispositif de pompage de la chambre à vide. L'utilisation d'un cube séparateur a ensuite permis la formation de deux bras expérimentaux distincts :

- Le premier correspond à la partie dans laquelle s'effectue le sondage optique de l'échantillon. Pour cela, un objectif de microscope permet d'adapter la dimension du faisceau à celle du réseau ou de la cathode à étudier. Une monture de translation permet d'assurer le déplacement du réseau le long de l'axe optique et ainsi le positionnement du point focal du faisceau sur le réseau pour satisfaire à la condition de planarité du front d'onde incident. Par ailleurs, l'échantillon est placé sur une monture à triple rotation permettant un contrôle total du positionnement angulaire.
- Le second correspond à la partie détection dans laquelle une photodiode permet de collecter le signal réfléchi par le réseau et transmis par le cube. Une caméra a été utilisée afin d'imager sur l'échantillon.

4.4.4.2 Validation du montage

Ce montage a été réalisé dans la perspective de caractériser spectralement nos concentrateurs de surface. Néanmoins, il est préalablement nécessaire de valider cette méthode dans une configuration de référence. Pour cela, nous avons fabriqué un réseau de diffraction métallique 100µm×100µm tel que présenté sur la figure 4.55a. La mesure du signal de réflectométrie sur ce réseau est présentée sur le graphe de la figure 4.55b par l'ensemble de points étoilés. On distingue clairement la présence d'une absorption importante du signal incident

à la longueur d'onde de 1.57µm. Celle-ci manifeste la présence de l'anomalie de Wood en polarisation TM pour laquelle le rayonnement incident se couple aux ondes de surface du réseau métallique.



(a) (b)

FIGURE 4.55 – (a) Image MEB de la structure étudiée en réflectométrie. (b) Signal de réflectométrie optique expérimental (distribution d'étoiles) et simulée par méthode modale (ligne continue avec carrés).

Pour interpréter ce signal, nous avons utilisé la méthode numérique basée sur la décomposition modale des champs électromagnétiques précédemment utilisée au chapitre 2. Le meilleur fit obtenu est tracé sur le même graphe 4.55a avec une ligne continu pointillées de carrés. La comparaison des paramètres fit et expérimentaux, donnée dans le tableau 4.3, montre que notre banc expérimental permet de déterminer avec une bonne précision le comportement spectral du phénomène de couplage aux ondes de surface.

	Pamètres réseau	**Paramètres fit**
Période	1.55 µm	1.545 µm
Remplissage	0.53	0.53
hauteur	80 nm	82 nm

TABLE 4.3 – Comparaison des paramètres du réseau et du fit du signal de réflectométrie

4.4.5 Conclusion

A l'heure où se termine la rédaction de ce manuscrit, la fabrication des cathodes THz vient juste de s'achever. Par conséquent, notre travail sur ce banc de caractérisation expérimentale s'est limité à l'établissement d'une stratégie de mesure et aux validations de principe que nous avons successivement présentées dans cette partie.

Ces premiers développements ont permis de conduire à la fabrication de grilles d'extraction possédant de plus grandes transparences électroniques dont l'intérêt dépasse le simple

cadre de cette étude en permettant d'accroître les densité de courant des faisceaux électroniques circulant dans les tubes électroniques.

Elles auront également permis de mettre en oeuvre une méthode de caractérisation spectrale du couplage aux ondes de surface. Cette mesure effectuée en champ lointain s'ajoute à notre étude en champ proche du chapitre 2 pour compléter les possibilités de caractérisation spectrale des résonances électromagnétiques des surfaces métalliques.

4.5 Conclusion et perspectives

Ce chapitre a donné l'occasion de présenter toutes les étapes technologiques qui ont conduit à la réalisation de la première cathode THz. Leur développement aura donc pris les 3 années de ce travail de doctorat en raison des fortes contraintes technologiques que notre approche devait résoudre. On rappelle en effet que la cathode THz doit à la fois conserver l'excellent état de surface d'une couche mince d'or (rugosité, conductivité) tout en permettant la croissance de nanotubes à 550°C par plasma. Cela nous a donné l'occasion de développer un procédé original de gravure sélective de l'or.

L'adaptation des étapes usuelles de préparation des cathodes à nos cathodes nous a conduit à soulever la question du recuit des cathodes THz. Nous avons donc évaluer les potentialités d'une nouvelle méthode de recuit par laser impulsionnel. Celle-ci semble mener à des résultats similaires au recuit four en terme d'amélioration de la cristallinité. Elle ajoute de plus une uniformisation de la géométrie des particules catalytiques qui semble profitable à l'émission de courant. Des séries de tests électriques seront menées prochainement sur ces cathodes à nanotubes individuels et sur des cathodes THz. Celles-ci devraient ainsi permettre de conclure quant à l'intérêt applicatif de cette méthode.

