

République Algérienne Démocratique et Populaire

Ministère de l'Enseignement Supérieur Et de La Recherche Scientifique



Université de Ghardaïa

Faculté des Sciences et Technologies

Département d'automatique et électromécanique

N° d'ordre :

N° de série :

Mémoire présenté en vue de l'obtention du diplôme de

MASTER

Domaine : *Sciences et Technologies*

Filière : électromécanique

Spécialité : *maintenance industriel*

Par : ABIDRI abdelhai

TERBAGOU mohamed

Thème

Maintenance d'un Microscope électronique à balayage pression variable (VPSEM): étude par la méthode de monte Carlo de l'interaction-matériau isolant AL_2O_3 en présence de gaz

Devant le jury :

ZITANI brahim

Univ. Ghardaïa

Examineur

KHANE yasmina

Univ. Ghardaïa

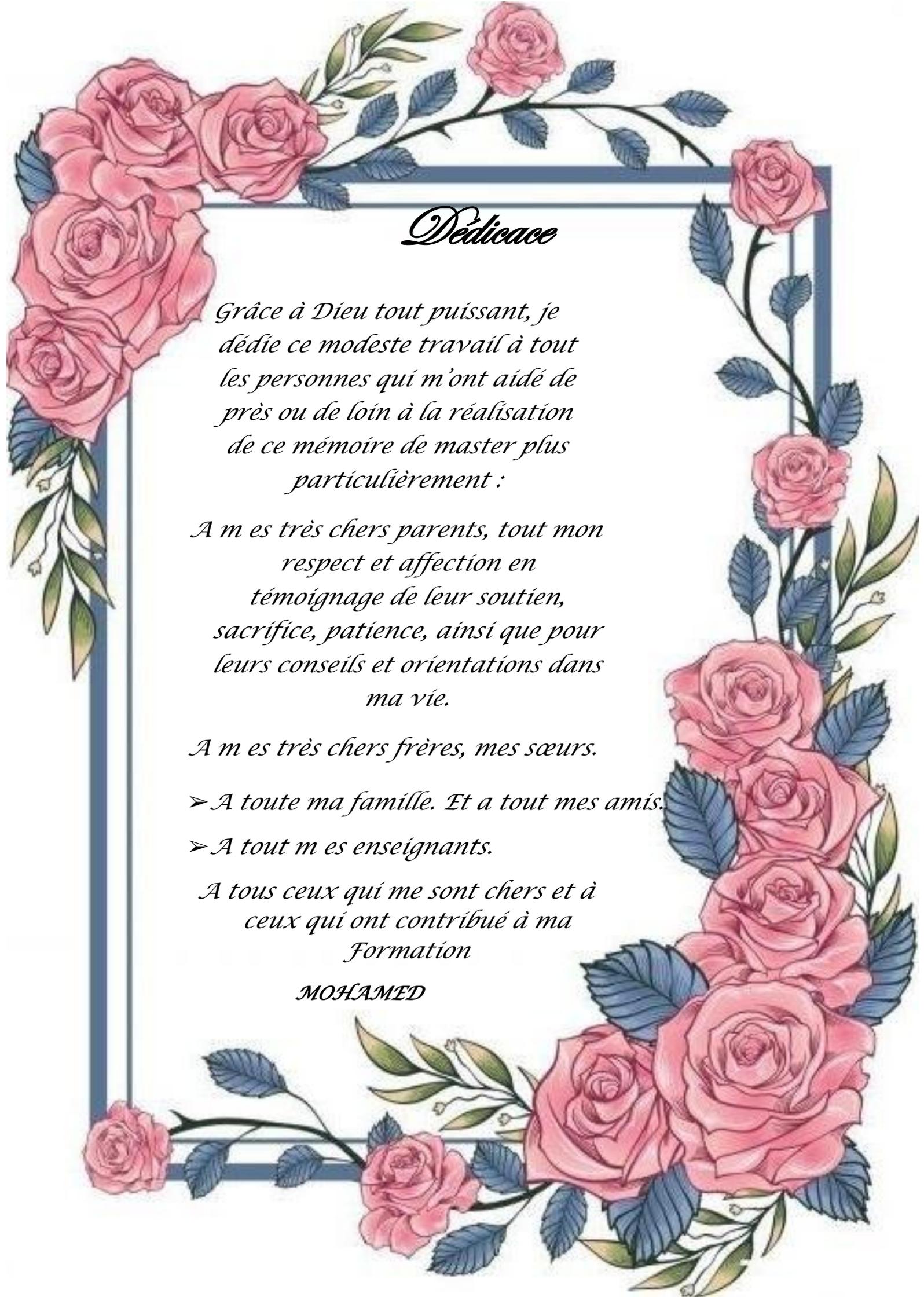
Examineur

HAFSI zoulikha

Univ. Ghardaïa

Encadreur

Année universitaire 2018/2019



Dédicace

*Grâce à Dieu tout puissant, je
dédie ce modeste travail à tout
les personnes qui m'ont aidé de
près ou de loin à la réalisation
de ce mémoire de master plus
particulièrement :*

*A mes très chers parents, tout mon
respect et affection en
témoignage de leur soutien,
sacrifice, patience, ainsi que pour
leurs conseils et orientations dans
ma vie.*

A mes très chers frères, mes sœurs.

➤ A toute ma famille. Et à tout mes amis.

➤ A tout mes enseignants.

*A tous ceux qui me sont chers et à
ceux qui ont contribué à ma
Formation*

MOHAMED



Dédicace

*Au nom d'Allah, le Tout Miséricordieux, le Très
Miséricordieux.*

Je dédie cette travail à....

A ma Chère Mère Massouda

*Pour tous ses sacrifices, son amour, sa tendresse,
son soutien et sa prière tout au long de mes
études,*

A mon Frères et mes sœurs

*Pour leurs encouragements permanents, et leur
soutien moral,*

*A toute ma famille ABIDRI pour leur soutien
tout au long de mon parcours académique,*

A mon binôme Mohamed Anis et tous mes amis

*A tous ceux qui m'ont étudié et contribué à mon
Éducation.*

ABDELHAI

Remerciement

*On remercie **ALLAH** le Tout-puissant de nous avoir donné le courage, la volonté et la patience de mener à terme ce présent. travail dans des meilleures conditions*

*On tient à remercier également notre codirecteur de mémoire de master Mme **HAFSI ZOULAIKHA**, pour l'honneur*

Qu'elle nous a fait en nous confiant ce travail et en acceptant de le codiriger . On a eu la chance de profiter de sa expérience et de ses grandes qualités humaines, et professionnelles

*Nous exprimons également nos sincères remerciements et notre gratitude à "**FARID TOAITI** " ET "**TALEB AHMED ABD ELHAK** 'qui nous ont beaucoup aidés dans ce travail,*

Nos vifs remerciements vont également aux membres de jury qui ont accepté de juger ce modeste travail D'apporter leurs réflexions et leurs critiques scientifiques

Liste des Tableaux

Tableau II. 1 Valeur de la distance interatomique r_{ij} , et de la distance maximum d'interaction r_m et du rapport $2\pi d/\lambda$ pour différents gaz moléculaires.....	38
Tableau III.1 : Conductivité γ et mobilité μ à température ambiante du cuivre et de l'alumine Monocristalline α -Al ₂ O ₃	58
Tableau V.2 : Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression et pour différents matériau pour H ₂ O et E=5keV L=1cm.....	96
Tableau V.3 : Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression et pour différents matériau pour H ₂ O et E=25keV L=1cm.....	96
Tableau V.4: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression et pour différents matériau pour He et E=25keV.....	98
Tableau V.5 : Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la distance de travail pour différentes matériau pour He t E=5keV.....	101
Tableau V6:Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la distance de travail pour différentes matériau pour H ₂ O et E=5keV.....	102
Tableau V.7:Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la distance de travail pour différentes matériau pour H ₂ O et E=5keV.....	103
Tableau V.8: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la distance de travail pour différentes matériau pour H ₂ O et E=25keV.....	104
Tableau V.9: Variation du rayon de sortie des électrons rétrodiffusés en fonction de la distance de travail pour différentes matériau.....	113
Tableau V.11: Variation du rayon de sortie des électrons rétrodiffusés et le rayon de skirt en fonction de la distance de travail pour les deux gaz cas de Al ₂ O ₃	113

Liste des figures

Figure I.1 : Le premier microscope électronique à balayage disponible dans le commerce, La Cambridge Instruments Stereoscan Mk1, 1965.....	04
Figure I.2 : Résolutions spatiales en microscopie électronique à balayage selon l'émission détectée.....	05
Figure I.3: Micrographies comparées d'un micro-organisme(Plancton marin-adiolarian Trochodiscuslongispinus.....	06
Figure I.4 : Comparaison de deux images d'un échantillon d'AlO ₂ obtenues:.....	11
Figure I. 5: Les différentes collisions ionisantes dans un gaz au-dessus de la surface d'un échantillon non conducteur. Les collisions :.....	13
Figure I. 6 : Système de pompage différentiel à deux étages.....	15
Figure I. 7: Image d'une pierre polie isolante en électrons rétrodiffusés à 110 Pa.....	20
Figure I. 8 : Les différents signaux détectés résultants de l'amplification par avalanche dans le gazrésiduel.....	21
Figure I. 9 : Modification de la qualité de l'image en fonction de la nature du gaz	22
Figure I. 10 : Courbe universelle du signal électronique en fonction de PL/V pour la vapeur d'eau.....	22
Figure II. 1 : Les différentes zones de concentration de gaz entre l'échantillon etPLA2.....	25
Figure II. 2 : Diagramme schématique illustrant les régimes de diffusion pour un faisceau d'électrons traversant un milieu gazeux.....	29
Figure II. 3 : Un électron se déplaçant le long de l'axe de PLA1 subit une collision entre z et Z+dz avec un angle entre et θ et rencontre un plan situé à une distance L de PLA1 dans Un anneau d'épaisseur δr	30
Figure II. 4 : Section efficace différentielle (élastique et inélastique et totale) en fonction des angles de diffusion pour l'argon	35

Figure II. 5 : Variation de la section efficace de diffusion pour des angles supérieurs à θ en fonction de θ pour différentes énergies du faisceau pour l'argon.....	37
Figure II. 6 : La section efficace totale de diffusion monoatomique en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons.....	37
Figure II .7 : La section efficace totale de diffusion de quelque gaz moléculaire en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons.....	39
Figure II. 8 : Variation du rayon du skirt pour différents nombres moyens de diffusion.....	41
Figure III.1 : Organigramme des différentes interactions possibles et des signaux émis lors de la pénétration d'un électron primaire dans la matière.....	45
Figure III.2 : Poire d'interaction électrons primaires / échantillon.....	46
Figure III.3 : Spectre d'émission électronique.....	47
Figure III.4: Représentation schématique de l'interaction entre un faisceau d'électrons et la surface d'un échantillon.....	48
Figure III.5 : Variation du coefficient de rétrodiffusion $[\eta]_r$ avec l'énergie incidente pour divers matériaux d'après.....	50
Figure III.6 : Variations du coefficient de rétrodiffusion $[\eta]_r$ en fonction de Z pour différentes énergies (domaine des faibles énergies) d'après Staub	50
Figure III.7 : Variations du coefficient de rétrodiffusion $[\eta]_r$ pour les matériaux massifs étudiés selon la formule (III.5)	51
Figure III.8 : Impact d'un faisceau d'électrons sous une incidence α par rapport à la normale à la surface.....	52
Figure III.9 : Variations du coefficient de rétrodiffusion η_r ($Z = 10$) en fonction de E_0 pour différents angles α et en fonction de α pour $E_0 = 6$ keV selon la formule.....	53
D'énergie avec un pic de 2-5eV.....	54
Figure III .11: dispositif de mesure de CL. (1) MEB, (2) miroir parabolique, (3) monochromateur, (4) platine froide.....	56

Figure III .12: Niveaux électroniques (sans hybridation) en fonction de la distance interatomique r dans le cas d'un isolant et d'un conducteur cristallins	59
Figure III .13: Remplissage des bandes d'énergie par les électrons du solide	59
Figure IV. 1 : Elément caractéristique d'une étape de trajectoire d'un électron.....	64
Figure IV.2 : Elément caractéristique d'une étape de trajectoire d'un électron.....	72
Figure IV. 1 : Elément caractéristique d'une étape de trajectoire d'un électron.....	75
Figure IV.2 : Elément caractéristique d'une étape de trajectoire d'un électron	83
Figure V.1: Trajectoires électroniques à incidence normale de Al_2O_3 ($Z=10$) dans le vide pour $E = 5keV$	86
Figure V.2: Trajectoires électroniques à incidence normale de Cuo ($Z=18,5$) dans le vide pour $E = 5keV$	86
Figure V.3: Trajectoires électroniques à incidence normale de Al_2O_3 dans le vide pour $E = 5keV$	87
Figure V.4: Trajectoires électroniques à incidence normale de Al_2O_3 dans le vide pour $E = 10keV$	88
Figure V.5: Trajectoires électroniques à incidence normale de Al_2O_3 dans le vide pour $E = 15keV$	88
Figure V.6: Trajectoires électroniques à incidence normale de Al_2O_3 dans le vide pour $E = 20keV$	89
Figure V.7: Trajectoires électroniques à incidence normale de Al_2O_3 dans le vide pour $E = 25keV$	89
Figure V.8: Trajectoires électroniques de $Al_2 O_3$ $P=533Pa$, $E = 5keV$	91
Figure V.9: Trajectoires électroniques de $Al_2 O_3$ $P=533Pa$, $E = 25keV$	91
Figure V.10: Trajectoires électroniques de CuO $P=533Pa$, $E = 5keV$	92
Figure V.11: Trajectoires électroniques de CuO $P=533Pa$, $E = 25keV$	92

Figure V.12:Trajectoires électroniques de Al ₂ O ₃ P=533Pa, E =5keV.....	93
Figure V.13:Trajectoires électroniques de Al ₂ O ₃ P=533Pa, E =25keV.....	93
Figure V.14:Trajectoires électroniques de CuO P=533Pa, E =5keV.....	94
Figure V.15:Trajectoires électroniques de CuO P=533Pa, E =25keV.....	94
Figure V.16 : Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression et pour différentes matériau pour H ₂ O.....	95
Figure V.19: Variation du taux de rétrodiffusés en fonction de la pression pour différentes énergie pour le couple He-Al ₂ O ₃	99
Figure V.20: Variation du taux rétrodiffusé en fonction de la pression et pour différentes énergie pour le couple H ₂ O-Al ₂ O ₃	99
Figure V.21: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la distance de travail et pour différentes matériaux pour He.....	100
Figure V.22: Variation de taux rétrodiffusé en fonction.....	101
Figure V.23: Variation de taux rétrodiffusé en fonction.....	102
de la distance de travail et pour différentes matériaux pour H ₂ O.....	102
Figure V.24: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression pour différentes énergie dans CuO pour les deux gaz.....	104
Figure V.25: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression pour différent distance de travail dans CuO pour les deux gaz.....	104
Figure V.26: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail sous vide pour Al ₂ O ₃ E=5keV.....	105
Figure V.27: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail sous vide pour Al ₂ O ₃ ,E=25ke.....	106
Figure V.28: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail sous vide pour CuO, E=5keV.....	106

Figure V.29: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail sous vide pour CuO, E=25keV.....	107
Figure V.30: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de l'hélium pour Al 3O2 E=5keV.....	108
Figure V.31: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de l'hélium pour Al 3O2 E=25keV.....	108
Figure V.32: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de l'hélium pour CuO E=5keV.....	109
Figure V.33: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de l'hélium pour CuO E=25keV.....	109
Figure V.34: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de la vapeur d'eau pour Al 3O2 E=5keV.....	110
Figure V.35: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail présence de la vapeur d'eau pour Al 3O2 E=25keV.....	110
Figure V.36: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de la vapeur d'eau pour CuO E=5keV.....	111
Figure V.37: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de la vapeur d'eau pour CuO E=25keV.....	111

Liste des abréviations

Anglais:

SEM :ScanningElectron **M**icroscope

VPSEM:Variable Pressure Scanning Electron Microscope

CPSEM:Controlled**P**ressureScanning **E**lectron **M**icroscope

LVSEM:Low Vacuum Scanning Electron Microscope

ESEM:environmental scanning electron microscope

PLA : "Pressure limiting aperture

SE:Secondary Electron

BES :Backscattered Electrons

MFP:Mean**F**ree **P**ath

GPL:Gas**P**athlength

WD:working**D**istance

française:

SEM :Microscope Electronique à Balayage

MEB: Microscope Electronique à Balayage

VPSEM: microscope électronique à balayage à pression variable

CPSEM: microscope électronique à balayage à pression contrôlée

LVSEM: microscope électronique à balayage sous vide

ESEM: microscope électronique à balayage environnemental

PLA: Ouverture de limitation de pression

ESB: ElectronsRétrodiffusés

SE: Electron Secondaire

MFP: chemin libre moyen

GPL: longueur du trajet de gaz

WD: Distance de travail

Résumé :

Ce travail s'intéresse essentiellement à la modélisation et à la simulation Monte Carlo de l'interaction électron- matière dans le microscope électronique à balayage à pression variable (VPSEM) et à son effet sur le volume d'interaction et sa conséquence sur la production des électrons rétrodiffusés, à partir de matériaux isolants, notamment les oxydes suivants: Al_2O_3 et CuO . Nous avons choisi deux gaz ; l'un l'hélium, pour son excellente qualité en terme de minimisation de l'élargissement du faisceau électronique (skirt), l'autre, la vapeur d'eau (H_2O) pour ses bonnes performances en termes d'efficacité d'ionisation. En outre, ce gaz est parfois incontournable quand il s'agit de l'imagerie d'objets hydratés. Notre étude montre que la présence du gaz n'affecte pas la profondeur de pénétration des électrons dans le matériau mais augmente la dimension latérale de la poire d'interaction. L'étude systématique de la distribution des électrons rétrodiffusés a montré que la présence du gaz change cette distribution. En particulier, le rayon de sortie R_s est considérablement augmenté. De plus, il apparaît que la variation de la distance de travail (L) a peu d'effet en présence d'hélium, ce qui n'est pas le cas de H_2O . En présence d'hélium, la résolution pour le signal des rétrodiffusés est quasiment indépendante de L .

Mots clés : MEB a pression variable , Simulation Monte Carlo, Interaction électrons-matière.