La dernière étape de caractérisation va maintenant commencer avec la perspective de valider pour la première fois le pilotage optique d'une cathode à nanotubes de carbone. Ce pilotage pourra s'appuyer sur les différentes briques expérimentales qui ont été envisagées durant ce travail. Cette validation débutera par une caractérisation optique du composant pour vérifier la réponse spectrale du réseau de la cathode.

Références

[1] D. Drouin, A.R. Couture, D. Joly, X. Tastet, V. Aimez, and R. Gauvin. CASINO V 2. 42-A Fast and Easy-to-use Modeling Tool for Scanning Electron Microscopy and Microanalysis Users. *Scanning*, 29(3) :92–101, 2007.

[2] G. Owen. Methods for proximity effect correction in electron lithography. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 8 :1889, 1990.

[3] E Minoux. *Etude et développement de sources électroniques à émission de champ à base de nanotubes de carbone. Application aux tubes hyperfréquences.* PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2006.

[4] A. Thess, R. Lee, P. Nikolaev, H. Dai, P. Petit, J. Robert, C. Xu, Y.H. Lee, S.G.

Kim, A.G. Rinzler, et al. Crystalline ropes of metallic carbon nanotubes. *Science*, 273(5274) :483, 1996.

[5] E. Minoux, O. Groening, K.B.K. Teo, S.H. Dalal, L. Gangloff, J.P. Schnell, L. Hudanski, I.Y.Y. Bu, P. Vincent, P. Legagneux, et al. Achieving high-current carbon nanotube emitters. *Nano Lett.*, 5(11) :2135–2138, 2005.

[6] WJ Zhao, N. Kawakami, A. Sawada, and M. Takai. Field emission from screen-printed carbon nanotubes irradiated by tunable ultraviolet laser in different atmospheres. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 21 :1734, 2003.

[7] A. Sawada, M. Iriguchi, WJ Zhao, C. Ochiai, and M. Takai. Emission site control in carbon nanotube field emitters by focused ion and laser irradiation. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 21 :362, 2003.

[8] W. Rochanachirapar, K. Murakami, N. Yamasaki, S. Abo, F. Wakaya, M. Takai, A. Hosono, and S. Okuda. Influence of gas atmosphere during laser surface treatment of CNT cathode. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 23 :762, 2005.

[9] KF Chen, KC Chen, YC Jiang, LY Jiang, YY Chang, MC Hsiao, and LH Chan. Field emission image uniformity improvement by laser treating carbon nanotube powders. *Applied Physics Letters*, 88 :193127, 2006.

[10] JD Hwang, KF Chen, LH Chan, and YY Chang. Using infrared laser to enhance field emission of carbon nanotube. *Applied Physics Letters*, 89 :033103, 2006.

[11] Z. Chen, F. Zhu, Y. Wei, K. Jiang, L. Liu, and S. Fan. Scanning focused laser activation of carbon nanotube cathodes for field emission flat panel displays. *Nanotechnology*, 19 :135703, 2008.

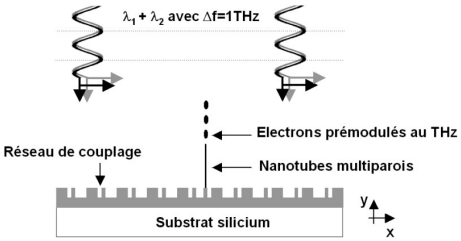
[12] WS Kim, H. Oki, A. Kinoshita, K. Murakami, S. Abo, F. Wakaya, and M. Takai. Relationship between field-emission characteristics and defects measured by Raman scattering in carbon-nanotube cathodes treated by plasma and laser. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 26 :760, 2008.

[13] W. Yi, L. Lu, Z. Dian-Lin, ZW Pan, and SS Xie. Linear specific heat of carbon nanotubes. *Physical Review B*, 59(14) :9015–9018, 1999.

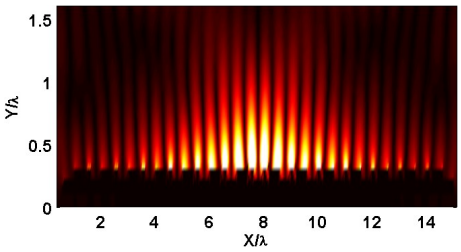
[14] P.G. Collins, M. Hersam, M. Arnold, R. Martel, and P. Avouris. Current saturation and electrical breakdown in multiwalled carbon nanotubes. *Physical review letters*, 86(14) :3128–3131, 2001.

Conclusion

Le cadre général de cette thèse a été consacré à la conception et à l'étude d'une nouvelle source électronique modulable au THz en vue de la réalisation de tubes électroniques dans cette gamme de fréquence. Ce travail s'est décomposé en quatre parties articulées autour de la conception, de l'optimisation et de la fabrication de cette cathode.