الملخص:

يهتم هذا العمل بشكل أساسي بنمذجة مونت كارلو ومحاكاة تفاعل المادة الإلكترونية في المجهر الإلكتروني الماسح بالضغط المتغير (VPSEM) وتأثيره على حجم التفاعل ونتائجه على إنتاج الإلكترونات المرتدة من المواد العازلة ، في خاصة الأكاسيد التالية: أكسيد الألمنيوم (Al_2O_3) وأكسيد النحاس (CuO) اخترنا اثنين من الغازات. هيليوم ، لجودته الممتازة من حيث تقليل اتساع شعاع الإلكترون (التنورة) ، والآخر بخار الماء (H_2O) لأدائه الجيد من حيث كفاءة التأين. بالإضافة إلى ذلك ، هذا الغاز مهم خاصة عندما يتعلق الأمر بتصوير الأجسام الرطبة . توضح دراستنا أن وجود الغاز لا يؤثر على عمق تغلغل الإلكترونات في المادة ولكنه يزيد من البعد الجانبي لحجم التفاعل . أظهرت الدراسة المنهجية لتوزيع الإلكترونات المتناثرة أن وجود الغاز يغير هذا التوزيع. على وجه الخصوص ، يتم زيادة نصف قطر الخروج R_s بشكل كبير. بالإضافة إلى ذلك ، يبدو أن الاختلاف في مسافة العمل (L) له تأثير ضئيل في وجود الهيليوم ، وهذا ليس هو الحال مع بخار الماء في وجود الهيليوم ، يكون دقة الإشارة المتناثرة مستقلاً تقريباً عن مسافة العمل (L)

الكلمات المفتاحية : SEM عالي الضغط ، محاكاة مونت كارلو ، تفاعل مادة – الإلكترون

Abstract

This work is mainly interested in the Monte Carlo modeling and simulation of the electron-matter interaction in the variable pressure scanning electron microscopy (VPSEM) and its effect on the interaction volume and its consequence on the production. Of the backscattered electrons, from insulating materials, in particular the following oxides: Al_2O_3 and CuO . We chose two gases; one helium, for its excellent quality in terms of minimizing the widening of the electron beam (skirt), the other, water vapor (H_2O) for its good performance in terms of ionization efficiency. In addition, this gas is sometimes unavoidable when it comes to imaging hydrated objects. Our study shows that the presence of the gas does not affect the depth of penetration of electrons into the material but increases the lateral dimension of the interaction bulb. Systematic study of the distribution of backscattered electrons has shown that the presence of gas changes this distribution. In particular, the exit radius R_s is considerably increased. In addition, it appears that the variation of the working distance (L) has little effect in the presence of helium, which is not the case with H_2O . In the presence of helium, the resolution for the backscattered signal is almost independent of working distance (L)

Keywords: High pressure SEM, Monte Carlo simulation, Electron-matter interaction.

SOMMERE

Liste des Tableaux	I
Liste des figures.....	II
Liste des abréviations	VII
SOMMERE	X
INTRODUCTION GENERALE.....	1

CHAPITRE I

LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE A PRESSION VARIABLE(VPSEM)

I. INTRODUCTION.....	3
II. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE À BALAYAGE	3
II.1. Généralité sur la microscopie électronique à balayage :.....	3
II.2. Principe de fonctionnement:	5
III. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE À BALAYAGE A VARIABLE PRESSION (V.P.S.E.M) :	8
III.1. Historique:	8
III.2. Définition :.....	10
III.3. Les différents types :	12
III.4. Principe de fonctionneent :	12
III.5. Les différentes interactions dans le VPSEM :.....	15
III.5.1 Interaction du faisceau avec le gaz :.....	16
III.5.2 Interaction faisceau-échantillon	17
III.5.3 Interaction échantillon-signal	17
III.5.4 Interaction signal-gaz	17
III.5.6 Interaction gaz-échantillon.....	18
III.5.7 Interaction faisceau primaire-signal	18

III.6 La détection :	18
----------------------------	----

Le choix des électrons rétrodiffusés se justifie par leur grande énergie leur permettant de passer à travers le gaz.	19
---	----

CHAPITRE II

INTERACTION ELECTRON-GAZ DANS LE VPSEM

I. INTRODUCTION.....	24
II. DEFINITIONS ET EQUATIONS DE BASE	24
III. PROFIL DU FAISCEAU ELECTRONIQUE.....	29
III. 1. Formulation du problème :	29
III. 2. Calcul des sections efficaces de diffusion	33
III. 3. Elargissement du faisceau d'électron (skirting):	40
IV. PROFONDEUR D'INTERACTION DANS LE GAZ :	43

CHAPITRE III

INTERACTION ELECTRON-MATIERE

I. INTRODUCTION.....	45
II. HISTORIQUE	45
III. MECANISME PHYSIQUE DE L'INTERACTION ELECTRON-MATIERE	46
III.1. Volume d'interaction et signaux générés :	46
III.2 Profondeur de pénétration des électrons dans la matière :.....	47
III.3 Distribution énergétique des électrons émis :	48
IV. LES DIFFERENTES EMISSIONS D'ELECTRONS	49
IV.1. Electrons rétrodiffusés :	50
IV.2. Electrons secondaires :	54
IV.3. Emission de photons X et d'électron Auger :	55
III.4. Cathodoluminescence (CL) :	56

V. INTERACTION ELECTRON-ISOLANT	57
IV.1. Qu'est ce qu'un isolant :	58
IV.2. Différences isolants / conducteurs.....	59

CHAIPITRE IV

MODELISATION ET SIMULATION

I. INTRODUCTION :	62
II. LA METHODE DE MONTE CARLO :	62
II.1. Définition et historique	62
II.2. Générateurs de nombres aléatoires :	63
II.3. Méthodes d'échantillonnage :	64
III. MODELISATION DES TRAJECTOIRES ELECTRONIQUES DANS LES GAZ PAR LA METHODE MONTE-CARLO:	64
III.1. Description de la génération des trajectoires :	64
III.2. Description des collisions :	65
III.3. Parcours électronique entre deux chocs.....	66
III. 4. Calcul des angles de diffusion θ et φ :	67
III. 5. Trajectoire de l'électron :	69
III. 5. a. Coordonnées de l'électron :	69
III. 5. b. Pouvoir d'arrêt :	70
VI. MODELISATION DES TRAGECTOIRES ELECTRONIQUES DANS LES MATERIAUX PAR LA METHODE MONTE-CARLO	70
VI.1.Principe de base :	70
VI.2. Présentation du modèle original :	71
VI.3. Principe de dispersion multiple "plural scattering" :	72
I. INTRODUCTION :	75
III.1. Description de la génération des trajectoires :	75
III.2. Description des collisions :	76
III.3. Parcours électronique entre deux chocs.....	77

III. 4. Calcul des angles de diffusion θ et φ :	78
III. 5. Trajectoire de l'électron :	80
III. 5. a. Coordonnées de l'électron :	80
III. 5. b. Pouvoir d'arrêt :	81
VI. MODELISATION DES TRAJECTOIRES ELECTRONIQUES DANS LES MATERIAUX PAR LA METHODE MONTE-CARLO	81
VI.1 Principe de base :	81
VI.2 Présentation du modèle original :	82
VI.3. Principe de dispersion multiple "plural scattering" :	83
CHAPITRE V	
RESULTATS ET INTERPRETATIONS	
I. INTRODUCTION.....	87
II. RESULTATS RELATIFS AUX INTERACTIONS ELECTRON-MATIERE (SOUS VIDE). APPLICATION AU Al_2O_3 et CUO	87
III.1. Influence de la nature chimique du matériau :	87
III.2. Influence de l'énergie incidente :	89
IV. EFFET DE LA PRESENCE DU GAZ SUR LE VOLUME D'INTERACTION (LA POIRE D'INTERACTION)	92
V. EFFET DE LA VAPEUR D'EAU ET DE L'HELIUM SUR L'EMISSION RETRODIFFUSEE POUR LES MATERIAUX Al_2O_3, CuO	97
V.1. Effet de la pression :	97
V.2. Effet de l'énergie :	101
V.3. Effet de la distance de travail:	102
V.4. Effet de la nature chimique du gaz :	106
V.5. La distribution des électrons rétrodiffusés :	107
CONCLUSION GENERALE	117

INTRODUCTION GENERALE

PRESENTATION :

Dans toutes les disciplines scientifiques, et en particulier en biologie cellulaire et moléculaire ainsi qu'en physique du solide, le microscope électronique a été un outil essentiel dans l'acquisition des connaissances, cependant les observations sont limitées aux objets conducteurs ou dont la surface est, au préalable, métallisée. La possibilité d'observer en SEM des échantillons non métallisés, en utilisant l'effet de neutralisation de la charge excédentaire par les ions positifs produits par l'interaction électron primaire-gaz a conduit de nombreux fabricants à proposer, depuis le début des années 1990, des microscopes de type ESEM (Environmental SEM), CPSEM (Controlled Pressure SEM), VPSEM (Variable Pressure SEM), LVSEM (Low Vacuum SEM). Ces microscopes qui diffèrent par la nature du gaz dans la chambre d'analyse, le mode opératoire, le domaine de pression utilisable, et par leurs diverses applications, peuvent tous être regroupés sous le vocable de microscopes à haute pression (HPSEM: High Pressure SEM).

PROBLEMATIQUE :

Ces nouveaux microscopes (HPSEM) permettent d'élargir considérablement le champ d'investigation à tous les types de matériaux : isolants tels que les polymères, les fibres synthétiques, les textiles; matériaux biologiques dans leur état naturel; matériaux archéologiques ne supportant aucune préparation préalable; liquides etc...

La présence du gaz dans l'enceinte d'analyse a essentiellement deux fonctions qui sont la préservation de l'échantillon notamment pour les échantillons hydratés, biologiques et la possibilité de créer des ions positifs lors de l'interaction gaz -électron.

Les charges ainsi créées vont venir sur la surface de l'échantillon afin de permettre l'annihilation des charges négatives accumulées à la surface de l'échantillon pour les isolants.

Cependant, lors du passage du faisceau électronique dans le gaz, il se produit des interactions qui ne sont pas sans conséquence sur les images MEB (résolution, contraste..) ainsi que sur la microanalyse X. Dans des travaux antérieurs, nous avons quantifié l'élargissement du faisceau (skirt) ainsi que le taux de déviation des électrons par simulation

Nous nous intéresserons dans ce travail au devenir du faisceau d'électron élargi, une fois qu'il interagit avec la matière isolante, objet de l'observation au MEB (SEM). Il s'agit donc à présent de simuler les trajectoires électroniques dans la matière et d'en déduire, à partir du nouveau volume d'interaction, les conséquences sur les signaux sortants obtenus. Parmi ces signaux, nous nous sommes particulièrement intéressés aux électrons rétrodiffusés.

OBJECTIF :

Ce travail s'intéresse essentiellement à la description de l'interaction électron-matière isolante dans le VPSEM et son effet sur le volume d'interaction et sa conséquence sur la production des électrons rétrodiffusés, par l'examen de matériaux diélectrique notamment les oxydes suivants : Oxyde d'aluminium Al_2O_3 , et Oxyde de cuivre CuO. Nous avons choisi deux gaz ; l'un l'hélium, pour son excellente qualité en terme de minimisation du skirt, quelles que soient les conditions d'observation, l'autre, la vapeur d'eau (H_2O) pour ses bonnes performances en termes d'efficacité d'ionisation. En outre, ce gaz est parfois incontournable quand il s'agit de l'imagerie d'objets hydratés.

ORGANISATION DU MANUSCRIT:

La mémoire se compose de cinq chapitres :

Le premier chapitre, consacré à l'étude bibliographique, présente le principe de la microscopie électronique à balayage à haute pression (VPSEM) et rappelle brièvement les principes de base de cette technique de caractérisation des matériaux.

Dans le second chapitre, nous avons décrit en détail l'interaction électron-gaz par les équations de base. Nous y insistons sur le calcul théorique des sections efficaces de collision dans le cas de gaz moléculaires (H_2O) et monoatomiques He, ainsi que les profondeurs de pénétration dans le gaz, c'est sur ces calculs que reposent nos calculs de simulation par la méthode de Monte Carlo pour deuxième nous allons détailler les divers processus physiques qui interviennent lors de l'interaction électron-matière en rappelant l'interaction électron-matériau et on a consacré à une présentation de l'application de la méthode de Monte Carlo pour l'étude des interactions électron-gaz et électron-matière.

Dans le troisième chapitre, nous allons détailler les divers processus physiques qui interviennent lors de l'interaction électron-matière en rappelant l'interaction électron-isolant.

Introduction générale

Le quatrième chapitre de la thèse est consacré à une présentation de l'application de la méthode de Monte Carlo pour l'étude des interactions électron-gaz et électron-matière.

Enfin,

le cinquième et dernier chapitre présente les résultats de nos calculs de simulation pour les deux gaz et les deux matériaux choisis, en faisant varier les paramètres habituels d'observation (énergie des électrons incidents, pression du gaz et distance de t)

CHAPITRE I

LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE A PRESSION VARIABLE(VPSEM)

I. INTRODUCTION

Dans ce chapitre, nous allons aborder graduellement le principe de microscopie électronique à balayage à haute pression en rappelant brièvement les principes de base de la microscopie électronique à balayage.

II. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE À BALAYAGE

II.1. Généralité sur la microscopie électronique à balayage :

La naissance de la microscopie électronique à balayage (SEM), dans les années 30 et 40, représente une percée majeure dans l'étude de la microstructure, la composition et les propriétés des matériaux solides. Le SEM combine l'imagerie à haute résolution avec une grande profondeur de champ, grâce aux courtes longueurs d'onde des électrons et de leur capacité à se concentrer à l'aide de lentilles électrostatiques et électromagnétiques. En outre, l'interaction des électrons avec la matière produit une large variété de signaux révélant toutes sortes de « secrets » sur le matériau au niveau microscopique.

La première démonstration est attribuée à Knoll, qui a obtenu les premières images scannées des électrons de la surface d'un solide (Knoll, 1935). En 1938, Von Ardenne établit les techniques élémentaires du SEM, dont la formation de la sonde électronique et son déplacement, le positionnement du détecteur et les moyens d'amplifier le très faible signal du courant (Von Ardenne, 1938a, 1938b dans [1]). Puis Zworykin et son équipe de RCA Research Laboratories réalisa un SEM avec plusieurs caractéristiques originales (Zworykin et al. 1942 dans [1]). La résolution est d'environ 50 nm laquelle, par rapport au microscope électronique à transmission (TEM) déjà établis, n'a malheureusement pas été suffisante pour convaincre à cette époque la communauté de l'utilité du SEM.

Le développement du SEM a été repris en 1948 par Oatley à l'université de Cambridge où, pendant un certain nombre d'années, lui et ses étudiants chercheurs construisit cinq SEM avec

une amélioration de leurs performances dont la première était comment pourrait-on révéler la nature d'une surface en trois dimensions (McMullen, 1952, 1953 dans [1]), puis les étudiants qui l'ont suivi ont fait plusieurs contributions importantes au développement du SEM et ses applications, ce qui a conduit à un instrument avec une résolution de 10 nm vers les années 1960. Quelques exemples de la littérature à ce moment-là comprennent [1]: Smith et Oatley (1955), Smith (1956); Oatley et Everhart (1957); Wells (1957); Everhart et Thornley (1960); Broers (1965) et Pease et Nixon (1965). Le point culminant de ce travail a été la production d'un premier SEM disponible dans le commerce en 1965: le Cambridge Instruments Stereoscan (Figure I.2).

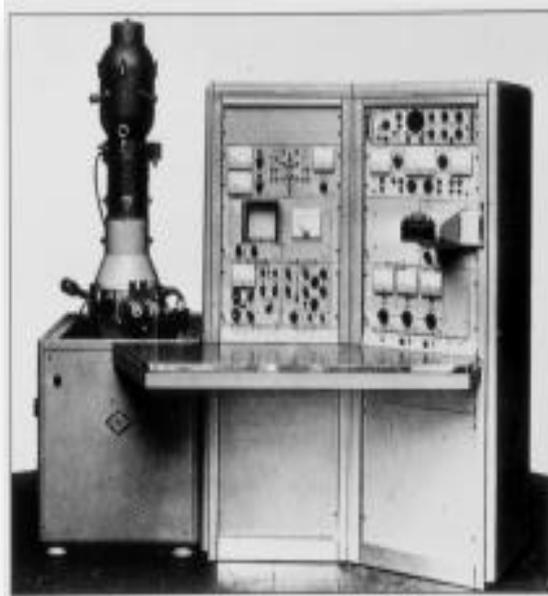


Figure I.1 : Le premier microscope électronique à balayage disponible dans le commerce, La Cambridge Instruments Stereoscan Mk1, 1965.

Cela a marqué le début d'une nouvelle ère. La résolution du SEM n'a pas été aussi bonne que celle du TEM, mais les difficultés de préparation des échantillons minces pour le TEM ont été évitées. En outre, il est apprécié que la capacité d'observer la surface des échantillons, de visualiser la topographie des caractéristiques et d'obtenir des informations quantitatives ait été très précieuse dans un même endroit.

II.2. Principe de fonctionnement:

La microscopie Electronique à balayage est basée sur l'interaction entre les électrons du faisceau incident et l'échantillon. La détection des signaux émis (électron secondaire, rétrodiffusé, transmis et photons X) permet d'obtenir des informations sur la morphologie, la structure et la composition chimique de l'échantillon. Après interaction du faisceau incident avec la matière de l'échantillon, on obtient différents signaux exploitables pour l'analyse de l'échantillon.

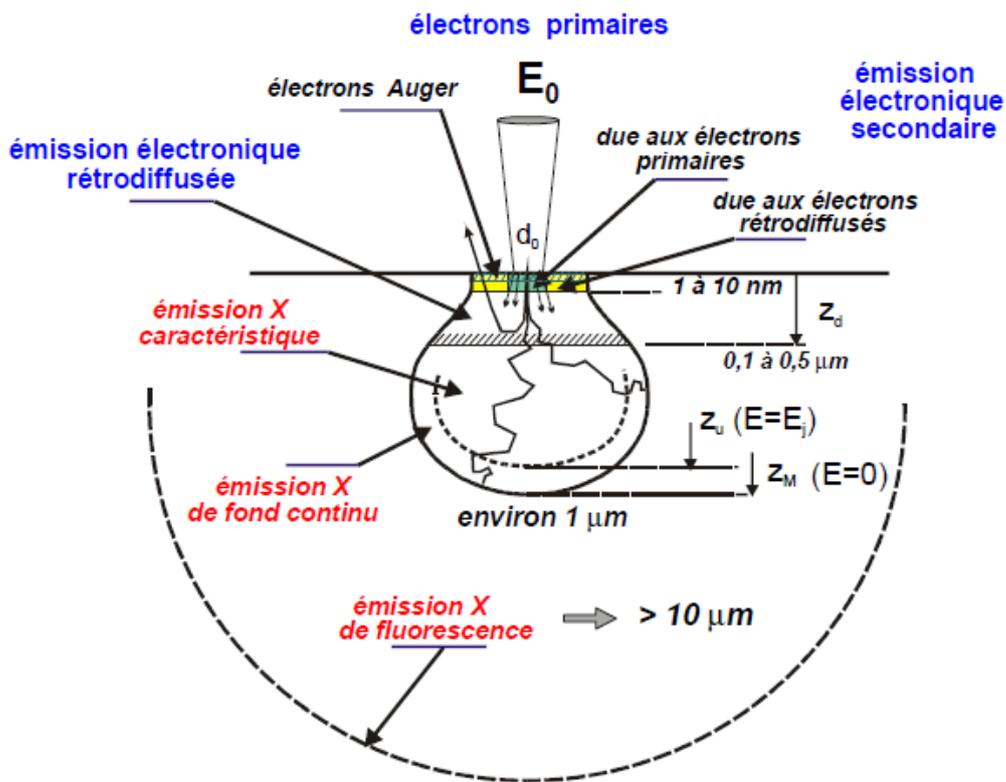
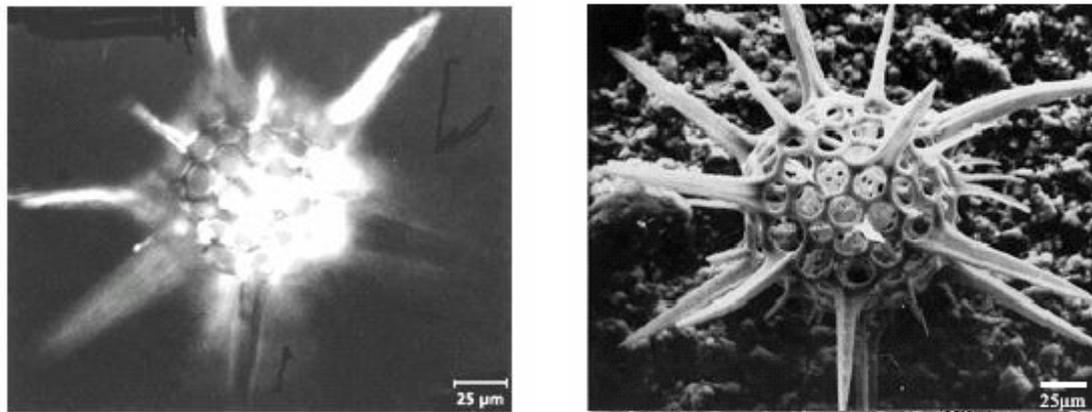


Figure I.2 : Résolutions spatiales en microscopie électronique à balayage selon l'émission détectée

Une des caractéristiques principales du SEM est sa haute résolution qui peut être de l'ordre du nm. Une autre caractéristique essentielle de cet appareil est la possibilité de visualisation en 3 dimensions grâce à la grande profondeur de champ et à l'effet de relief procuré par les signaux d'électrons secondaires et rétrodiffusés. Ces deux caractéristiques sont excellemment illustrées par la figure (I.3), qui montre deux images comparées d'un même objet, prise en microscopie optique et en SEM.



(a)

(b)

Figure I.3: Micrographies comparées d'un micro-organisme [2, 3]

(Plancton marin-adiolarian *Trochodiscus longispinus*).

a) Image obtenue au microscope optique

b) Image SEM (on voit qu'elle est beaucoup mieux résolue et qu'elle montre mieux le relief)

Le grandissement est le rapport entre les dimensions balayées sur l'écran de visualisation et sur l'échantillon. La résolution définit la distance minimale décelable séparant deux détails de la surface observée. Cette résolution, différente selon les signaux observés, est directement liée au diamètre du faisceau focalisé sur la surface et est donc une conséquence du choix du canon à électrons, de la tension d'accélération et de l'intensité du faisceau.

Le SEM est souvent équipé d'un système d'analyse X qui permet une analyse chimique locale. La disponibilité du balayage dans le SEM offre en outre, la possibilité de réaliser des images X traduisant la distribution spatiale des espèces atomiques de l'objet sur la profondeur activée par la sonde. Pour clôturer cette rapide description d'un SEM classique, il convient de noter qu'un tel appareil est constitué de deux parties: l'une de ces deux parties est la colonne optique où est réalisé un vide poussé qui permet aux électrons accélérés à partir du canon d'arriver en ligne droite sur la cible. L'autre partie comprend les détecteurs adaptés aux différents signaux.

L'un des inconvénients du SEM est que sa colonne optique doit être strictement maintenue sous vide (pression de l'ordre de 10^{-5} à 10^{-7} Torr) afin d'éviter toute déviation des électrons constituant le faisceau. Aussi, pour conserver le vide, l'échantillon à observer doit être parfaitement propre et sec, ne contenant pas d'espèces volatiles. Par exemple, l'observation de

cellules vivantes est impossible sans préparation préalable (déshydratation de la cellule sans détérioration des tissus).

L'autre inconvénient réside dans le fait que l'observation n'est possible qu'avec des échantillons conducteurs d'électricité. Les échantillons isolants sont donc préalablement rendus conducteurs par dépôt d'une fine couche métallique, qui permet l'évacuation de la charge statique accumulée en surface.

Regardons un peu plus en détail les causes de ces deux limitations dans l'utilisation du SEM :

1. Un liquide ou un échantillon hydraté directement observé en SEM, va détruire le vide requis pour le fonctionnement normal du microscope et va contaminer les lentilles et les diaphragmes d'ouverture du système. Les échantillons biologiques sont donc systématiquement déshydratés avant d'être introduits dans la chambre d'analyse, ce qui empêche toute observation des caractéristiques réelles de ces échantillons. Des cellules vivantes ne peuvent donc être observées en SEM.

2. Durant l'observation au SEM, quand le faisceau d'électrons irradie un échantillon, les rendements d'émissions (secondaire et rétrodiffusée) étant par essence imparfaits, l'intensité du courant sortant, constituée par les signaux émis, est inférieure au courant entrant dans l'échantillon (courant primaire de sonde). Il y a donc accumulation de charge sur l'échantillon. Si ce dernier est conducteur, la charge est évacuée en mettant simplement l'échantillon à la masse. S'il n'est pas conducteur, la charge n'est pas évacuée et perturbe le courant de sonde. Cette perturbation se répercute sur le contraste qui va présenter des instabilités et sur la résolution qui va être considérablement dégradée.

L'accumulation de charge est donc un problème majeur en microscopie électronique à balayage. Le dépôt d'une fine couche d'un métal (typiquement quelques nm d'aluminium, d'or...) permet normalement d'éliminer cet excès de charge. Cependant, la présence de cette couche (donc de nature différente de l'échantillon) risque de réduire les contrastes topographiques et de composition [4]. Une autre solution consiste à réduire l'énergie du faisceau primaire pour augmenter l'émission secondaire jusqu'à ce que la charge injectée par le faisceau soit équilibrée par la charge (électrons secondaires+ rétrodiffusés) émise par l'échantillon [4]. Ceci conduit cependant à une perte de résolution alors que l'élimination de la charge n'est pas forcément totalement assurée à cause de la variation de l'émission secondaire due aux inhomogénéités de la surface de l'échantillon.

Avec l'intérêt grandissant pour ces deux types de matières (matériaux isolants, organismes biologiques) en technologie et biotechnologie, il était impératif de développer une nouvelle technique permettant leur observation microscopique sans les altérer. C'est dans ce contexte qu'est apparue une nouvelle famille de SEM, fonctionnant sous environnement gazeux. L'interaction du faisceau d'électrons primaire avec les entités (atomes ou molécules) du gaz conduit à l'ionisation de ces entités lesquelles vont venir neutraliser la charge négative excédentaire qui apparaît à la surface de l'échantillon.

III. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE À BALAYAGE A HAUTE PRESSION (H.P.S.E.M) :

III.1. Historique:

Depuis environ les années 50, les chercheurs ont conduit des expériences avec un pompage différentiel, ouverture limitée "chambres environnementales" pour le TEM, tandis que d'autres ont travaillé avec des réservoirs scellés par un film mince, avec une fenêtre transparente aux électrons (voir, par exemple, Swift et Brown, 1970; Parsons, 1975 dans référence [1]). Puis, en 1970, Lane a démontré l'utilisation d'une ouverture limitée dans la chambre d'un SEM, et aborda la conception d'un "environnemental control stage", ainsi que la notion de section efficace de diffusion et de libre parcours moyen des électrons dans différents gaz, y compris l'hydrogène, l'oxygène, l'azote et les gaz nobles, et a démontré aussi la stabilité de l'imagerie de l'eau liquide.

Pendant ce temps, Robinson, Moncrieff et d'autres dans les années 70 ont travaillé sur le développement d'un SEM capable de maintenir une forte pression tout en assurant le contrôle de l'image, par l'adaptation de la chambre d'analyse elle-même du SEM (Robinson, 1975). Une image stable d'eau liquide a également été montrée par Robinson lors du Congrès international sur la Microscopie Electronique (ICEM 8) à Canberra, en Australie (Robinson, 1974). Il travaillait sur une modification du JEOL JSM 2 SEM, ayant un système d'ouverture (PLA) de 100 µm pour séparer la région du haut vide contenant la source d'électrons de celle de la chambre d'échantillon, à une pression plus élevée. La pression maximale de vapeur d'eau était 665 Pa (5 torr), et l'eau liquide a été maintenue par un refroidissement de la chambre et un réservoir d'eau glacé autour de l'échantillon. Un détecteur à l'état solide, d'électrons rétrodiffusés (ESB) a été utilisé, avec une résolution raisonnable allant jusqu'à un grossissement de 2000x. La présence du système d'ouverture avait réduit le taux de balayage du faisceau d'électrons ainsi que le champ de vision était limité, et le minimum était un grossissement de 100x (Robinson, 1996).

À cette époque, l'objectif était l'observation des spécimens biologiques, sans recours à la préparation. Il avait d'ailleurs observé que l'imagerie d'objets non isolants à des pressions au-dessus de ~ 10 Pa, semble réduire les effets de charges. L'explication se concentre sur l'idée que le film d'eau liquide a été responsable de l'octroi de cette conductivité. Bien sûr, cela ne pouvait pas expliquer pourquoi l'imagerie avec des gaz autres que l'eau a un effet similaire.

Moncrieff et al. (1978) avaient proposé que les collisions entre les électrons et les molécules de gaz, entraînent la production d'ions positifs (voir Von Engel, 1965), et leurs attractions vers la charge négative de l'échantillon, qui était le mécanisme observé de la neutralisation de la charge excédentaire (références citées dans [1]).

Moncrieff et ses collègues de travail ont calculé la valeur et les effets de la diffusion des électrons primaires par l'azote (Moncrieff et al. 1979 dans [1]). Une conclusion importante de ce travail est que, bien que certains électrons primaires étaient diffusés quelque dizaines de milliers de microns loin de leur trajectoire initiale, les électrons formant la sonde du faisceau ont maintenu le même diamètre dans la zone d'impact que celui constitué en vide poussé. Cependant, la diffusion des électrons réduit le courant total de la sonde, tout en ajoutant une composante uniforme au bruit de fond.

En 1978, Robinson a commencé à commercialiser cette nouvelle technologie avec son entreprise ETP SemraPty Ltd, avec la fabrication d'un dispositif appelé « environmental cell modification » et, plus tard appelée « charge-free anti-contamination system » (SCFA). Ils étaient pour la plupart vendus au Japon, via Akashi / ISI SEM, et avait une limite de pression de 266 Pa (2 torr). En 1980, Akashi / ISI a intégré le SCFA et lancé WET SEM.

En fin de compte, Robinson et ses collaborateurs ont travaillé à des températures et des pressions physiologiques. L'observation de l'eau liquide à la température du corps ($\sim 37^\circ\text{C}$) nécessite une pression de vapeur d'eau au-dessus de 6,65 kPa (50 torr) et d'une distance de travail ne dépassant pas 0,5 mm. Comme il devient physiquement difficile ou impossible de travailler avec un spécimen hydraté, aussi proche du système d'ouverture (PLA), ces critères définissent la limite supérieure de la pression. Maintenant, afin de maintenir la différence de pression entre deux zones séparées par une seule PLA, pour une chambre à une pression de 6,65 kPa, la taille d'ouverture devrait être ramenée à ~ 13 μm (Robinson, 1996 dans [1]). Il en résulte une très grande restriction du champ de vision. Par conséquent, pour améliorer la situation, Danilatos et Robinson (1979) ont introduit deux systèmes d'ouvertures (2 PLA) avec trois zones de pompage différentiels. Au même temps, Shah et de Beckett (1979) (dans [1]) avaient obtenus des résultats

similaires au Royaume-Uni, en utilisant l'acronyme MEATSEM (moistenvironmentambient-temperature SEM), et après une année Neal et Mills (1980) (dans [1]) ont construit le même prototype en utilisant un système Stereoscan Mk II de Cambridge.

Les étapes importantes qui ont suivi, ont eu lieu dans les années 1980, lorsque Danilatos, travaillait avec Electroscan (microscope électronique à balayage environnementale). L'ESEM avait une limite de pression de 2,66 kPa (20 torr) avec un détecteur d'électrons secondaires (SE) intégré qui pourrait être utilisé dans un milieu gazeux, en utilisant l'ionisation par cascade d'électrons secondaires (Danilatos 1990b dans [1]).

Dans les années 1990, d'autres instruments commençaient à être disponibles. Il s'agit du faible vide, (LVSEM, JEOL); naturel SEM (NSEM, Hitachi); SEM à environnement contrôlé (ECO SEM, AmrayInc) et le EnVac (Gresham Camscan).

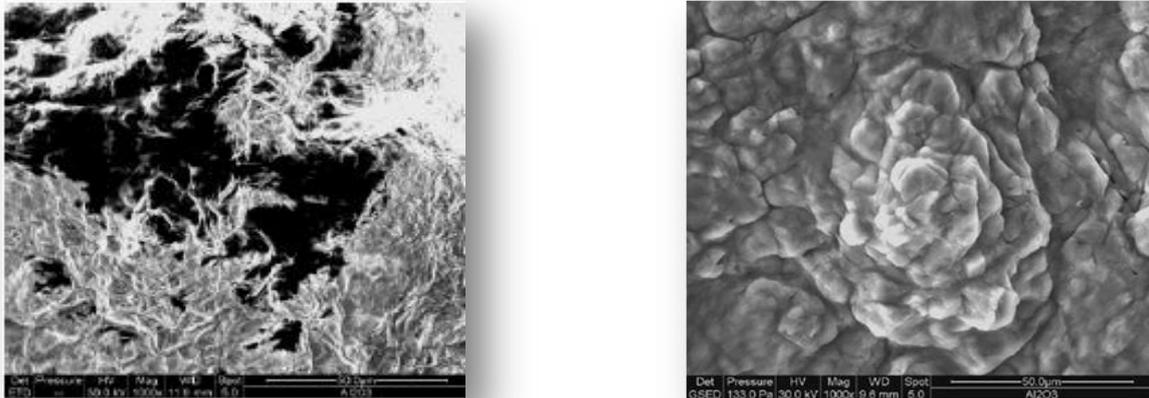
En 1995, les sociétés de haute technologie de Carl Zeiss et Leica ont mis en commun leurs ressources dans le domaine de la microscopie électronique, LEO Microscopie Electronique Ltd, et ont introduit le SEM à pression variable (VPSEM). Le VPSEM devient alors incorporé dans les produits Carl Zeiss SMT en 2001. D'autre part, et, en 1996, le SEM à pression contrôlé, CPSEM, a été présenté par Philips Electron Optics. Au cours de cette même année, Philips a acquis Electroscan et son groupe ESEM technology, et par la suite fusionné avec le FEI, qui est connue sous le nom de FEI Company en 2002 [1].

III.2. Définition :

Le microscope électronique à balayage à pression variable (VPSEM) est un microscope qui permet de travailler avec un environnement gazeux dans la chambre de l'échantillon. Ceci permet l'observation de n'importe quel échantillon, humide ou sec, conducteur ou isolant. L'innovation technologique consiste à isoler l'enceinte où se trouve l'échantillon de la colonne optique et d'introduire un gaz dans cette enceinte (chambre d'analyse). Lors du passage du faisceau d'électrons primaires issu de la colonne optique, à travers la masse gazeuse, la collision des électrons avec les molécules ou les atomes du gaz produit des ions positifs qui viennent annihiler les charges négatives présentes en surface.

Les électrons issus de l'interaction électron matière sont ensuite collectés pour permettre l'observation de l'échantillon. On peut dans ces conditions, choisir de travailler avec des tensions d'accélération plus élevées pour obtenir de bonnes résolutions. En analyse X, la détection des photons est alors possible. L'amélioration de la qualité de l'image est bien illustrée par la figure

I.1, où un même échantillon d' AlO_2 est examiné dans un microscope environnemental (les différents types de microscopes travaillant sous pression de gaz seront vus plus bas dans ce paragraphe) avec la même tension accélératrice de 15kV, et la même distance de travail de 12mm, sous vide et sous pression d'oxygène.



(a)

(b)

Figure I.4 : Comparaison de deux images d'un échantillon d' AlO_2 obtenues [5] :

(a) : sous vide à 10^{-3}Pa

(b) : sous pression de O_2 à 300Pa

Le VPSEM peut être utilisé avec tout type de canon et différents types de détection et peut, par conséquent, être appliqué aux études morphologiques et microanalyse. Il a ouvert plusieurs nouveaux chemins d'observation des échantillons et des phénomènes qui n'étaient pas permis avec le microscope électronique à balayage conventionnel. En contrôlant l'interaction signal-gaz, on peut, en outre étudier les réactions chimiques dans le solide, dans le liquide et dans la phase gazeuse.

Quelques exemples d'utilisation du VPSEM qui sont en relation avec la chimie des surfaces[6] :

- L'étude des corrosions des aciers inoxydables où les différents produits formés peuvent être contrôlés et analysés in situ avant et après formation.
- La morphologie de l'acide nitrique et des films de glace a été examinée pour simuler des surfaces des nuages de la stratosphère dans le but d'obtenir une base de données sur les solubilités et les vitesses de réaction hétérogènes].

- Etude de la bio corrosion de matériaux par observation et microanalyse.

III.3. Les différents types :

Le microscope électronique à balayage à pression variable (VPSEM) comme défini précédemment englobe différents types de microscopes qui sont utilisés pour des utilisations bien précises avec des gammes de pression et des modes de détections bien définis. On peut citer parmi ces microscopes [7].

1- le VPSEM (Variable Pressure SEM), qui englobe les VPSEM qui fonctionnent avec une gamme de pression comprise entre (10^{-4} et 300 Pa). Parmi ces microscopes on peut citer:

- le NSEM (Naturel Scanning Electron Microscope) qui fonctionne avec une gamme de pression qui varie entre 1 et 300 Pa.
- le CPSEM (Controlled Pressur Scanning Electron Microscope) dont, la gamme de pression varie de 0.02 torr à 2 torr .
- Le LVSE (Low Vacuum SEM) fonctionnant à des pressions autour du Torr.

2- l'ESEM (Environmental Scanning Electron Microscope) qui comprend les VPSEM qui fonctionnent avec une gamme de pression comprise entre 10^{-4} jusqu'à des pressions de 640 Pa, et pour certains auteurs jusqu'à 50 torrs [8]. Souvent, cette appellation est réservée aux microscopes fonctionnant sous pression de vapeur d'eau

III.4. Principe de fonctionnement :

Nous décrivons dans ce qui suit le principe physique de fonctionnement, La figure I.5 résume les interactions essentielles conduisant à l'ionisation du gaz dans la chambre d'analyse.