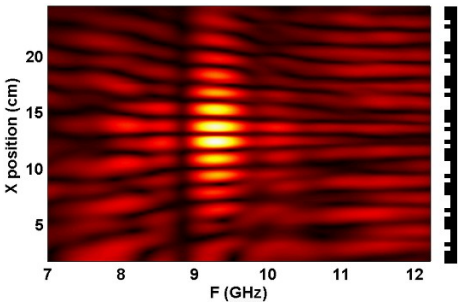


Dans la **première partie**, nous avons exposé la problématique du "fossé THz" caractérisée par le manque de sources compactes et puissantes dans la gamme 100GHz-1THz. Parmi les sources existantes, notre approche repose sur l'utilisation d'un tube électronique (initialement à ondes progressives) pour répondre à ce défi technologique. Nous avons ainsi présenté la structure et fonctionnement typique d'un tube (TOP) sur la base de la théorie de Pierce. Nous avons ensuite distingué les deux types de cathodes qui peuvent être intégrées dans un tel tube. D'un côté, les cathodes thermoïoniques constituent un bon compromis entre durée de vie et densité de courant (régime continu à 1A/cm^2 sur 15ans et 10A/cm^2 sur quelques années). Elles engendrent des vitesses radiales à l'émission inférieures à 1eV, nécessitent d'être chauffées jusqu'à environ 1000°C et sont limitées à des fréquences de modulation inférieures à quelques GHz. De l'autre côté, les cathodes froides émettent des densités de courant plus faibles (régime continu jusqu'à 1A/cm^2), peuvent démarrer instantanément, subissent des dégradations à forts courants et peuvent être modulées jusqu'à quelques dizaines de GHz. Pour obtenir une émission stable à forts courants, nous avons introduit les nanotubes de carbone qui sont des nanostructures stables chimiquement et mécaniquement jusqu'à des températures de 2000K en régime d'émission de champ. De plus, ces structures possèdent d'excellentes propriétés électroniques ainsi qu'un rapport d'aspect géométrique favorable à l'émission électronique. Après avoir illustré l'intérêt de la prémodulation pour les TOP, nous avons présenté les limites actuelles des dispositifs de modulation des cathodes froides. Pour parvenir à une modulation dans la gamme du THz, nous avons alors présenté la technique de modulation de l'émission de champ par une porteuse optique modulée au THz. Nous avons alors précisé les principaux éléments de la cathode THz.

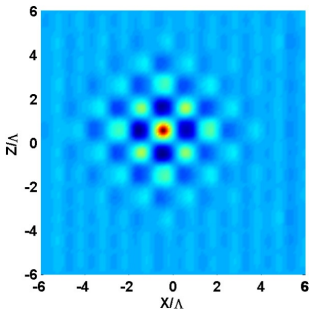


La **deuxième partie** a été consacrée à la conception de la structure métallique de couplage de la cathode THz. Celle-ci permet de transférer l'énergie du faisceau laser incident sur la cathode aux électrons des nanotubes. En utilisant le concept d'onde de surface, nous avons successivement présenté les propriétés du couplage radiatif et de la propagation de ces ondes sur un réseau métallique. Grâce à cette approche, nous avons conçu un réseau couplant le champ incident à un mode

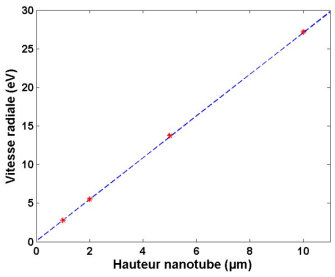
lent de surface. La structure de celui-ci est lamellaire et permet de faciliter la fabrication à l'échelle nanométrique. Pour améliorer le couplage électromagnétique onde/faisceau, nous avons développé un réseau dit "concentrateur de surface" permettant le couplage du champ incident au mode résonant d'une cavité de surface. Dans un premier temps, cette structure a été optimisée en utilisant l'algorithme des Différence Finies résolues dans le Domaine du Temps. Nous avons ainsi conçu et appliqué une méthode d'optimisation qui nous a permis d'obtenir la géométrie optimale du réseau de couplage. Nous avons ensuite développé un algorithme spécifique aux milieux dispersifs pour tenir compte des pertes dans notre structure. Celui-ci nous a permis de calculer une amplification d'un facteur 10 du champ électrique à une hauteur de 1µm égale à celle de nos nanotubes.



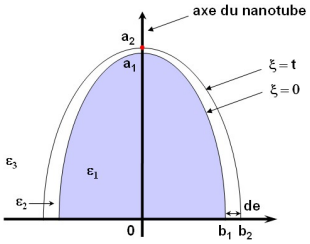
Ensuite, nous avons effectué une mesure du champ proche du réseau en transposant les dimensions de notre étude dans la gamme des hyperfréquences. Ceci nous a conduit à la conception d'un banc expérimental permettant de cartographier les modes de champ proche de surfaces métalliques entre 1 et 20GHz. Le dispositif expérimental a successivement été testé sur deux réseaux. Le premier a permis d'illustrer les effets associés à la dimension finie du réseau dans sa dimension invariante. Nous avons ensuite procédé à la validation du fonctionnement du concentrateur de surface. Les cartographies relevées se sont montrées en accord avec nos simulations (fréquence, structure modale) et avec notre compréhension de la physique de ce réseau (dispersion fréquentielle en fonction de la profondeur créneau).



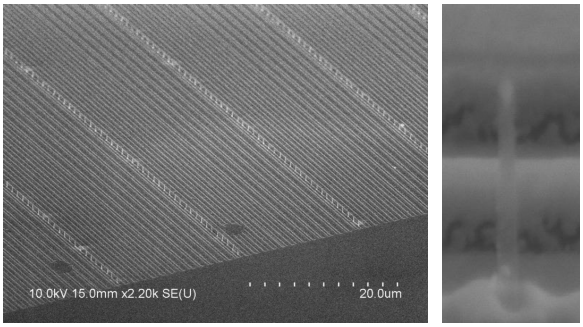
Dans une partie prospective de ce chapitre, nous avons introduit le fonctionnement du concentrateur 2D. Cette analyse nous a permis de proposer une solution au couplage radiatif avec un mode lent bidimensionnel en apportant une modification périodique de la structure d'un réseau de Bragg 2D. En intégrant une cavité de Bragg 2D dans la périodicité de notre nouveau motif, nous sommes parvenus à la conception d'un concentrateur de surface 2D. Le facteur de qualité ainsi que le volume du mode de cette cavité permettent d'envisager des performances accrues relativement à celle obtenue dans notre approche 1D. Cette approche est donc parue prometteuse pour augmenter la profondeur de modulation des cathodes THz.



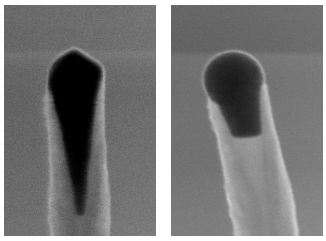
Dans le **troisième chapitre**, nous avons proposé une analyse les propriétés d'émission de champ des nanotubes de carbone dans le régime de modulation de barrière (validité de l'équation de Fowler-Nordheim) et dans le régime statique (analyse numérique de l'équation de poisson). Par le calcul du champ électrique et du courant au sommet d'un nanotube à sommet hémisphérique, nous avons pu montrer que la vitesse radiale moyenne du faisceau électronique émis par la cathode THz sera inférieure à 5eV. Cette étude a ainsi démontré et quantifié l'intérêt de tendre vers des nanotubes courts et fins pour minimiser la divergence des faisceaux émis par les cathodes froides. Les avantages du raccourcissement des émetteurs ont été également mis en évidence avec une analyse thermique montrant que le courant d'une cathode augmente proportionnellement à l'inverse de la hauteur des nanotubes.



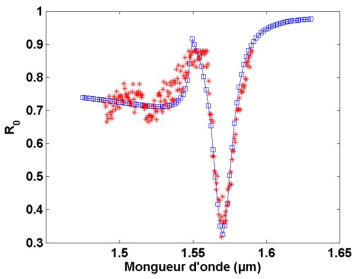
Nous avons ensuite présenté les modalités du couplage entre les ondes de surface et les nanotubes de la cathode. Deux possibilités sont apparues pour que celui-ci se produise. On distingue tout d'abord l'interaction de l'onde avec la particule catalytique en nickel au sommet du nanotube. Une étude analytique de la réponse électromagnétique de celle-ci nous a permis de calculer son facteur d'amplification optique. Les nanotubes de carbone PECVD ont également été envisagés comme des nano-antennes métalliques sur la base d'une étude bibliographique. Nous avons ainsi estimé que le transfert de l'énergie des ondes de surface vers les électrons du nanotube doit se produire. Les calculs effectués jusqu'alors nous ont conduit au design de la cathode THz. Après avoir déterminé la périodicité du réseau de nanotubes, nous avons évalué les performances de cette cathode dans un cas optimisé. Cela nous a conduit à en donner les performances potentielles : une densité de courant de 0.6A/cm^2, un courant de 1.5mA et une profondeur de modulation de 1‰. La valeur de la profondeur de modulation pourrait atteindre 1% moyennant une optimisation importante de la cathode.



Dans la **quatrième partie**, nous avons successivement travaillé sur la fabrication, le recuit et la caractérisation de la cathode THz. Le travail effectué dans l'étape de fabrication a conduit à la réalisation de la première cathode THz. Celle-ci a été obtenue par le développement de nouveaux procédés permettant d'assurer la faible rugosité d'un réseau métallique sur un substrat soumis à une phase de bombardement ionique à 550°C (lors de la croissance). Un procédé de gravure sélective de l'or sur les nanotubes a notamment été mis au point pour permettre le dépôt post-croissance de la couche métallique sur notre cathode.