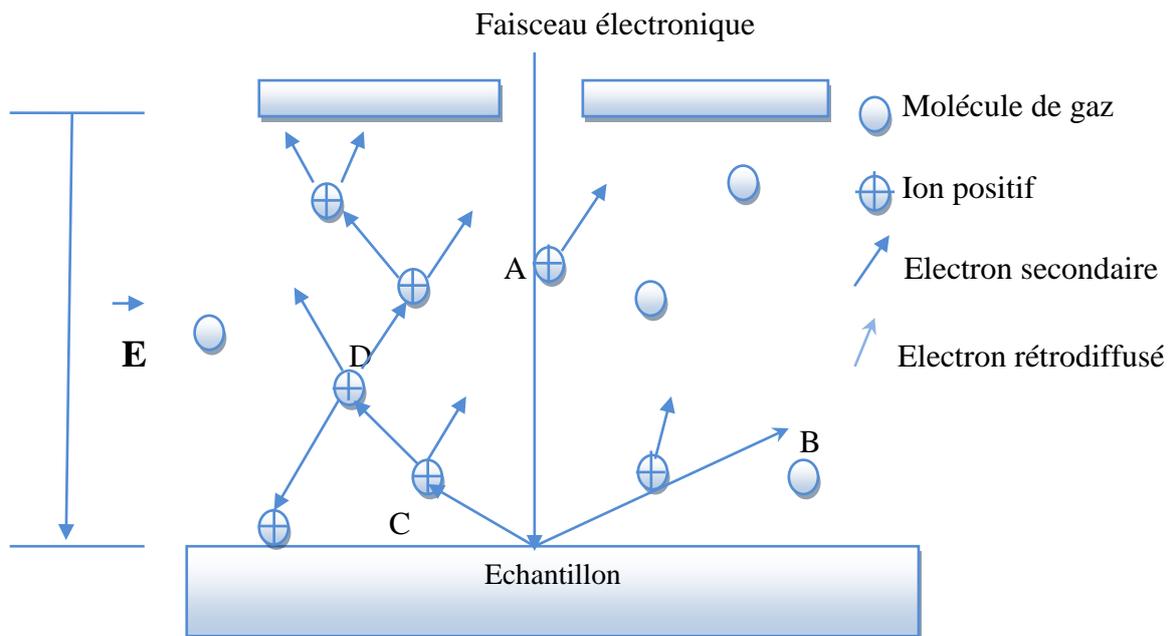


Figure I. 5: Les différentes collisions ionisantes dans un gaz au-dessus de la surface d'un échantillon non conducteur. Les collisions :

- A: ionisation due au faisceau primaire,
- B: ionisation due aux électrons rétrodiffusés,
- C: ionisation due aux électrons secondaires,
- D: ionisation due au champ électrique.

Il convient de noter que malgré que certains auteurs [9] fassent intervenir un terme dû aux électrons secondaires dans le courant d'ionisation, l'événement C de la figure I.4 demeure hypothétique, l'énergie des électrons secondaires n'étant probablement pas suffisante pour produire l'ionisation des molécules ou atomes gazeux. Les différentes interactions susceptibles de se produire dans la chambre d'analyse seront décrites plus loin dans ce chapitre.

A l'instar des SEM conventionnels, le VPSEM comprend une région qui doit être maintenue sous un vide secondaire (moins de 10^{-2} Pa). De plus, de part sa définition, le VPSEM doit comporter une région de haute pression (jusqu'à plusieurs centaines de Pa). Ces deux régions sont séparées par un système d'ouvertures (PLA : "Pressure limiting aperture"). Le système de base comprend

deux ouvertures notées PLA1 et PLA2 différentiel à deux étages). La région comprise entre PLA1 et PLA2 est un (pompage zone intermédiaire où la pression n'est pas uniforme (figure I.6).

Le VPSEM comprend donc une colonne d'électrons, un système de détection, et un système de pompage. Le fonctionnement est optimisé lorsque le gradient de pression le long du parcours du faisceau primaire permet le transfert du flux d'électrons avec un minimum de perte due aux collisions avec les particules de gaz, sans pour autant influencer sur le diamètre de la sonde ni compromettre l'efficacité des différents détecteurs.

Le développement des VPSEM s'est effectué en deux étapes:

- Conception de l'optique électronique et transfert du faisceau d'électron dû à la dynamique des gaz.
- Systèmes de détection.

La première modification apportée au VPSEM par rapport au SEM est l'incorporation d'un système de pompage différentiel montré sur la figure I.7. Un système de pompage à deux étages est le minimum requis pour le fonctionnement de tout VPSEM. Un tel système permet d'obtenir un vide dans la colonne optique, qui autorise l'utilisation de filaments en tungstène. Mais, l'utilisation de filaments en LaB_6 ou de canons à émission de champ, requière un système plus sophistiqué à plusieurs étages.

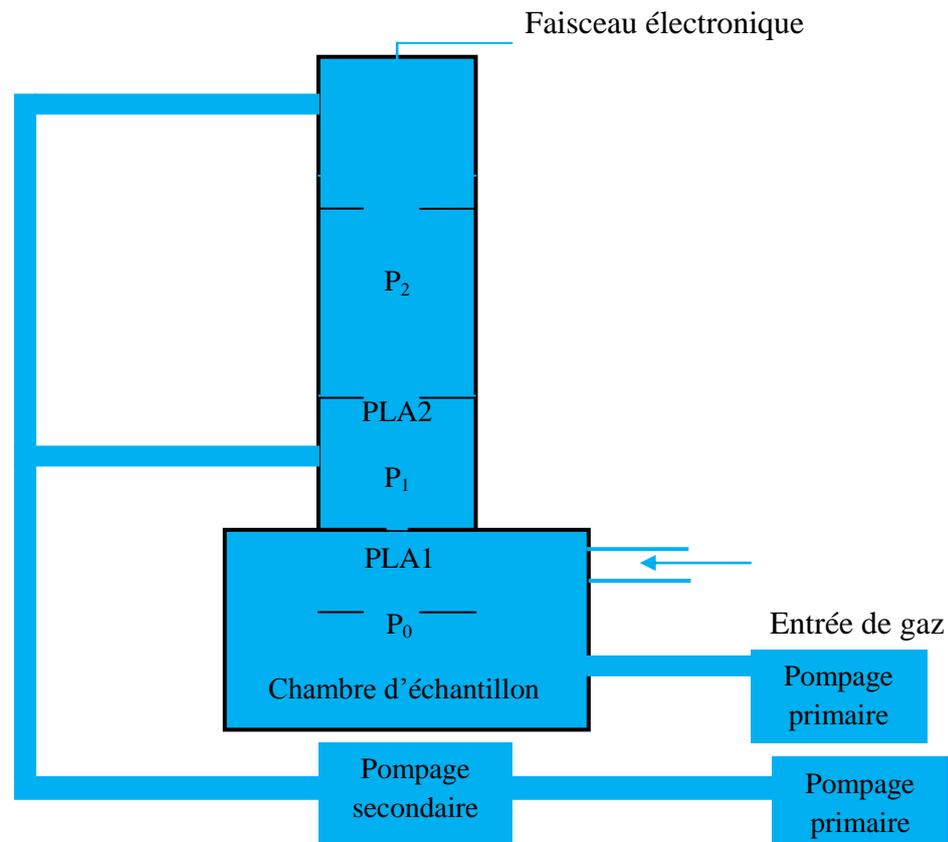


Figure I. 6 : Système de pompage différentiel à deux étages

Il convient de noter cependant que les étages supplémentaires introduits ne permettent pas de diminuer le taux de perte d'électrons de façon significative. C'est pour cette raison que nous nous sommes limités à la description du système de base sur lequel est basée la formulation des équations décrivant le transfert du faisceau d'électrons que nous verrons au chapitre suivant.

III.5. Les différentes interactions dans le VPSEM :

Si on fait passer un faisceau d'électrons à travers un échantillon, alors il y a plusieurs réactions qui se produisent entre le faisceau d'électrons primaires et l'échantillon, et leur étude constitue l'aspect fondamental de la microscopie électronique. Ainsi l'électron primaire subit une collision élastique ou inélastique dans l'échantillon qui produit la génération d'électrons secondaires (SE), ou d'électrons rétrodiffusés (BSE), rayons X, etc. En entourant l'échantillon par le gaz, ces différentes interactions sont multipliées.

On peut distinguer quatre entités qui interagissent les unes avec les autres : faisceau, gaz, échantillon, signaux. Par conséquent, les multiples réactions qui ont lieu dans le VPSEM peuvent être classées en 6 catégories [10]:

- Interaction faisceau primaire-gaz
- Interaction faisceau primaire-échantillon
- Interaction échantillon-signal
- Interaction signal-gaz
- Interaction gaz-échantillon
- Interaction faisceau primaire-signal

En outre, ces interactions ne sont pas indépendantes les unes des autres, et ne se produisent pas toutes exclusivement dans la chambre d'analyse, certaines pouvant avoir lieu dans la colonne optique. Dans ce qui suit, nous allons procéder à une description succincte de ces interactions.

III.5.1 Interaction du faisceau avec le gaz :

Après interaction entre le faisceau d'électrons primaire et le gaz les événements suivants vont se produire :

- a) Diffusion du faisceau.
- b) Génération de signaux tels que SE, BSE, rayons X, cathodoluminescence (CL).
- c) Modification du gaz par création de cations ou d'anions, dissociation des molécules et excitation des molécules et des atomes.

La diffusion du faisceau incident constitue l'essentiel de notre étude. La maîtrise de ce phénomène est décisive pour les performances globales du VPSEM puisque les caractéristiques fondamentales du microscope (résolution, contraste) sont à présent conditionnées par la présence du gaz.

La génération des différents signaux dans le gaz doit être examinée en conjonction avec les signaux produits par l'interaction de faisceau modifié avec l'échantillon, ces derniers signaux constituant les outils fins d'analyse de l'échantillon.

L'altération du gaz initialement neutre doit également être étudiée puisque cette altération va inévitablement influencer sur le rôle du gaz comme milieu environnemental. En effet, le but initial de l'introduction du gaz dans la chambre est de garantir la pression nécessaire pour garder intactes certaines propriétés de l'échantillon (par exemple, maintenir une phase liquide ou

permettre une certaine réaction chimique). Il est donc primordial de connaître à quel degré le gaz rempli sa fonction d'agent environnemental.

III.5.2 Interaction faisceau-échantillon

Après l'interaction du faisceau d'électrons avec l'échantillon, il se produit les événements suivants :

- a) Diffusion du faisceau, ce qui détermine le volume d'interaction (poire d'interaction).
- b) Génération des différents signaux.
- c) Modification de la nature de l'échantillon (sous l'effet de l'irradiation par le faisceau).

L'interaction du faisceau avec l'échantillon a constitué l'objectif primordial des études de la microscopie électronique. Cette interaction demeure, bien sûr, essentielle dans le VPSEM, mais doit être examinée à la lumière des nouvelles données inhérentes à la présence du gaz.

III.5.3 Interaction échantillon-signal

Ce type d'interaction produit essentiellement une modification des signaux par l'échantillon. Certains signaux sont modifiés par la surface chargée de l'échantillon tel que les électrons secondaires (SE). Ces interactions sont connues sous le nom de "contraste de trajectoire". Les effets produits par les signaux sur l'échantillon sont de plus faible importance parce que ces signaux issus de l'échantillon ont une faible chance de revenir interagir avec celui-ci.

III.5.4 Interaction signal-gaz

Cette interaction conduit à une modification mutuelle du signal et du gaz. L'étude de cette interaction s'inscrit dans un large domaine de la physique des particules et de la chimie des radiations (physique des plasmas, ionisation des gaz, physique nucléaire etc...). L'effet du gaz sur un signal donné et vice-versa peut être considéré comme une première étape dans la chaîne conduisant à la détection du signal. L'idée de mettre à profit la présence du gaz comme moyen de détection des signaux en même temps que son rôle de milieu environnemental a été introduite par Danilatos[11, 12]. Ceci implique une nouvelle technologie pour les détecteurs qui doivent être capables de capter les signaux ainsi modifiés.

La modification du gaz par le signal est comparable à celle causée par le faisceau primaire, excepté le fait que l'interaction concerne une plus large zone dans le gaz. En outre, les

distributions spatiales du produit de l'interaction sont différentes dans les deux cas, ce qui permet de différencier les deux effets.

III.5.6 Interaction gaz-échantillon

Les interactions du gaz avec l'échantillon sont celles généralement étudiés hors du cadre de la microscopie électronique. Cependant, les produits des interactions faisceau-gaz et signal-gaz, peuvent modifier les réactions ou en générer de nouvelles, ce qui n'est pas sans conséquence sur les performances générales du VPSEM.

III.5.7 Interaction faisceau primaire-signal

Cette dernière interaction issue de la combinaison des 4 entités caractérisant le fonctionnement du VPSEM n'est mentionné qu'à titre indicatif. Son étude n'a pas été initiée dans la littérature. Le faisceau peut cependant affecter indirectement les signaux par le biais de son interaction avec le gaz (bruit de fond). D'autre part, on ne connaît pas de quelle manière les signaux issus de l'échantillon peuvent indirectement altérer le faisceau à travers leurs interactions avec le gaz.

Dans ce qui suit, nous nous intéresserons exclusivement au premier type d'interaction électrons primaires-gaz et L'interaction du faisceau avec l'échantillon qui est exploité dans ce travail. Les autres interactions sont négligées dans un souci de simplicité. Une étude complète devrait tenir compte de toutes les interactions susceptibles d'influer sur le faisceau primaire et sur les performances du VPSEM en général.

Le développement récent des microscopies électronique à balayage et à haute pression a ouvert un champ nouveau pour l'observation d'échantillon isolant sans préparation ou d'échantillon biologique ou fragile thermiquement.

III.6 La détection :

Dans le mode vide poussé, les détecteurs d'électrons standards sont : détecteurs d'électrons secondaire de type Everhartthornley ; et d'électrons rétrodiffusée (détecteur à semi conducteur (diode) ; (détecteur à scintillateur).

Les conditions de haute pression rendent impossible l'utilisation du détecteur Everhartthornley , il faut utiliser d'autres stratégies de détection des électrons dans ces conditions.

Il convient de noter qu'il existe plusieurs approches différentes pour la détection du signal dans le VPSEM, souvent dépendantes du constructeur, pour des raisons historiques. Plusieurs d'entre elles sont résumées ci-dessous, avec une petite sélection de la littérature décrivant la théorie et la pratique. Indépendamment du mode de la détection, le gaz environnant est au cœur de toutes ces méthodes :

- Détection du signal ionique via le courant induit d'échantillon (Danilatos 1989a ; Farley et Shah, 1991 ; Mohan et al. 1998 dans [13]).
- Collecte du signal d'électrons secondaires amplifié par le gaz (Danilatos, 1990a ; Thiel et al. 1997 ; Toth et al. 2006 dans [13]).
- Luminescence du gaz le signal photonique obtenu est amplifié par un photomultiplicateur (Danilatos, 1989b ; Morgan et Phillips, 2006 dans [13]).
- Utilisation d'un détecteur d'électrons secondaires conventionnel de type Everhart-Thornley, séparé physiquement de la haute pression régnant dans la chambre d'échantillon (Jacka et al 2003 ; Slowko 2006 dans [13]).

Parmi ces méthodes nous séparons ci-dessous les détecteurs à électrons secondaires et ceux à électrons rétrodiffusés

a) Le détecteur à électron rétrodiffusés (détecteur BSE) :

Robinson [14-15] a montré qu'il était possible d'éliminer les phénomènes de charges en introduisant une petite quantité de vapeur dans la chambre d'analyse et qu'il était possible d'obtenir une image d'échantillon isolant en utilisant les électrons rétrodiffusés. Pour cela, il a mis au point un détecteur d'électrons rétrodiffusés avec un grand angle de collection.

Le choix des électrons rétrodiffusés se justifie par leur grande énergie leur permettant de passer à travers le gaz.

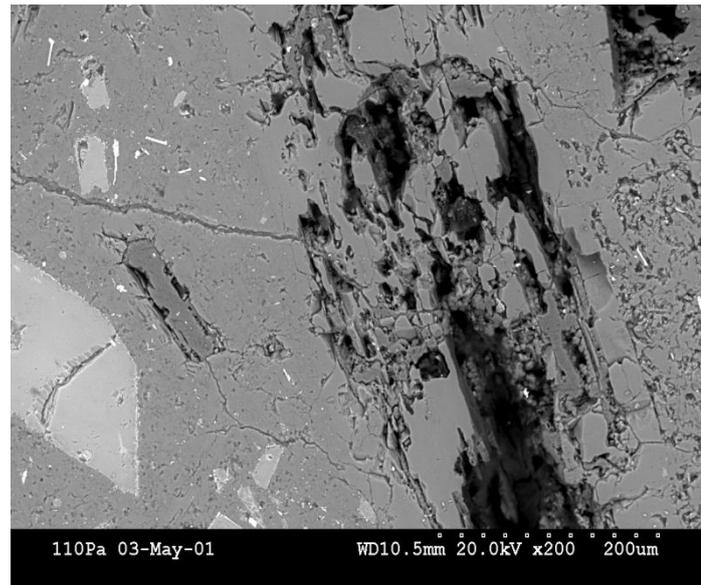


Figure I. 7: Image d'une pierre polie isolante en électrons rétrodiffusés à 110 Pa.

b) Le détecteur à amplification gazeuse :

Ce détecteur développé par Danilatos [16-17] utilise une capacité formée de deux lames parallèles qui sont séparées par le gaz. Celui-ci joue le rôle de milieu amplificateur et l'échantillon est mis au potentiel de la masse. Le faisceau électronique qui passe à travers l'électrode supérieure portée à un potentiel positif rencontre le gaz. Il se produit alors l'interaction gaz-électron. Des électrons secondaires et rétrodiffusés sont générés et sous l'action du champ électrique, ils sont attirés par l'électrode positive. S'ils sont suffisamment énergétiques, et comme le libre parcours moyen est très faible devant la distance entre les deux plaques, ils vont se multiplier en ionisant le gaz entraînant une amplification en cascade.

Les électrons produits dans le gaz sont appelés des électrons secondaires environnementaux et ils sont collectés par l'électrode positive. Les ions positifs générés durant le processus de collision sont attirés à la surface de l'échantillon et servent à éliminer l'excès de charge.

On distinguera plusieurs types de détecteurs correspondant aux différentes mesures qui peuvent être effectuées lorsqu'une électrode est polarisée est placée à proximité de l'échantillon

1. mesure du courant échantillon, dont la valeur dépend fortement du courant d'ions créés dans le processus d'avalanche.
2. mesure des électrons arrivant sur l'anode, fonction du courant d'électrons créés dans le processus d'avalanche.