Nous avons ensuite travaillé sur une méthode de recuit laser pour permettre le dépôt de chaleur à la surface de notre cathode. Celle-ci nous a permis de mettre en évidence des effets observés dans les recuits fours comme la formation de plans graphitiques au sommet de la particule catalytique. Un effet de reconfiguration hémisphérique de l'apex des nanotubes a été également constaté. Son impact sur l'émission de champ devrait être importante et sera évalué dans de prochaines mesures électriques. L'analyse des effets du recuit laser a également permis d'indiquer que la conductivité thermique de nos nanotubes était voisine de 100W/mK.



Le développement d'un banc de caractérisation pour les cathodes THz a été abordé dans la dernière partie. Nous avons alors détaillé une méthode de mesure indirecte de la modulation du faisceau électrique. Celle-ci s'appuie sur la mesure de la modulation hyperfréquence du courant de rectification. Nous avons ensuite présenté le banc de caractérisation électrique réalisé ainsi que les éléments clefs du dispositif expérimental que sont la grille d'extraction et le dispositif de caractérisation spectrale des concentrateurs de surface (voir illustration ci-contre).

Perspectives

Dans les perspectives nombreuses de cette étude, nous pouvons principalement citer les éléments suivants :

- En ce qui concerne la cathode THz, la principale réalisation à venir porte sur la caractérisation de la modulation électronique à 1GHz. Le banc de caractérisation que nous avons développé devrait permettre d'apporter ce résultat dans les prochains mois. A l'issu de cette validation préliminaire, une détection à 1THz sera envisagée.
- Dans le cadre du développement plus général des cathodes à nanotubes, nous avons proposé de tendre vers des nanotubes courts et fins pour augmenter la densité de courant et réduire les vitesses radiales du faisceau électronique. Cette modification avantageuse de la cathode est actuellement étudiée dans notre laboratoire.
- La technologie des cathodes à nanotubes bénéficiera également du travail effectué sur le recuit laser. Une étude des performances de cathodes soumises à ce recuit est en cours. Les premiers résultats sont encourageant avec une augmentation moyenne du courant après recuit d'un facteur 10 obtenue sur cinq cathodes successives.
- Concernant les performances des réseaux concentrateurs, les approches que nous avons envisagées intéressent également les dispositifs de caméra infrarouge à puits quantique (en anglais *Quantum Well Infrared Photodetector* = *QWIP*) dont les pixels intègrent ce type de structure. Les concentrations du champ électrique obtenues permettraient d'améliorer la détectivité de ces appareils et sont actuellement étudiées au sein du laboratoire III-V lab.

Annexe

Fabrication des réseaux : méthode lift-off

Etapes	**Détails**
Préparation substrat	acétone (5'), IPA (5'), Dégazage 200°C (5')
Métallisation Au(40nm)	dépôt par évaporation en incidence normale à 5Å/s
Dépôt résine n°1 : PMGI (180nm)	dépôt (v=250tr/min, a=100tr/min/s, t=5") uniformisation (4000tr/min, 500tr/min/s, 30") recuit 200°C
Dépôt résine n°2 : PMMA (200nm)	dépôt (v=250tr/min, a=100tr/min/s, t=5") uniformisation (4000tr/min, 500tr/min/s, 30") recuit 200°C
Développement PMMA	MIBK :IPA (1 :3) (45") à T = 21°C IPA (15") et ultrasons légers
Développement PMGI	MF-319 (5") à T = 21°C, eau désionisée (20")
Nettoyage	plasma RIE avec débit O_2=100sccm p=50mT, Prf = 20W (30")
Métallisation Au(140nm)	dépôt par évaporation en incidence normale à 5Å/s
Lift off	NMP (5') à T = 60°C, ultrasons légers acétone (5'), ultrasons légers propanol (5'), ultrasons légers

Fabrication des réseaux : méthode dépôt isotrope

Etapes	**Détails**
Préparation substrat	acetone (5'), IPA (5'), dégazage 200°C (5')
Dépôt résine HSQ	uniformisation (5000tr/min, 500tr/min/s, 30") dégazage température ambiante 12h
Développement	MF319 (1'30")
Gravure RIE	SF_6(10sccm), O_2(10sccm), Ar(10sccm)
Dérésinage	acide fluorhydrique (2') 1%, eau desionisée (30')
Métallisation Au (40nm)	dépôt par évaporation, inclinaison substrat 60° vitesse rotation du subtrat = 10tours/min vitesse du dépôt = 1.5Å/s

Dépôt des plots TiN/Ni

Etapes	**Détails**
Préparation substrat	acide de CARO (5'), eau desionisée (5') acide fluorhydrique 10% (15"), eau desionisée (5') séchage dans vapeurs propanol
Dépôt résine n°1 : PMGI (180nm)	dépôt (v=250tr/min, a=100tr/min/s, t=5") uniformisation (4000tr/min, 500tr/min/s, 30") recuit 200°C pendant 5'
Dépôt résine n°2 : PMMA (200nm)	dépôt (v=250tr/min, a=100tr/min/s, t=5") uniformisation (4000tr/min, 500tr/min/s, 30") recuit 200°C pendant 5'
Développement PMMA	MIBK :IPA (1 :3) (45") à T = 21°C, ultrason légers propanol (15")
Développement PMGI	MF-319 (30") à T = 21°C eau désionisée (20")
Dépôt de TiN (15nm)	pulvérisation cathodique à 300W pression 7×10^{-3}mbar
Dépôt de Ni (7nm)	dépôt par évaporation avec flux atomique en incidence normale, vitesse lente
Lift off	NMP (2h) à T = 60°C, ultrasons légers acétone (5'), ultrasons légers propanol (5'), ultrasons légers

Gravure de l'or sur les nanotubes

Etapes	**Détails**
Dépôt résine : PMMA (200nm	dépôt de résine avec échantillon au repos uniformisation (2000tr/min, 100tr/min/s, 30") recuit 200°C pendant 5'
Gravure Au	$KI:I_2:H_2O$ (10") eau désionisée (5')
Nettoyage	acétone (5') propanol (5') dégazage 200°C pendant 5min

Fabrication des grilles silicium

Etapes	**Détails**
Préparation substrat	acide de CARO (5'), eau desionisée (10') acide fluorhydrique 10% (15"), eau desionisée (5') séchage vapeur propanol bouillant
Dépôt de silice	Oxydation thermique à 600°C sous flux H_2O
Dépôt résine : S1818	uniformisation (4000tr/min, 100tr/min/s, 30") recuit 110°C (5')
Gravure SiO_2 face avant	acide fluorhydrique (15") 10%, eau desionisée (5') eau desionisée (5') acetone (2') Propanol (2')
Dépôt S1818 face avant	uniformisation (4000tr/min, 100tr/min, 30") recuit 110°C (5')
lithographie optique	motif grille, insolation 5"
Développement S1818	MF-319 (30") eau désionisée (5')
Gravure ICP silicium	SF_6(50sccm), O_2(5sccm), C_4F_8(84sccm) p_{SF_6}=19mTorr, $p_{C_4F_8}$=22mTorr Pcoil=600W, Pplatine=10W pendant 75'
Nettoyage	trichorétylène bouillant (5') acétone (2×5') séchage vapeur propanol bouillant

Communications

Publications

1. **P. Guiset**, N. Le Sech, A. Gohier, A. Caillard, G. Rose, J.L. Maurice, S. Enouz-Vedrenne, J. Briatico, E. Jacquet, J.P. Schnell, C.S. Cojocaru, P. Legagneux, D. Pribat,*" Pulsed laser annealing of carbon nanotube based cathodes for microwave amplifiers"*, to be submitted (2011)
2. **P. Guiset**, T. Antoni, M. Carras, A. De Rossi, V. Berger, *"Imaging the near field of Surface Bloch Modes"*, to be submitted (2011)
3. T. Antoni, **P. Guiset**, M. Carras, A. De Rossi, V. Berger, *"Superlens with zero focal length"*, to be published (2011)
4. P. Legagneux, **P. Guiset**, N. Le Sech, J.P. Schnell, L. Gangloff, W.I. Milne and D. Pribat, chapter named *"Microwave amplifiers"* in a book entitled *"Carbon nanotube and related field emitter : fundamentals and applications "*, edited by Y. Saïto, published in John Wiley and Sons (Asia) Pte Ltd (2010) , pages : 439-468

Conférences

1. **P. Guiset**, S. Combrie, T. Antoni, M. Carras, A. De Rossi, J. P. Schnell, P. Legagneux, ***oral keynote presentation***, *"Optically driven Field Emission Array for THz amplifiers"*, International Vacuum Electronics Conference, Rome (Italy)
2. **P. Guiset**, S. Combrie, A. De Rossi, M. Carras, J. P. Schnell, P. Legagneux, ***oral presentation***, *"Surface plasmon localization on field emitters arrays for the microwave modulation of tunneling currents"*, SPIE Nanoscience and engineering, San Diego (USA)
3. **P. Guiset**, Sylvain Combrie, Mathieu Carras, Alfredo De Rossi, Jean-Philippe Schnell, Pierre Legagneux, ***poster presentation***, *"Surface plasmon localization on field emitters arrays for the microwave modulation of tunneling currents"*, International Field Emission Symposium, Rouen (France), poster presentation
4. **P. Guiset**, Sylvain Combrie, Mathieu Carras, Alfredo De Rossi, Jean-Philippe Schnell, Pierre Legagneux, ***poster presentation***, *"Surface wave concentration for laser-assisted field emission"*, Research Conference on Photonic Nano-objects, Les Houches (France)