3. mesure de l'intensité des photons émis lors de l'interaction électrons-gaz : ils sont également essentiellement dus aux électrons secondaires.

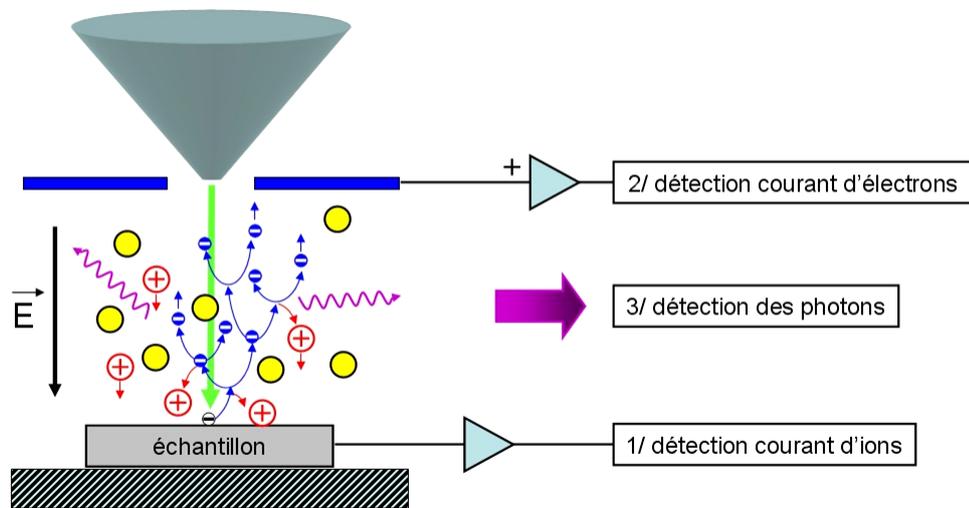


Figure I. 8 : Les différents signaux détectés résultants de l'amplification par avalanche dans le gaz résiduel.

Tous ces signaux détectés étant amplifiés par le phénomène d'avalanche dans le gaz, Le gain de types de détecteurs va être en fonction de la nature de gaz, de la pression P du gaz de la distance L et de la tension V appliquée entre l'échantillon et l'électrode.

c) Le rôle du gaz dans l'imagerie :

L'ionisation du gaz est très importante dans le MEB car les particules de gaz ionisées sont utilisées pour neutraliser la surface de l'échantillon pendant l'observation. L'efficacité de l'ionisation du gaz dépendra beaucoup de la nature du gaz utilisé, comme on peut le voir sur la figure I.9

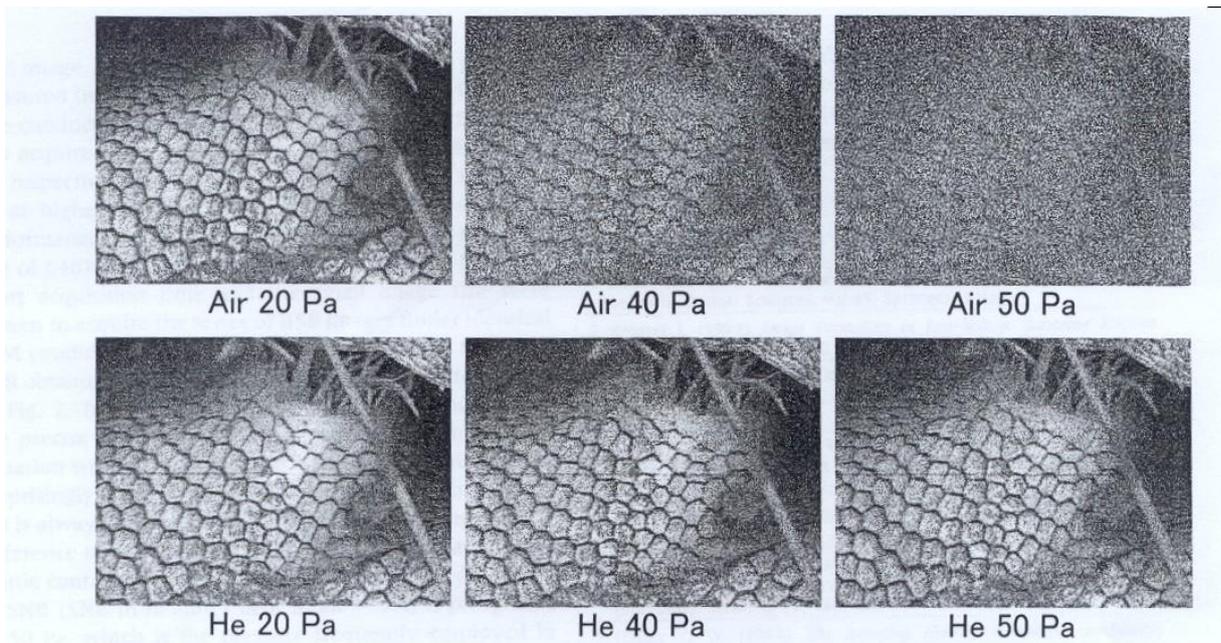


Figure I. 9 : Modification de la qualité de l'image en fonction de la nature du gaz [18]

Thiel [19] donne une courbe universelle du signal électronique établie avec différentes valeurs de distances de travail, de tensions appliquées et de pressions de la vapeur d'eau (figure 15) qui montre que l'amplification passe par un maximum pour une valeur de PL/V égale à $6.5 \text{ Pa}\cdot\text{mm}\cdot\text{V}^{-1}$.

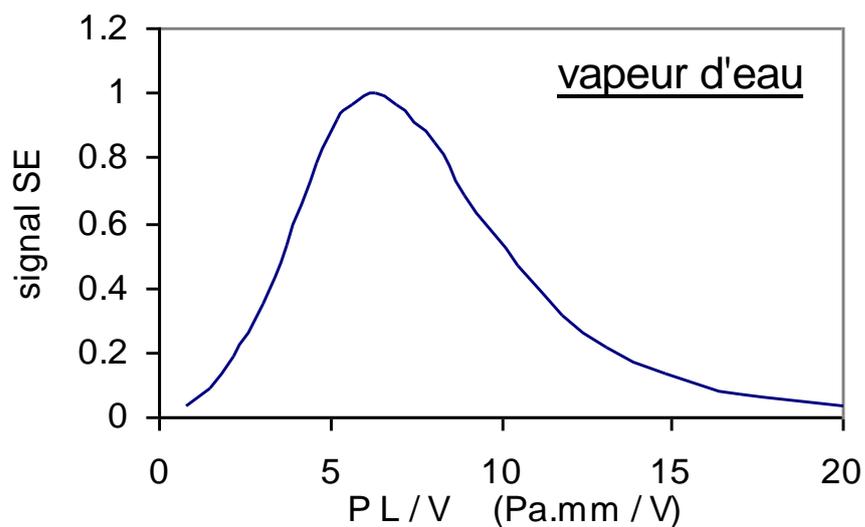


Figure I. 10 : Courbe universelle du signal électronique en fonction de PL/V pour la vapeur d'eau.

Chapitre I : la microscopie électronique à balayage à pression variable

La plupart des gaz présentent un pic d'amplification qui dépend de la nature du gaz, de la pression de gaz, de la tension de polarisation du détecteur et de la distance détecteur-échantillon. Il faut noter que la vapeur d'eau présente le meilleur d'amplification justifiant ainsi le choix de son utilisation dans la microscopie environnementale.

CHAPITRE II

INTERACTION ELECTRON-GAZ DANS LE VPSEM

I. INTRODUCTION

Nous nous intéresserons dans ce travail au devenir du faisceau d'électron élargi, une fois qu'il interagit avec la matière en présence de gaz dans la chambre d'analyse. Pour cette raison, nous consacrons ce chapitre à l'étude de l'interaction du faisceau d'électrons de la sonde avec le gaz dans la chambre d'analyse et à l'effet de cette interaction sur le transfert du faisceau d'électrons à travers la couche gazeuse et à la distribution spatiale des électrons (profil du faisceau). Il est en effet très important de connaître le comportement des électrons d'un faisceau traversant des distances courtes ou grandes dans un gaz et à une pression donnée. La connaissance de la distribution spatiale des électrons à toute profondeur de pénétration est également nécessaire puisque directement reliée au contraste et à la résolution de l'appareil. la deuxième partie.

II. DEFINITIONS ET EQUATIONS DE BASE

Les équations qui gouvernent le transfert du faisceau d'électrons de la zone où règne le vide poussé vers la zone soumise à la pression du gaz sont établies ci-après. Une perte assez significative des électrons a lieu dans la région entre PLA1 et PLA2, mais la plus grande perte a lieu dans la chambre de l'échantillon.

La fuite inévitable de gaz par PLA1 est automatiquement compensée grâce à une source externe par le biais d'une valve de contrôle. Cette micro-fuite étant relativement faible, on peut considérer la vitesse du gaz dans la chambre égale à zéro. En conséquence, la pression du gaz est constante à travers la chambre avec des gaz non sujets à la condensation (à la température ambiante).

La densité du gaz commence graduellement à diminuer à partir d'une distance qui est de l'ordre de grandeur du diamètre de l'ouverture de PLA1 au-dessous du PLA1, pour chuter brutalement immédiatement au-dessus de PLA1. Les propriétés complètes de l'écoulement sont très difficiles à déterminer et dépendent de la nature du gaz et des conditions initiales du gaz dans la chambre. Les propriétés du gaz dans la zone de transition sont encore plus difficiles à étudier

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

(l'écoulement subit continuellement des oscillations de régime). Jusqu'à présent, seule une simulation par la méthode de Monte-Carlo peut donner une bonne description des propriétés de l'écoulement du gaz.

La région de transition qui s'étend à partir de la pression P_0 de la chambre de l'échantillon jusqu'à la pression du vide P_1 au-dessus de PLA1, est schématiquement décrite dans le diagramme de la figure II. 1. Cette zone de transition commence par une zone de déplétion sur environ un diamètre D au-dessous du PLA1 et se termine au voisinage du plan appelé "Mach disk" qui est l'onde de choc créé par la collision entre les molécules du gaz sortant à une vitesse supersonique de PLA1 et les molécules en équilibre à la pression P_1 . Au-delà du Mach disk la pression redevient pratiquement uniforme.

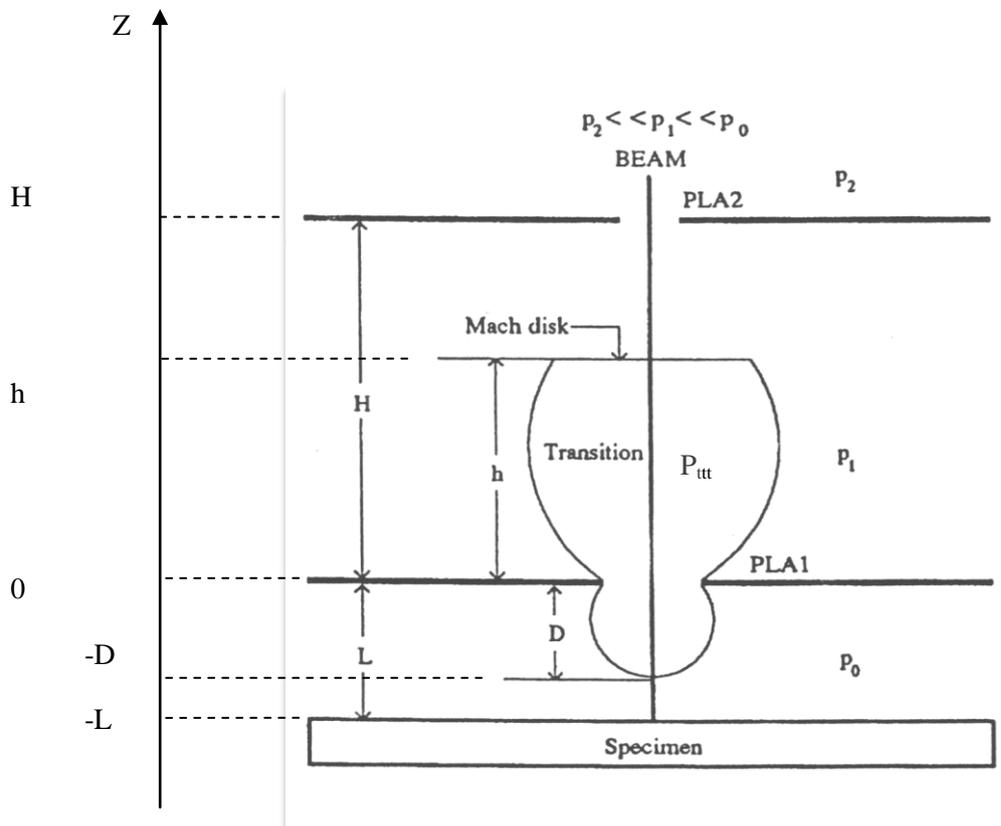


Figure II. 1 : Les différentes zones de concentration de gaz entre l'échantillon et PLA2

Ce schéma général contient trois zones de pression (P_0 , pression de transition P_t , P_1), mais le développement qui va suivre ne fait intervenir que les deux premières zones (P_0 et P_t), lorsque la pression dans la chambre est très grande, ou lorsque PLA1 est très large, ou lorsque la distance entre PLA1 et PLA2 est très petite. Lorsque seules ces deux zones sont présentes, Mach disk est remplacé par l'onde de choc créée par la collision des molécules avec la surface

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

de PLA2. Finalement, la pression au-dessus de PLA1 est quasiment égale à P_1 tel que $P_2 \ll P_1 \ll P_0$.

Si on note I_0 , l'intensité du courant dans le vide, l'intensité I du faisceau transmis sans subir de diffusion est donnée par :

$$\mathbf{I} = \mathbf{I}_0 e^{-m} \quad (\text{II.1})$$

Où m est le nombre moyen de diffusion par électron. Si ce nombre n'est pas trop élevé, on peut assimiler le parcours réel dl de l'électron dans le gaz au parcours projeté dz . Ce point sera détaillé plus loin lors de l'établissement des équations décrivant le profil du faisceau dans la chambre d'analyse (paragraphe III. 1). Sous cette condition, m s'écrit sous la forme suivante :

$$\mathbf{m} = \sigma_T \int \mathbf{n}(Z) dz \quad (\text{II.2})$$

Où σ_T est la section efficace totale de diffusion des particules du gaz utilisé et $n(z)$ est la concentration du gaz au point de coordonnée z de l'axe (fig. II. 1).

Puisque le faisceau passe par les trois zones de pression précédemment décrites, on peut décomposer m en trois termes correspondant aux trois zones :

$$\mathbf{m} = \mathbf{m}_0 + \mathbf{m}_t + \mathbf{m}_1 \quad (\text{II.3})$$

Ce qui donne, en utilisant l'équation (II. 2) :

$$\mathbf{m} = \sigma_T n_0 (L - D) + \sigma_T \int_{-D}^h n(z) dz + \sigma_T n_1 (H - h) \quad (\text{II.4})$$

Où les différents paramètres sont définis dans la figure II. 1. Le calcul du premier terme et du dernier terme est immédiat; par contre le deuxième terme nécessite la connaissance de la variation de la concentration du gaz le long de la zone de transition. Pour tout écoulement similaire, l'intégrale peut être normalisée en fonction de la pression de la chambre et du diamètre D de l'ouverture pour donner un terme sans dimension qui est l'épaisseur massique ξ à partir duquel, on peut calculer m_t :

$$\mathbf{m}_t = \sigma_T n_0 D \int_{-D}^h \frac{n(z) dz}{n_0 D} = \sigma_T n_0 D \xi \quad (\text{II.5})$$

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

Pour un gaz idéal la concentration est proportionnelle à la pression de la chambre de l'échantillon

$$n_0 = \frac{P_0}{kT} \quad (\text{II.6})$$

et l'équation (II. 4) devient :

$$m = \frac{\sigma_T}{kT} [P_0(L - D) + P_0D\xi + P_1(H - h)] \quad \text{Avec } L > D \text{ et } H > h \quad (\text{II.7})$$

L'équation (II. 7) relie les propriétés du gaz (pression, température et écoulement du gaz), la distance de travail L, la dimension et le positionnement de l'ouverture aux caractéristiques de diffusion du gaz.

La pression peut varier du vide poussé à des pressions de l'ordre de la pression atmosphérique, possibilité confirmée en pratique. Cependant, lorsqu'on fait varier la pression, les autres paramètres varient en conséquence.

Selon les conditions de travail dans le VPSEM, la relation générale (II. 7) peut être simplifiée de différentes manières. Puisque la pression P1 peut être appliquée avec une très faible intensité, on obtient en négligeant le troisième terme:

$$m = \frac{\sigma_T P_0}{kT} [L + (\xi - 1)D] \quad \text{Avec } L > D \quad (\text{II. 8})$$

On peut enfin simplifier l'expression précédente si la distance de travail L est plus grande que le diamètre D de l'ouverture PLA1 :

$$m = \frac{\sigma_T P_0 L}{kT} \quad \text{Avec } L \gg D \quad (\text{II. 9})$$

L'expression précédente est la plus simple et la plus utilisée dans la littérature et indique que m est proportionnel à la pression et à la distance de travail.

Dans ce travail, nous nous sommes limités à une étude du parcours du faisceau incident entre PLA1 et l'échantillon (sur la distance L) tout en négligeant l'effet de la zone de transition sous PLA1.

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

L'équation (II. 7) peut être considérée comme la relation générale et fondamentale caractérisant le VPSEM. Dans la plupart des cas, c'est cependant l'équation (II. 9) qui est utilisée.

Il est important de déterminer quelle est la valeur maximale de m qui permet d'obtenir une image ou de réaliser une microanalyse de manière satisfaisante. On remarque d'après la relation (II. 1), que pour $m = 3$, seule une fraction égale à 5% du faisceau primaire survit sans déviation. On peut considérer que cette valeur est la valeur maximale tolérée de m pour un bon fonctionnement du VPSEM. Le régime de diffusion caractérisé par la condition $m < 3$ est appelé régime "oligo-scattering" (oligo-diffusion). D'autres régimes caractérisant l'interaction électron-gaz sont définis, mais ne concernent pas directement le domaine d'utilisation du VPSEM. Ainsi, si on note m_e , le nombre moyen de collisions élastiques par électron, on définit le régime "plural scattering" (diffusion plurielle) par $1 < m_e < 25$ et le régime "multiple scattering" par $m_e > 25$ [5].