Conférences avec publications

1. R. Morvan, G. Pillet, **P. Guiset**, J.P. Schnell, P. Legagneux, S. Megtert, A. de Rossi, D. Dolfi, J. Torres, P. Nouvel, H. Marinchio, L. Varani, L. Chusseau, J.-F. Lampin, S. Bollaert, Y. Roelens, *"Technological bricks and concepts for THz remote sensing"*, Photonics Society Winter Topicals Meeting Series (WTM) 2010, pages : 1 - 2
2. T. Antoni, M. Carras, V. Berger, **P. Guiset**, A. De Rossi, *"A zero-Focal-Length superlens for QWIPs and other infrared detectors"*, Proceedings of SPIE 2010, IR Optics, Vol. 7660, 766023
3. **P. Guiset**, S. Combrie, T. Antoni, M. Carras, A. De Rossi, J. P. Schnell, P. Legagneux, oral presentation, *"Optically driven Field Emission Array for THz amplifiers"*, International Vacuum Electronics Conference 2009. IEEE International, pages :325 - 326
4. P. Legagneux, N. Le Sech, **P. Guiset**, L. Gangloff, C. Cojocaru, JP Schnell, D. Pribat, K.B.K. Teo J. Robertson, W.I. Milne, F. André, Y. Rozier, D. Dieumegard, *"Carbon nanotube based cathodes for microwave amplifiers"*, International Vacuum Electronics Conference 2009. IEEE International, pages : 80 - 81
5. A. Di Carlo, C. Paoloni, F. Brunetti, M.L. Terranova, A. Durand, R. Marchesin, K. Pham, V. Krozer, A. Fiorello, M. Dispenza, D. Pribat, S. Megtert, J.P. Schnell, **P. Guiset**, P. Legagneux, D. Dolfi, A. de Rossi, *"The European project OPTHER for the development of a THz tube amplifier"*, International Vacuum Electronics Conference 2009. IEEE International, pages :100 - 101
6. **P. Guiset**, S. Combrie, A. De Rossi, M. Carras, J. P. Schnell, P. Legagneux, oral presentation, *"Surface plasmon localization on field emitters arrays for the microwave modulation of tunneling currents"*, Proceedings of SPIE 2008, Carbon nanotubes and associated devices, Vol. 7037, 70370Q, Pages :1-8
7. N. Le Sech, **P. Guiset**, L. Hudanski, J.-Ph. Schnell, P. Legagneux, D. Pribat, D. Dieumegard, K.B.K. Teo, J. Robertson and W. I. Milne, *"Carbon nanotube based cathodes and photocathodes for electron tubes"*, International Vacuum Nanoelectronics Conference 2008, IEEE International, pages : 38-39

Brevets

1. 12 juin 2008 n° WO/2008/068351
   Depositaires : P. Legagneux, L. Hudanski, J.P. Schnell, D. Dieumegard, **P. Guiset**, A. De Rossi
   Titre : "Cold cathode electronic tube with optical control"
2. Invention disclosure
   Depositaires : **P. Guiset**, N. Le Sech, J.P. Schnell, P. Legagneux
   Titre : "Cathode froides à pointes renversées et procédé de fabrication"

Monsieur Erick Lansard, *Directeur de THALES Research & Technology*,
Monsieur Emmanuel Desurvire, *Directeur du Groupe de Recherche en Physique*,
Monsieur Arnaud Brignon, *Responsable du laboratoire Micro-Nano Physique*,
Monsieur Pierre Legagneux,

ont l'honneur de vous informer que Monsieur **Pierrick Guiset** soutiendra sa thèse :

« Contrôle optique des cathodes froides à base de nanotubes de carbone pour les sources THz »

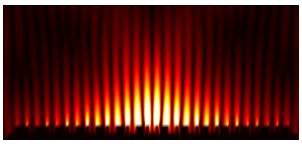
en vue d'obtenir le grade de Docteur de l'Ecole Polytechnique. Ils seraient très honorés de votre présence à cette soutenance qui aura lieu le

Mercredi 17 Mars 2010 à 14h dans l'auditorium de THALES Research & Technology (Palaiseau)

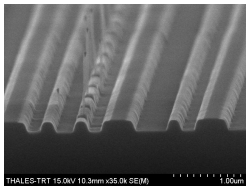
Résumé :

Le domaine THz connaît un extraordinaire essor depuis la fin des années 1980 du fait du grand nombre d'applications potentielles. Aujourd'hui les recherches portent sur le développement de sources compactes et puissantes (> 10 mW) qu'elles soient de nature électronique solide (nanotransistors), optique (lasers à cascade quantique) ou basées sur les tubes électroniques.