Un cas très important, est celui dit du "single scattering" où plus de 95% des électrons primaires subissent au plus une seule collision. Ce régime est caractérisé par la condition [10]

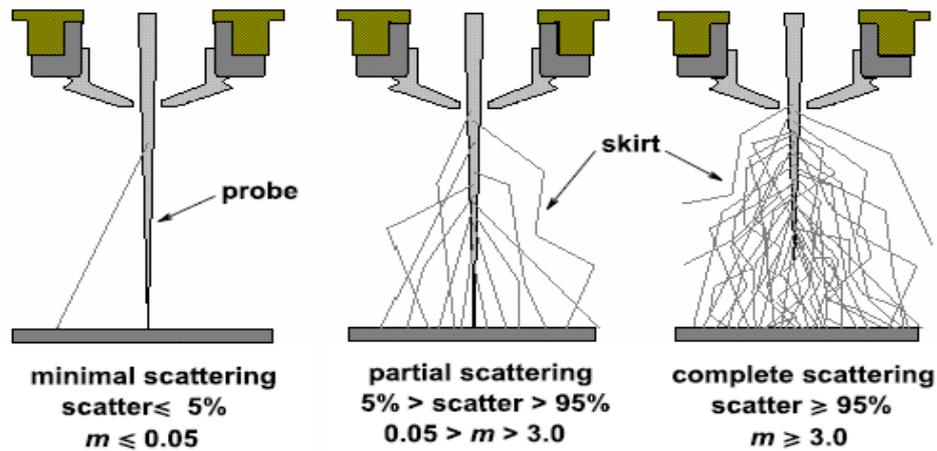
$$m < 0,355 \quad \text{(II. 10)}$$

En définitive, notons que les applications liées au fonctionnement du VPSEM sont concernées par les deux régimes **oligo-scattering et single scattering**. Ces deux régimes peuvent être regroupés sous le vocable de «**partial scattering**» ou diffusion partielle. Le régime correspondant aux fortes valeurs de m ($m > 3$) sera défini sous le terme de «**complete scattering**» ou diffusion totale qui ne convient pas pour un bon fonctionnement d'un VPSEM. Notons enfin qu'un SEM conventionnel fonctionne sous le régime de diffusion minimale ou «**minimal scattering**».

Notons cependant que le domaine de valeurs de m du régime oligo englobe celui du régime single. Afin de clarifier la situation, nous allons faire la distinction entre ces domaines :

- Minimal scattering : $m < 0,05$
 - Single scattering : $0,05 < m < 0,355$
 - Oligo-scattering : $0,355 < m < 3$
 - Complete scattering : $m > 3$
- } Partial Scattering

Ces régimes sont bien décrits par la figure II.2 ci-dessous.



$$5\% < \text{scatter} < 95\%$$

$$0.05 < m < 3.0$$

Figure II. 2 : Diagramme schématisant les régimes de diffusion pour un faisceau d'électrons traversant un milieu gazeux. [20]

III. PROFIL DU FAISCEAU ELECTRONIQUE

III. 1. Formulation du problème :

La distribution électronique du faisceau diffusé à la distance L au-dessous de PLA1 dans le vide est modifiée quand le gaz est introduit dans la chambre d'analyse. Il est d'une importance fondamentale de connaître en détail la nouvelle distribution électronique qui résulte de la collision des électrons avec les molécules ou les atomes du gaz. La collision se produit quand l'électron traverse une surface caractéristique qui entoure l'atome, connue sous le nom de section efficace totale de diffusion σ_T .

Après chaque collision l'électron va perdre une certaine énergie ΔE et va être diffusé d'un angle θ par rapport à sa direction initiale. Par rapport à la direction initiale du faisceau et à son énergie (de 1 à quelques dizaines de keV), les angles moyens de diffusion et les énergies moyennes dissipées à chaque collision (qui sont de l'ordre de quelques eV) sont très faibles. Si de plus, le nombre moyen de collision par électron m n'est pas grand, le déplacement moyen

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

total de l'électron par rapport à la ligne de propagation dû aux déviations successives est négligeable devant la distance totale parcourue. On peut alors établir une égalité entre la distance parcourue et l'épaisseur de la masse gazeuse (ici, la distance de travail L , entre PLA1 et l'échantillon) à travers laquelle passe le faisceau. Dans ces conditions, le nombre moyen de collision par électron est décrit par la formule :

$$m = \sigma_T nL \quad (\text{II. 11})$$

Où n est la concentration des particules dans la chambre d'analyse.

Le libre parcourt moyen de l'électron (λ_e) qui est la distance moyenne entre deux chocs successifs est donnée par la formule suivante [21]:

$$\lambda_e = \frac{1}{\sigma_T n} = \frac{L}{m} = \frac{1.38.10^{-23}T}{\sigma_T P} \quad (\text{II. 12})$$

Dans le cas où le gaz est suffisamment dilué ou lorsque la distance parcourue L est faible de sorte que l'électron ne subit presque jamais plus d'une seule collision, on peut aisément montrer [21] que la probabilité qu'un électron rentre en collision est égale au nombre moyen de collision.

Pour étudier le comportement du faisceau d'électrons après qu'il rentre en collision avec les atomes du gaz, on doit calculer la probabilité de distribution $V_1(r)$, telle que $V_1(r)2\pi r\delta r$ soit la probabilité qu'un électron se déplaçant initialement sur l'axe d'un cercle de rayon r , soit dévié à l'intérieur de l'anneau élémentaire de surface $2\pi r\delta r$ dans le plan situé à la distance L de PLA1 (fig. II. 2).

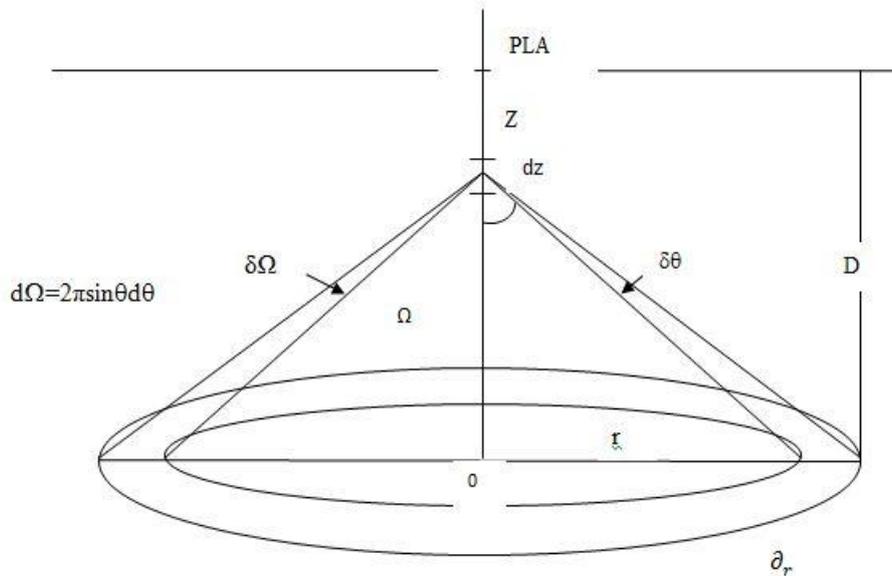


Figure II. 3 : Un électron se déplaçant le long de l'axe de PLA1 subit une collision entre z et $Z+dz$ avec un angle entre θ et $d\theta$ et rencontre un plan situé à une distance L de PLA1 dans un anneau d'épaisseur δr .

Deux cas sont à envisager :

1/ **L'électron ne subit pas plus d'une collision** : Dans ce cas, le calcul donne [21] :

$$V_1(r) = n \exp(-\sigma_T n L) \int_{\theta_r}^{\frac{\pi}{2}} \exp\left(\frac{r}{\tan \theta}\right) \frac{d\sigma}{d\Omega} \frac{\cos \theta}{r} d\theta \quad (\text{II. 13})$$

Où $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ est la section efficace différentielle qui peut être mesurée expérimentalement ou prédite théoriquement.

Signalons le fait important que l'intégrale (II. 13) exige de déterminer la section efficace différentielle $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ en fonction de l'angle de diffusion.

L'hypothèse qu'un électron ne subit pas plus d'une collision n'est vraie que pour des très basses pressions. Cependant, pour les pressions utilisées dans les VPSEM, on a $m=1$ et souvent $m=2$ ou 3 suivant le choix des paramètres d'utilisation. Dans le cas le plus fréquent où $m=1$, 37% des électrons ne subissent aucune collision; 37% subissent 1 collision 18% subissent 2 collisions;

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

6% subissent 3 collisions, 1.5% subissent 4 collisions etc. Par suite, on n'est pas certain que la prédiction de la probabilité de distribution soit toujours donnée par l'équation (II. 13).

2/ L'électron subit plus d'une collision :

La probabilité de distribution $V(r)$ pour la diffusion multiple de l'électron a été publiée par Jost et Kesler (1963) [22] qui se sont basés sur la théorie de la distribution angulaire des électrons diffusés dans un milieu [23]. Avec un nombre moyen de collision m quelconque, cette probabilité de distribution est :

$$V(r) = \frac{1}{2\pi_0} \int_0^{\infty} J_0(rt) \times \{ \exp[-m(1-h(t))] - \exp(-m) \} t dt \quad (\text{II. 14})$$

Où

$$h(t) = \frac{2\pi}{\sigma_T L} \int_0^{+\infty} \left\{ \int_L^0 \frac{d\sigma}{d\Omega} \left(\frac{r}{L-z} \right) \frac{dz}{(L-z)^2} \right\} J_0(rt) r dr$$

et $J_0(rt)$ est la fonction de Bessel d'ordre zéro.

L'équation générale précédente (II. 14) n'est valable que pour des angles de diffusion

$\theta = \frac{r}{L-z}$ très faibles, ce qui est en accord avec les angles de diffusions qui se produisent dans le VPSEM parce que la plupart des électrons sont diffusés dans un cône de demi-angle 10^{-2} ou 10^{-1} rad. Cependant, il y a 2 difficultés majeures pour résoudre cette équation :

1. On doit connaître la section efficace différentielle pour différents gaz pour des énergies variant de 5 à 50 keV. Cela n'est pas facile pour les gaz utilisés tel que N_2 , O_2 , H_2O , puisque les données expérimentales ou théoriques font souvent défaut.
2. La seconde difficulté est la résolution de l'intégrale triple de l'équation (II. 14) parce que les fonctions à intégrer sont des fonctions qui oscillent avec des fréquences et des amplitudes variables, et l'intégration numérique demande un grand temps de calcul.

Ces difficultés peuvent être surmontées en ayant recours à des calculs numériques de type Monte-Carlo. Cette méthode a été plus utilisée pour simuler les trajectoires des électrons dans

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

des cibles de nature solide, mais pour les gaz, cette méthode a été peu exploitée, excepté quelques logiciels commerciaux de simulation.

Afin de résoudre le problème soit analytiquement soit numériquement, nous avons besoin à la fois de la section efficace différentielle et de la section efficace totale. Ces sections efficaces englobent différentes réactions telles que l'ionisation, excitation, dissociation, rotation des molécules, vibration, etc. chaque réaction j est caractérisée par une section efficace σ_j , telle que:

$$\sigma_T = \sum_j \sigma_j \quad (\text{II. 15})$$

La probabilité P_j pour que la réaction j se produise est :

$$P_j = \frac{\sigma_j}{\sigma_T} \quad (\text{II. 16})$$

Dans le paragraphe suivant, nous décrivons les différentes sections efficaces correspondant à ces diverses réactions du faisceau primaire avec le gaz.

III. 2. Calcul des sections efficaces de diffusion

Les différents types de sections efficaces sont classés en deux catégories : élastique lorsqu'on néglige l'énergie transférée au nucléon, ou inélastique dans les autres cas [24, 25]. Nous examinerons dans ce paragraphe, ces deux types de section efficace pour des gaz monoatomiques puis pour des gaz moléculaires.

a) Gaz monoatomique :

On trouve dans la littérature des travaux expérimentaux ayant abouti à la détermination de la section efficace différentielle pour les gaz rares Ne, Ar, Kr, He et Xe [25, 26], mais ces résultats ne sont pas toujours concordants et ne couvrent pas toute la gamme d'énergie et d'angles de diffusion. Tout comme Danilatos [5], nous avons décidé d'adopter les formules théoriques utilisées par Jo st et Kesler [26, 27] pour $\frac{d\sigma}{d\Omega}$. Ces auteurs ont été les seuls à pouvoir présenter des solutions analytiques pour 2 des 3 intégrales présentes dans l'équation (II. 14) ne laissant donc qu'une seule intégrale à résoudre numériquement. Ces formules, basée sur les travaux de Lenz [27] sont les suivantes:

$$\frac{d\sigma_e}{d\Omega} = \frac{Az}{16 \left[\sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) + \sin^2\left(\frac{\theta_0}{2}\right) \right]^2} \quad (\text{Section efficace différentielle élastique}) \quad (\text{II. 17})$$

$$\frac{d\sigma_i}{d\Omega} = \frac{A(\theta^2 + \theta_E^2 + 2\theta_0^2)}{(\theta^2 + \theta_E^2)(\theta^2 + \theta_E^2 + \theta_0^2)^2} \quad (\text{Section efficace différentielle inélastique}) \quad (\text{II. 18})$$

$$\text{Avec} \quad \theta_0 = \frac{\lambda}{2\pi R} \quad (\text{II. 19})$$

$$\theta_E = \frac{J}{4E} \quad (\text{II. 20})$$

$$\text{Et} \quad A = \frac{\lambda^4 z \left(1 + \frac{E}{E_0}\right)^2}{4\pi^4 a_H^2} \quad (\text{II. 21})$$

λ : est la longueur d'onde de l'électron, donnée par:

$$\lambda = 1.226 \times 10^{-9} \left[E(1 + 0.9778 \cdot 10^{-6} E) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (\text{II. 22})$$

avec R : rayon de l'atome.

J : énergie d'ionisation

E : énergie du faisceau électronique (en eV)

$E_0 = 511 \cdot 10^3$ eV (énergie de l'électron au repos)

$a_H = 5.29 \cdot 10^{-11}$ m (rayon de Bohr)

Deux difficultés majeures apparaissent lors du calcul de la section différentielle par (II. 17) et

(II. 18) :

- Détermination du rayon atomique R : C'est la distance sur laquelle le noyau, écranté par les électrons des différentes orbitales de l'atome est "actif" et interagit avec l'électron incident. Ce paramètre est inclus dans le modèle atomique de Wentzel [28] pour le potentiel:

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

$$U(r) = \frac{-e^2 Z}{4\pi\epsilon_0 r} \exp\left(-\frac{r}{R}\right) \quad (\text{II. 23})$$

Différentes expressions de R ont été proposées [29, 30], mais le modèle le plus adapté semble être celui proposé par Burge et Smith [31] qui s'écrit en fonction de l'amplitude de diffusion $f_e(0)$, du rayon de Bohr, et du numéro atomique Z :

$$R = \left[f_e(0) \frac{a_H}{2Z} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (\text{II. 24})$$

Ce choix est conforté par le fait que cette relation est en accord avec les résultats expérimentaux pour la mesure de $f_e(0)$ réalisés par Ibères et Vainshtein [32].

▪ Choix du potentiel d'ionisation : Une des possibilités est d'utiliser le potentiel de première ionisation. Reimer [33] propose cependant de prendre pour J , le potentiel moyen d'ionisation donné par la formule :

$$J = 9.76 Z + 58.8 Z^{-0.19} \quad (\text{J eV}) \quad (\text{II.25})$$

Nous avons vérifié dans la littérature que ce potentiel correspond aux éléments dont le numéro atomique est tel que $Z > 13$.

Pour $Z \leq 13$, le potentiel moyen d'ionisation s'écrit [34] :

$$J = 11,5 Z \quad (\text{II.26})$$

Il faut noter que l'expression (II. 18) pour la section différentielle inélastique est valable pour des angles inférieurs à 0.17 rad (10°), alors que l'équation (II. 17) donnant la section élastique est valable pour tous les angles. Ces deux sections sont tracées pour l'argon, sur la figure (II. 4), pour un choix de paramètres Z , E et J indiqués sur la figure (II.4)

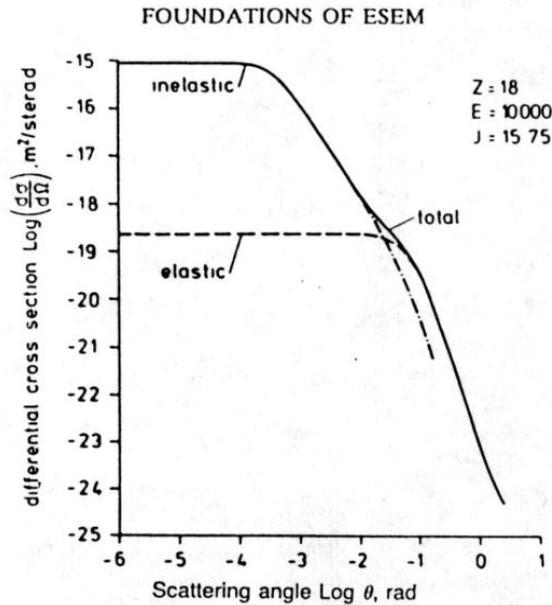


Figure II. 4 : Section efficace différentielle (élastique et inélastique et totale) en fonction des angles de diffusion pour l'argon [10]

On peut observer sur cette figure, que la composante inélastique est dominante pour des angles inférieurs à 0.01 rads, alors que le terme élastique prédomine au dessus de 0.1 rad. Par conséquent et fort heureusement, le terme inélastique est négligeable, pour l'argon, dans la région où l'équation (II. 18) n'est pas valable. On remarque également que les deux composantes élastique et inélastique de la section efficace différentielle sont toutes les deux constantes pour des angles inférieurs à des valeurs caractéristiques θ_0 et θ_E données par les équations (II. 19) et (II. 20), ce qui veut dire que la diffusion d'un électron avec un angle inférieur à ces valeurs est improbable.

Il est particulièrement utile d'introduire la section efficace correspondant à la diffusion de

l'électron avec des angles de diffusions supérieurs à θ : $\sigma(> \theta) = \int_{\theta}^{\pi} \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega$ (II. 27)

Cette équation est représentée sur la figure (II. 5) pour l'argon pour différentes énergies d'accélération. Une observation importante est que $\sigma(\theta > \pi/2)$ est environ mille fois plus petite que la section totale, et par conséquent les électrons rétrodiffusés par le gaz doivent représenter une fraction réduite du faisceau incident, en particulier si m n'est pas grand, ce qui est le cas dans le VPSEM [10].

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

Le fait de choisir différentes valeurs pour J change énormément la valeur de la section efficace de diffusion pour des faibles angles de diffusion. Ceci est montré sur la même figure par la ligne en pointillés calculée pour $J = 209,6$ eV, déterminée à partir de l'équation (II. 25).