Ce travail propose d'améliorer la puissance délivrée par les tubes en étudiant une nouvelle source électronique dont l'émission peut être modulée optiquement dans la gamme THz. Cette source est une cathode froide qui est composée d'un réseau de nanotubes de carbone verticaux sur lequel un champ électrique statique est appliqué. L'effet de pointe provoqué par les nanotubes permet d'extraire les électrons de la cathode. Ceux-ci forment ensuite un faisceau électronique permettant de générer et d'amplifier l'onde THz au sein du tube électronique.



La première partie de cette étude porte sur le développement d'un réseau métallique permettant de coupler le battement THz d'un laser bifréquence aux nanotubes grâce à la génération de plasmons de surface. Le fonctionnement de ce réseau a été optimisé et caractérisé expérimentalement au cours de ce travail. Afin de parvenir à une compréhension globale du composant, une analyse du couplage optique entre le nanotube et les ondes de surface a également été effectuée.



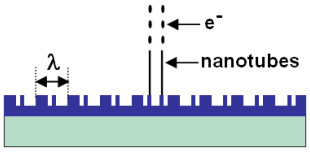
La seconde partie de l'étude s'est intéressée aux propriétés électroniques de cette nouvelle cathode. Les résultats obtenus montrent qu'elle permet de réduire la divergence du faisceau émis. La densité de courant a également été augmentée grâce à la mise au point d'une technique de recuit des nanotubes par laser impulsionnel. Ces deux points seront particulièrement importants pour le fonctionnement du tube qui est actuellement en phase de conception.

Notre étude s'est finalement attachée à la fabrication de cette nouvelle cathode. Celle-ci a permis d'aboutir à une solution technologique compatible avec le procédé de croissance des nanotubes de carbone à haute température (>500°C). A terme, la maîtrise des techniques développées durant ce travail devrait conduire à la modulation électronique de faisceaux électroniques jusqu'au THz et plus généralement à l'amélioration des performances des sources électroniques actuelles.

Abstract - Français

Mots clés : plasmon de surface, réseau, émission de champ, nanotube de carbone

Le domaine THz connaît un extraordinaire essor depuis la fin des années 1980. Néanmoins, la conception de sources puissantes (>10 mW) est difficile et celles-ci restent souvent massives et volumineuses. Aujourd'hui, les recherches portent donc sur le développement de sources compactes utilisant des techniques de l'électronique solide, de l'optique ou de l'électronique sous vide.



Ce travail considère un tube électronique associé à une cathode froide prémodulée. Celle-ci se compose d'un réseau de nanotubes de carbone verticaux permettant d'extraire les électrons sous faible champ électrique. Ce réseau de nanotubes est intégré sur un réseau de surface métallique permettant de coupler le battement THz d'un laser bifréquence aux électrons par l'intermédiaire de plasmons de surface.

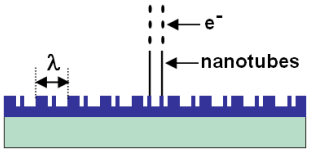
L'étude porte sur le développement du réseau métallique et sur la compréhension des propriétés électroniques de cette nouvelle cathode. Ces axes de travail ont notamment mené à la fabrication de réseaux fonctionnels, à la quantification de la divergence du faisceau électronique et à la mise au point d'une technique de recuit des nanotubes par laser impulsionnel. Concernant la fabrication de cette nouvelle cathode, une solution technologique a été développée en compatibilité avec la croissance haute température des nanotubes (>500°C).

La maîtrise des techniques développées durant ce travail devrait conduire à la modulation THz de faisceaux électroniques et plus généralement à l'amélioration des sources électroniques actuelles ou des appareils intégrant des réseaux de surface.

Abstract - English

Keywords : surface plasmon, grating, field emission, carbon nanotube

The THz field is experiencing a tremendous boom since the late 1980s. However, the design of powerful sources (>10mW) is still difficult so they often remain massive and bulky. Today, research is therefore focused on the development of compact sources using technics from solid electronics, optics or vacuum electronics.



This thesis considers an electron tube associated to a premodulated cold cathode. This cathode is an array of vertically aligned carbon nanotubes optimized to extract electrons at low electric field. The nanotubes are grown on a metallic surface grating dedicated to the coupling of a THz dual-frequency laser to the electrons thanks to surface plasmons.

The study is focused on the development of the metallic grating and on the understanding of the electronic properties of the new cathode. These directions have led in particular to the fabrication of functional gratings, to quantify the divergence of the electron beam and the development of a thermal annealing technique of nanotubes by pulsed laser. Regarding the fabrication of this new cathode, a technological solution has been developed in compatibility with the high temperature growth of nanotubes (>500°C).

The expertise developed during this work should lead to the THz modulation of electron beams and more generally should improve the performances of existing electronic sources or devices based on surface gratings.