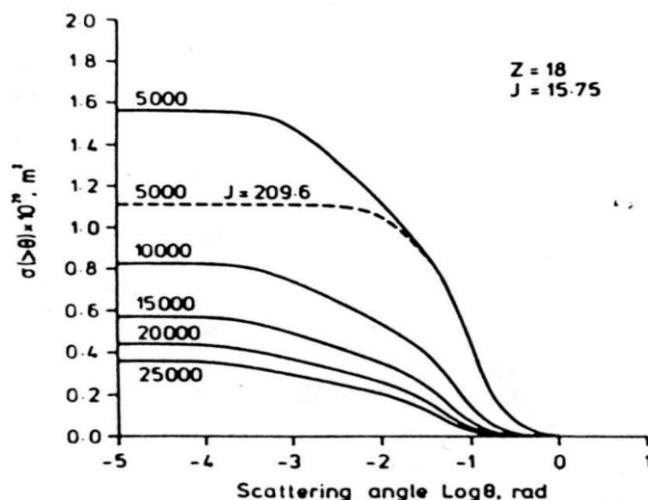


Figure II. 5 : Variation de la section efficace de diffusion pour des angles supérieurs à θ en fonction de $\theta d\theta$ pour différentes énergies du faisceau pour l'argon.

Le résultat obtenu en changeant seulement J est représenté par ligne en pointillés. Sur la figure (II. 6) on a présenté la variation de la section efficace totale en fonction du potentiel d'accélération pour différents gaz mono-atomique (Ar, Ne, N, He) en fonction du potentiel d'accélération [10].

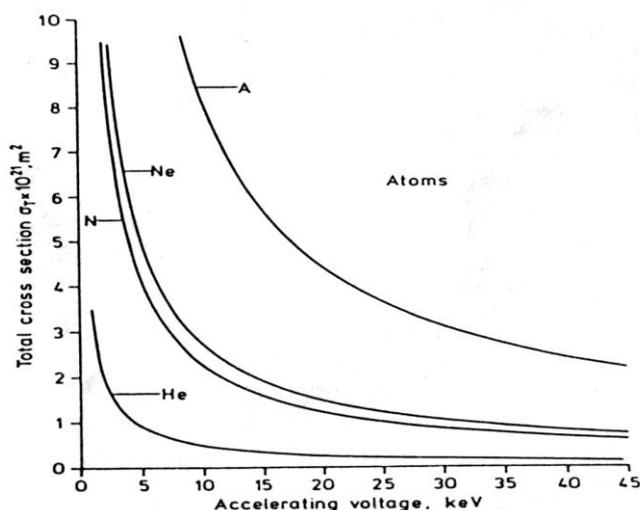


Figure II. 6 : La section efficace totale de diffusion monoatomique en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons.

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

b) Gaz moléculaire :

La section efficace de diffusion des molécules n'est pas simplement la sommation de la section efficace élastique et la section efficace inélastique. On doit en effet tenir compte du fait que certains des électrons externes participent aux liaisons entre atomes. Ici aussi, les données expérimentales manquent pour les gaz usuels tels qu'O₂, N₂ ou H₂O (vapeur d'eau). Nous reprenons dans ce qui suit, la démonstration faite par Danilatos [10], basée sur la théorie développée par Mott et Massey [35].

Concernant la section efficace élastique, on considère la molécule est constituée de plusieurs centres de diffusion qui correspondent aux atomes de la molécule. Si on note d_0 la distance minimale entre ces centres, et r_m la distance maximum d'interaction d'un électron avec ces centres de diffusion, et dans le cas d'une diffusion cohérente, la section efficace différentielle élastique s'écrit :

$$\frac{d\sigma_e}{d\Omega} = \sum_n \sum_j f_n(\theta) f_j(\theta) \frac{\sin(s \times r_{nj})}{s \times r_{nj}} \quad (\text{II. 28})$$

avec les conditions suivantes :

$$\frac{2\pi d_0}{\lambda} \gg 1 \quad (\text{II. 29})$$

$$\text{et } d_0 \gg r_m \quad (\text{II. 30})$$

$$\text{Où } s = 4\pi \frac{\sin(\frac{\theta}{2})}{\lambda} \quad \text{et } r_{nj} \text{ est la distance entre l'atome } n \text{ et l'atome } j.$$

$f_n(\theta)$ est l'amplitude de diffusion, telle que:

$$\frac{d\sigma_e}{d\Omega} = |f_n(\theta)|^2 \quad (\text{Pour le } n^{\text{ième}} \text{ atome}) \quad (\text{II. 31})$$

Ces paramètres sont consignés dans le tableau (II. 1) pour les gaz usuels.

TABLEAU II. 1

Valeur de la distance interatomique r_{ij} , et de la distance maximum d'interaction r_m et du rapport $2\pi d_0/\lambda$ pour différents gaz moléculaires

$r_{ij} \times 10^{10}(\text{m})$		$r_m \times 10^{10}(\text{m})$		$2\pi d_0/\lambda$	
		5keV	25keV	5keV	25keV
He	0.7461	0.039 0.018		27	61
N ₂	1.0975	0.211	0.098	40	90
O ₂	1.208	0.216	0.099	44	99
H ₂ O	$\begin{cases} 0.9584 \\ 0.9584 \\ 1.5151 \end{cases}$			35	78

En considérant r_m comme le rayon de la section efficace élastique totale de l'atome

$r_m = \left(\frac{\sigma_{eT}}{\pi}\right)^{\frac{1}{2}}$, et en calculant r_m et le rapport $2\pi d_0/\lambda$ pour 5 et 25 keV, il apparaît sur le

tableau II. 2, que la condition (II. 30) est satisfaisante tout le temps alors que la condition (II.9) est d'autant plus satisfaite que l'énergie du faisceau est élevée (faibles longueurs d'ondes). C'est en tenant compte de ces limitations que l'on procédera à l'intégration de l'équation (II. 8) pour le calcul de la section efficace moléculaire totale.

Le cas de la section efficace inélastique peut être traité dans le cadre de la diffusion incohérente. En première approximation, la section efficace différentielle inélastique moléculaire $\frac{d\sigma_i}{d\Omega}$ est la somme des sections efficaces différentielles de chaque atome.

$$\frac{d\sigma_i}{d\Omega} = \sum_j \frac{d\sigma_{ij}}{d\Omega} \text{ (Somme sur les atomes d'indice } j) \quad \text{(II. 32)}$$

Sur la figure (II .7) on a présenté la variation de la section efficace totale en fonction du potentiel d'accélération pour différents gaz moléculaire (N₂, H₂, H₂O) en fonction du potentiel d'accélération [10].

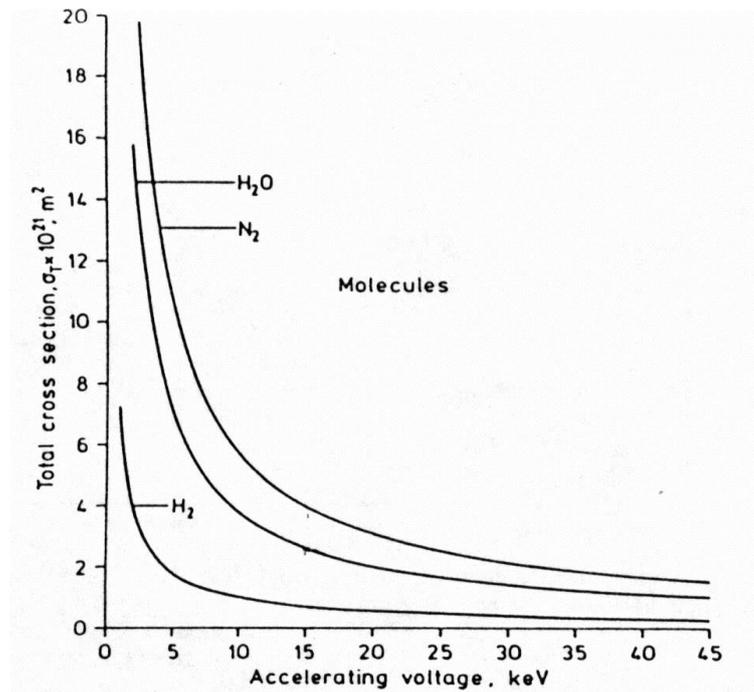


Figure II .7 : La section efficace totale de diffusion de quelque gaz moléculaire en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons

III. 3. Elargissement du faisceau d'électron (skirting):

Le profil d'un faisceau infiniment fin (c.à.d. dont le diamètre de la sonde est négligé) peut être utilement décrit en introduisant le rayon réduit ρ défini par [21]:

$$\rho = \frac{2\pi Rr}{\lambda.L} = \frac{\theta}{\theta_0} = \frac{r}{\theta_0 L} = \frac{r}{r_0} \quad (\text{II. 33})$$

En introduisant ce changement, le profil du faisceau en fonction de ρ ne dépend pas de r et de L séparément mais il va dépendre du rapport $\frac{r}{L}$ et par conséquent il y a une correspondance entre r et ρ si tous les autres paramètres sont fixes.

ρ est équivalent au nombre des unités r_0 dans r avec $r_0 = \theta_0 L$. Il mesure le "taux de déviation".

Schumacher [36] a montré que le faisceau centré qui passe dans le gaz subit un élargissement sous la forme d'une jupe (skirt), qui est constitué par les électrons diffusés autour de l'axe d'incidence. Ce phénomène est appelé Skirting. La conséquence sur le fonctionnement du VPSEM est qu'il est possible d'utiliser la partie du faisceau non déviée à condition que la taille

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

originale de la sonde électronique soit bien plus petite que la largeur du skirt et que cette partie du faisceau contienne suffisamment d'électrons pour avoir un bon contraste.

Le demi-rayon du skirt noté $r_{1/2}$ est défini comme étant le rayon qui contient la moitié des électrons du skirt. Dans cette définition, la fraction non déviée comprenant les électrons restant sur l'axe est d'abord soustraite du flux initial, $r_{1/2}$ caractérise alors le reste du faisceau.

Ce rayon de skirt est représenté sur la figure (II. 8). La courbe obtenue a la forme d'un "S" qui diminue quand m diminue sans pour autant passer par $\rho_{1/2} = 0$ pour $m \rightarrow 0$. C'est raisonnable comme comportement parce que le skirt du faisceau est fini lorsque $m \rightarrow 0$ et la probabilité qui lui correspond $V(\rho) \rightarrow 0$.

Une autre interprétation est que pour une extrême basse pression il est improbable que l'électron subisse une collision mais lorsque cela se produit, il en résulte un élargissement fini du faisceau d'électron. Cela est présenté sur la figure (II. 8).

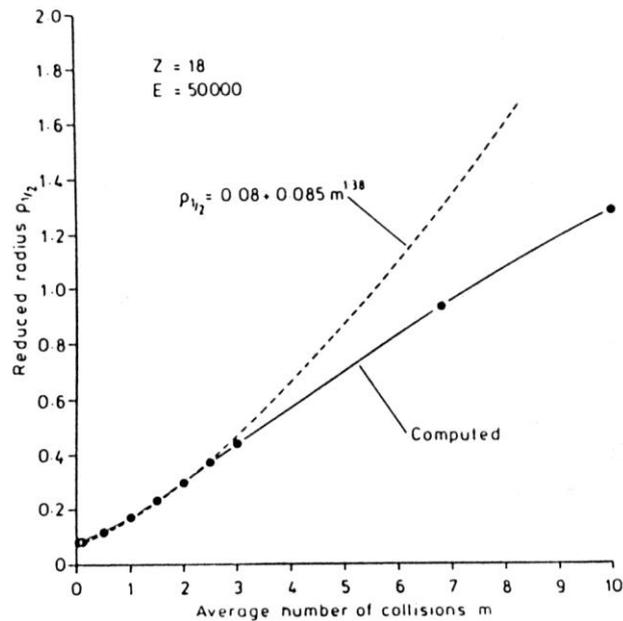


Figure II. 8 : Variation du rayon du skirt pour différents nombres moyens de diffusion

La partie de la courbe correspondant au régime d'oligo-scattering peut être décrite par la loi:

$$\rho_{1/2} = 0.08 + 0.0848m^{1.38} \quad (\text{II. 34})$$

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

Entre $m=3$ et $m=7$ il y a une relation linéaire et au-delà, la courbe devient concave descendante. Ainsi, la ligne droite correspond à la transition du régime oligo-scattering vers le régime plural scattering où tous les électrons ont subi au moins une collision.

Pour le carbone et pour $m > 5$, Reimer et al [37] donnent la relation :

$$r_{1/2} \approx L^2 \text{ (II. 35)}$$

qui ne paraît pas correspondre à l'équation (II. 34). Cependant, si on utilise l'équation (II. 34) et en écrivant :

$$m = 7.243 \times 10^{22} \frac{\sigma_T}{T} PL \text{ (II. 36)}$$

dans l'équation (II. 11) et, on obtient l'équation final de $r_{0.5}$:

$$r_{1/2} = 0.0039L + 0.00155L(P.L)^{1.38} \text{ (II. 37)}$$

(avec la condition $m < 3$ ou, ce qui est équivalent, $pL < 6$).

Une relation semblable à celle (II. 34) ont été obtenues pour Ar pour une tension d'accélération de 10 keV et à la température 293K [10]:

$$r_{1/2} = 0.0096.L + 0.0196L(P.L)^{1.78} \text{ (II. 38)}$$

Smith et Schumacher [38] ont donné une formule pour calculer le skirt qui est la suivante :

$$r_{1/2} = \frac{793.19.Z}{\beta^2 (E + E_0)} \left[\frac{Z(Z+1)P}{T} \ln \frac{192\beta}{Z^{1/3}} \right]^{1/2} L^{3/2} \text{ (II.39)}$$

$$\text{Avec } \beta = \left[1 - \frac{1}{\left(1 + \frac{E}{E_0}\right)^2} \right]^{1/2}$$

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

Concernant l'élargissement du faisceau d'électron après passage dans différents gaz, Danilatos [39] a donné une formule pour calculer le rayon $r_{0,5}$:

$$r_s = \left(\frac{364Z}{E} \right) \left(\frac{P}{T} \right)^{1/2} L^{3/2} \quad (\text{II.40})$$

Remarque : le rayon $r_{0,5}$ ou $\rho_{0,5}$ est pratique pour harmoniser les résultats et sert de base de comparaison. Cependant, il ne décrit pas l'étendue réelle du skirt. D'autre part, il est statistiquement difficile de définir r (100%). Pour cela, il nous semble que le rayon le mieux à même de décrire l'élargissement est $r_{0,9}$ qui a la même définition que $r_{0,5}$ en utilisant 90% des électrons au lieu de 50%.

IV.PROFONDEUR D'INTERACTION DANS LE GAZ :

La distribution spatiale de la perte d'énergie et l'ionisation dans le gaz doit être considérée comme l'un des paramètres importants dans le fonctionnement du VPSEM. Dans ce dernier, et avant d'atteindre l'échantillon, l'électron ne parcourt normalement qu'une distance correspondant à un nombre réduit de fois le libre parcours moyen. Cependant, il est important de connaître le comportement du faisceau d'électrons lorsqu'il lui est permis de traverser une distance "infinie" dans le gaz, ce qui nous amène à définir une profondeur de pénétration.

Peu de travaux ont été publiés sur les profondeurs de pénétrations des électrons dans les gaz. Il semblerait que ceci soit dû aux difficultés des mesures expérimentales. A partir de travaux expérimentaux basés sur la mesure de l'intensité de la lumière émise suite à l'interaction de faisceaux d'électrons dans différents gaz (air, argon, azote), Grün [40] a abouti à la relation générale suivante donnant la profondeur de pénétration

$$L_R = \frac{0.38.T.E^{1.75}}{M.P} \quad (\text{II. 41})$$

où les unités de L_R et de E sont en m et en keV respectivement.

La dissipation de l'énergie sous forme de chaleur peut créer une variation locale de la densité de charge, mais l'échauffement est négligeable pour un courant inférieur à 10^{-7} A qui est toujours inférieur au courant généré par les différents filaments utilisés dans le VPSEM qui est de l'ordre 10^{-10} A.

Chapitre II : interaction électron-gaz dans le VPSEM

REMARQUE :

Les électrons réagissent avec les gaz de la même façon qu'ils réagissent avec les solides. L'échelle de distance (MFP mean free path) sur laquelle l'interaction se produit est très différente, car les gaz, à basse pression, ont une densité un million de fois plus faible que les solides. Sous un vide poussé de 10^{-4} Pa, retrouvé en microscopie électronique conventionnel, le MFP d'un électron est d'environ 10 Km. Cette distance (MFP) est de 1cm pour une pression de 100Pa et de 1mm pour une pression de 1000Pa. Ces deux dernières distances (MFP) sont dans l'ordre de grandeur, de celles retrouvées en microscopie électronique.

Le nombre de collisions (m) subies par un électron traversant un gaz sur une certaine distance, "distance parcourue dans le gaz" ou GPL (gas path length), est représenté par la relation suivante: $m = \text{GPL} / \text{MFP}$.

Dans la plupart des cas le GPL est identique à la distance de travail "working distance" (WD) d'où $m = \text{WD} / \text{MFP}$.

CHAPITRE III

INTERACTION ELECTRON-MATIÈRE

I. INTRODUCTION

Lorsque l'on désire connaître les propriétés d'un matériau, il est nécessaire de lui appliquer une contrainte ou une excitation. Dans le cadre de la microscopie électronique à balayage, cette réponse dépend de l'énergie E_0 du faisceau primaire d'électrons. Dans ce chapitre, nous allons détailler les divers processus physiques qui interviennent lors de l'interaction électron-matière.

II. HISTORIQUE

L'étude de l'interaction des électrons avec la matière solide a débuté vers la fin du 19^e siècle (Lenard en 1895). Les premières théories de Bothe (1933) et (1949), Bethe (1933) et (1949) s'intéressaient au domaine des hautes énergies [41].

Ces essais se basent sur la théorie de perte d'énergie de Bethe (1940) et la théorie des collisions élastique d'Everhart (1960). Ce n'est qu'à partir de 1964 que Cosslett et Thomas publièrent des résultats sous une forme généralisée. Les divers phénomènes se produisant durant l'irradiation du solide par les électrons constituent la base des informations concernant la distribution spatiale et l'énergie du faisceau pénétrant. Une première tentative pour déduire cette distribution a été élaborée empiriquement par Makhov (1960) en se basant sur la théorie de Spencer (1955) qui était jusque là la seule théorie complète de l'intensité du faisceau incident et de ces fluctuations. Ce genre de modèle empirique est assez limité pour conduire à une approche globale.

Dans le même domaine des énergies citées, Archard (1961) proposa un modèle pour les énergies moyennes (5 à 50 keV) avec discussion des différentes théories et modèles de ceux qui les ont précédés. L'approche théorique a fourni une description physique détaillée des phénomènes en question. En 1972, Kanaya et Okayama démontrèrent les limitations du modèle d'Archard en proposant leur modèle semi - empirique qui avait un domaine de validité assez large (10 à 1000 KeV) et qui pouvait être affiné afin d'apporter une approche globale du problème de l'interaction électron – matière[41] .

III. MECANISME PHYSIQUE DE L'INTERACTION ELECTRON-MATIÈRE

III.1. Volume d'interaction et signaux générés :

Lors du cheminement d'un électron incident dans le matériau, on distingue habituellement deux types d'interactions concomitantes, les interactions élastiques et les interactions inélastiques [42]. L'interaction est élastique lorsqu'un électron pénétrant dans la zone d'influence du potentiel qui règne autour d'un cœur ionique est dévié sans perte d'énergie appréciable. Si l'énergie de l'électron varie d'une manière significative, par exemple en transmettant une partie de son énergie à un électron d'une couche atomique, l'interaction est dite inélastique. Au gré de ces deux types d'interactions, les électrons incidents empruntent des parcours aléatoires dans la matière jusqu'à la perte totale de leur énergie cinétique. L'organigramme ci-dessous montre les deux types d'interactions ainsi que les différents produits de ces interactions.

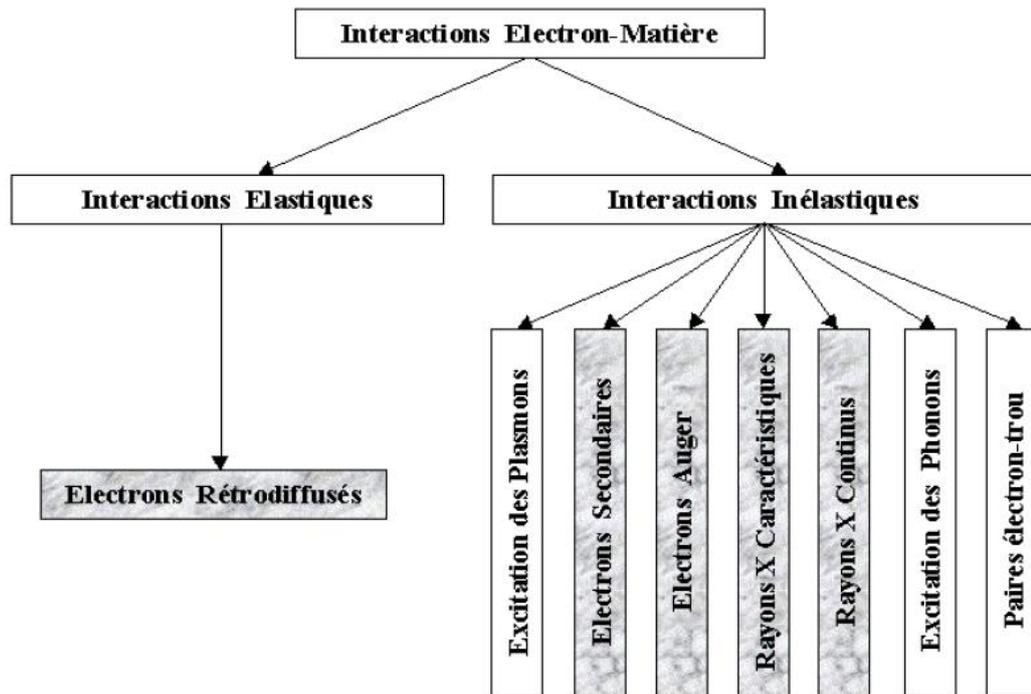


Figure III.1 : Organigramme des différentes interactions possibles et des signaux émis lors de la pénétration d'un électron primaire dans la matière

II.2 Profondeur de pénétration des électrons dans la matière :

Les électrons incidents empruntent des parcours aléatoires dans la matière jusqu'à la perte totale de leur énergie cinétique. Le lieu de l'ensemble de ces interactions est appelé : volume d'interaction ou "poire" d'interaction (Figure III.2). Les dimensions latérales, et la profondeur de pénétration maximale, (de quelques nm à quelques μm) de ce volume dépendent principalement de l'énergie incidente et des propriétés physico-chimiques de la cible (numéro atomique de la cible).

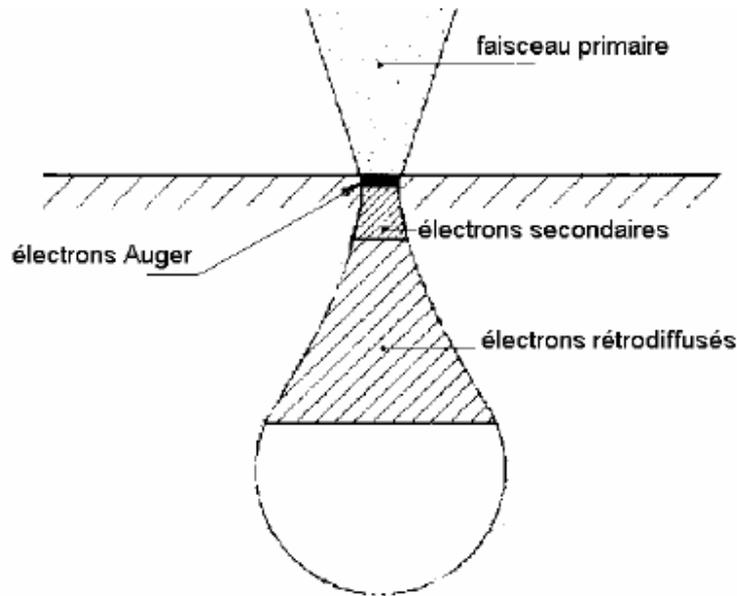


Figure III.2 : Poire d'interaction électrons primaires / échantillon

Comme nous venons de l'expliquer précédemment lorsque les électrons primaires entrent en collision avec les atomes de la cible, il se produit une perte d'énergie, on considère alors la perte d'énergie dE/ds (connue sous le nom de puissance de freinage), où s est la distance parcourue dans l'échantillon [43]. Pour un faisceau d'électrons primaires d'énergie au-dessus de $\sim 5\text{keV}$, on a l'expression approchée de Bethe (1930) pour dE/ds (keV / cm):

$$\frac{dE}{dS} = -78.500 \frac{\rho Z}{A_w E} \log\left(\frac{1.166E}{J}\right) \text{keV/cm} \tag{III.1}$$

Où ρ est la densité de l'échantillon (g/cm^3), E est l'énergie moyenne le long du parcours électronique (keV), A est le poids moléculaire et J est le potentiel moyen d'ionisation (eV)(Berger and Seltzer, 1964) :

$$J(\text{eV}) = 9.76Z + 58.8Z^{-0.19}, \text{ pour les éléments dont } Z \text{ est supérieur à } 13.$$

Pour les valeurs de Z inférieures à 13 : $J(\text{eV}) = 0.115Z$

Les limites de l'expression de Bethe à faible énergie peuvent être surmontées en utilisant la modification de Joy et Luo, 1989 :

$$\frac{dE}{dS} = -78.500 \frac{\rho Z}{A_w E} \log\left(\frac{1.166E}{J} + 1\right) \text{keV/cm} \quad (\text{III.2})$$

La profondeur de pénétration totale R_B des électrons dans l'échantillon (Bethe range) peut être obtenue par intégration suivante sur la gamme d'énergie de E_0 jusqu'au seuil d'énergie :

$$R_B = \int_0^{E_0} \left[\frac{-1}{\frac{dE}{ds}} \right] dE, \quad (\text{cm}) \quad (\text{III.3})$$

II.3 Distribution énergétique des électrons émis :

Les électrons réémis par l'échantillon ont une distribution énergétique qui s'étend de 0 à E_0 , l'énergie du faisceau primaire (figure III.3).

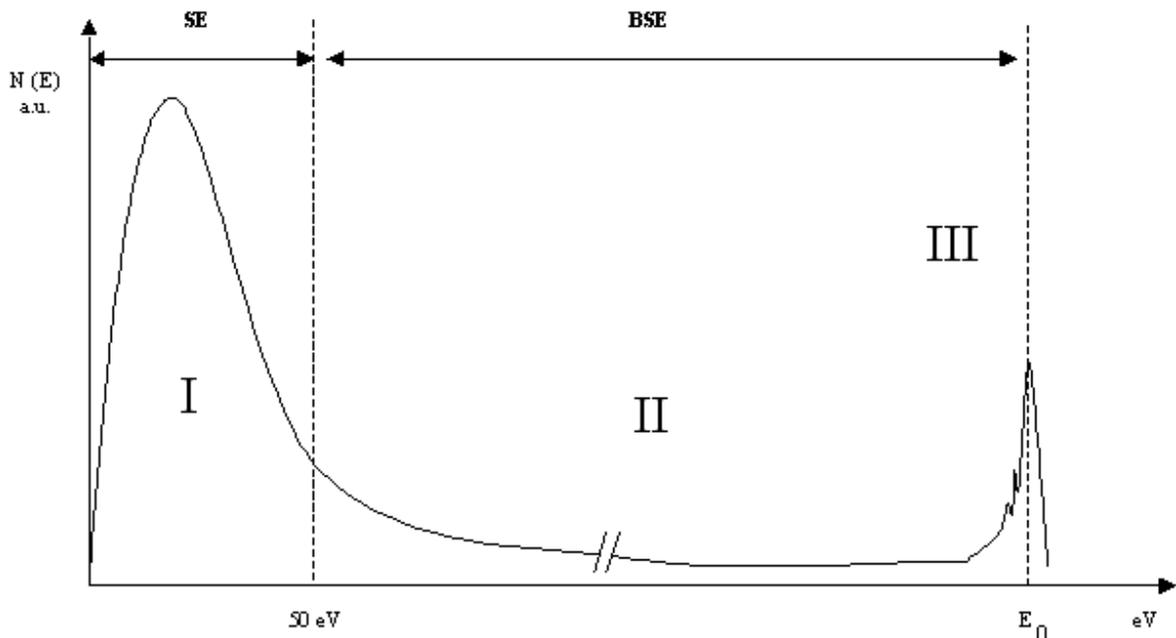


Figure III.3 : Spectre d'émission électronique.

La courbe présentée figure III.3 se compose de trois domaines différents :

La partie III située au voisinage de l'énergie primaire E_0 correspond aux électrons rétrodiffusés (noté BSE pour le terme anglo-saxon BackScattered Electron) dont certains ont perdu une énergie caractéristique (pics de perte d'énergie).

La partie I limitée par convention à des énergies inférieures à 50 eV représente les Secondaires vrais (noté SE pour le terme anglo-saxon Secondary Electron) c'est-à-dire les électrons de la cible qui ont été excités lors des collisions inélastiques avec les primaires. On peut également trouver dans ce domaine d'énergie des électrons primaires rétrodiffusés qui ont perdu presque toute leur énergie. Ces électrons n'ont aucune particularité énergétique qui permette de les distinguer des secondaires vrais et donc ils sont traités comme tels.

La partie II intermédiaire, la distribution est relativement "plate". Elle est constituée principalement par les électrons Auger sur un fond continu venant de secondaires et de rétrodiffusés ayant plus ou moins subis des pertes d'énergie. Tous ces électrons constituent l'émission électronique secondaire totale.

IV. LES DIFFERENTES EMISSIONS D'ELECTRONS

Après interaction du faisceau incident avec la matière de l'échantillon, on obtient différents signaux exploitables pour l'analyse de l'échantillon (électrons secondaires et rétrodiffusés, électrons transmis, électrons Auger, rayons X ...) (Figure III.4).

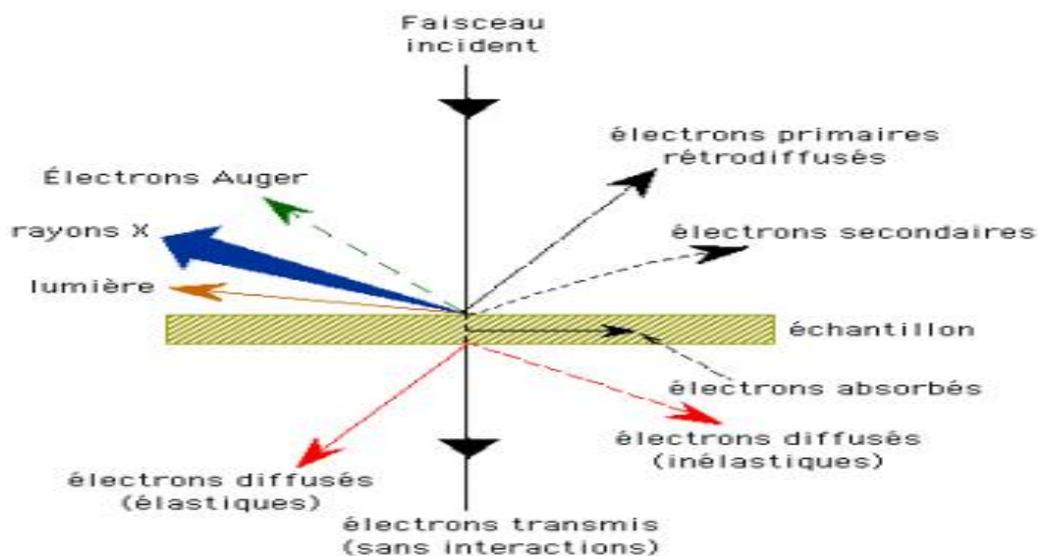


Figure III.4: Représentation schématique de l'interaction entre un faisceau d'électrons et la surface d'un échantillon.

IV.1. Electrons rétrodiffusés :

Le phénomène de rétrodiffusion peut résulter de chocs élastiques à grands angles, supérieurs à 90°, et/ou d'une succession de collisions à petits angles, inférieurs à 90°. On définit le taux de rétrodiffusion η_r par le rapport de la charge Q_{BSE} des électrons sortant de l'échantillon dont l'énergie excède 50 eV à la charge Q_0

$$\eta_r = \frac{Q_{BSE}}{Q_0} \text{ (III.4)}$$

a) Cas de cibles massives :

Les études expérimentales sur cibles massives sont nombreuses mais portent généralement sur les hautes énergies. Ainsi, la figure III.4 [44,45] montre que, pour un matériau donné et pour des énergies supérieures à 5 keV, le rendement η_r devient indépendant de l'énergie du faisceau primaire.

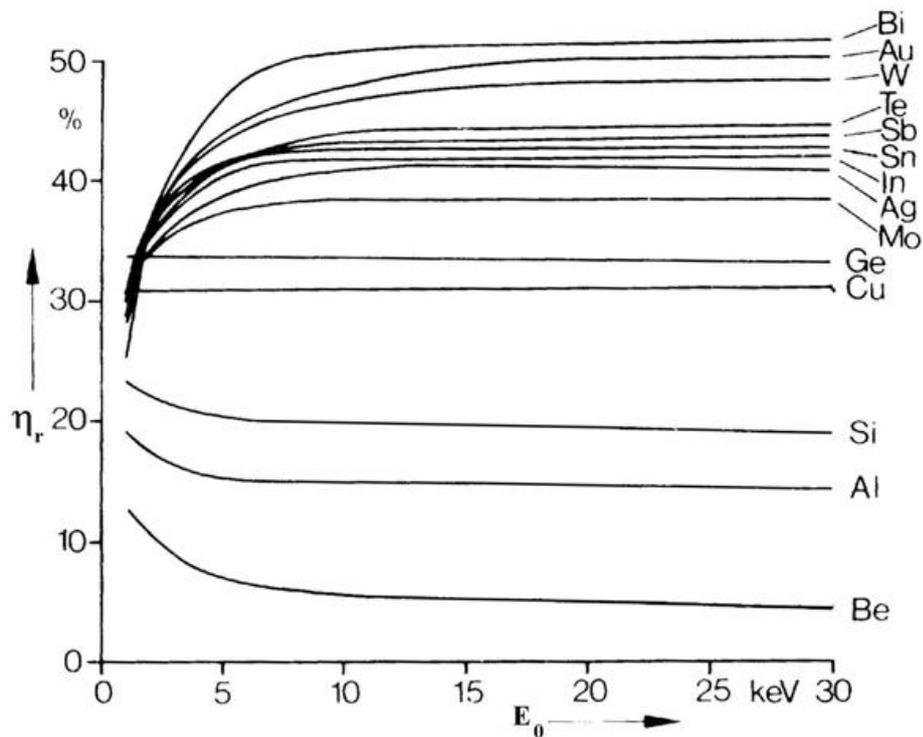


Figure III.5 : Variation du coefficient de rétrodiffusion η_r avec l'énergie incidente pour divers matériaux d'après [45].

Dans le domaine des basses énergies, les données sont plus rares [46, 47,48, 49] et descendent rarement en dessous de 2 keV. Seul Staub [48] propose une formule valable à partir de 500 eV :

$$\eta_r = b(1 - \exp(-6.6 \cdot 10^{-3} b^{-\frac{5}{2}} Z)) \text{ (III.5)}$$

Avec $b = 0.4 + 0.065 \ln(E_0)$.

On voit sur la figure III.5 que cette formule donne des résultats satisfaisants dans toute la gamme $0.5 \leq E_0 \leq 10 \text{ keV}$, comparés aux valeurs expérimentales fournies par Fitting [44].

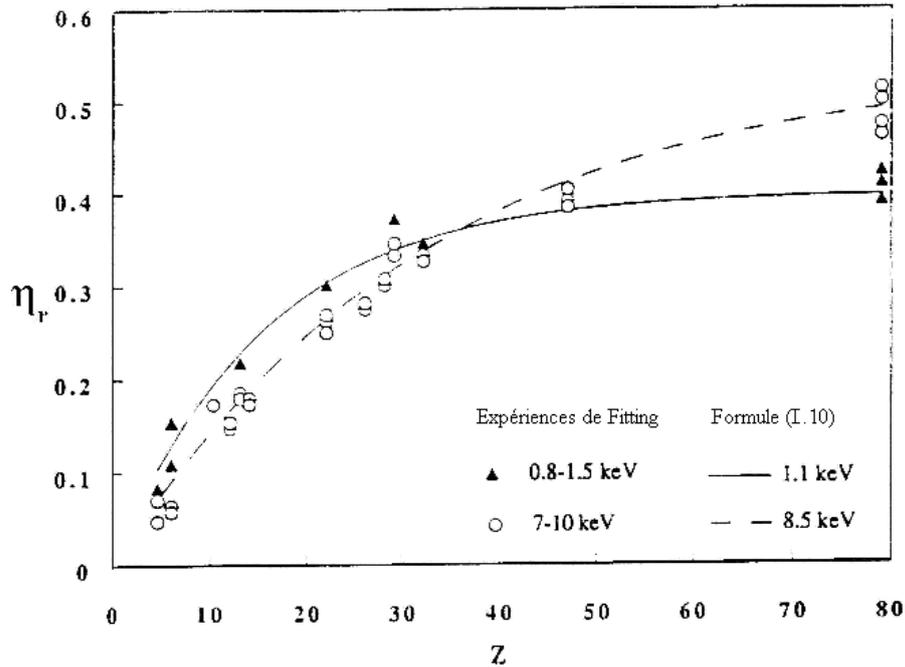


Figure III.6 : Variations du coefficient de rétrodiffusion η_r en fonction de Z pour différentes énergies (domaine des faibles énergies) d'après Staub [48].

La figure (III.6) donne la variation du coefficient de rétrodiffusion des matériaux étudiés en fonction de l'énergie des électrons incidents.

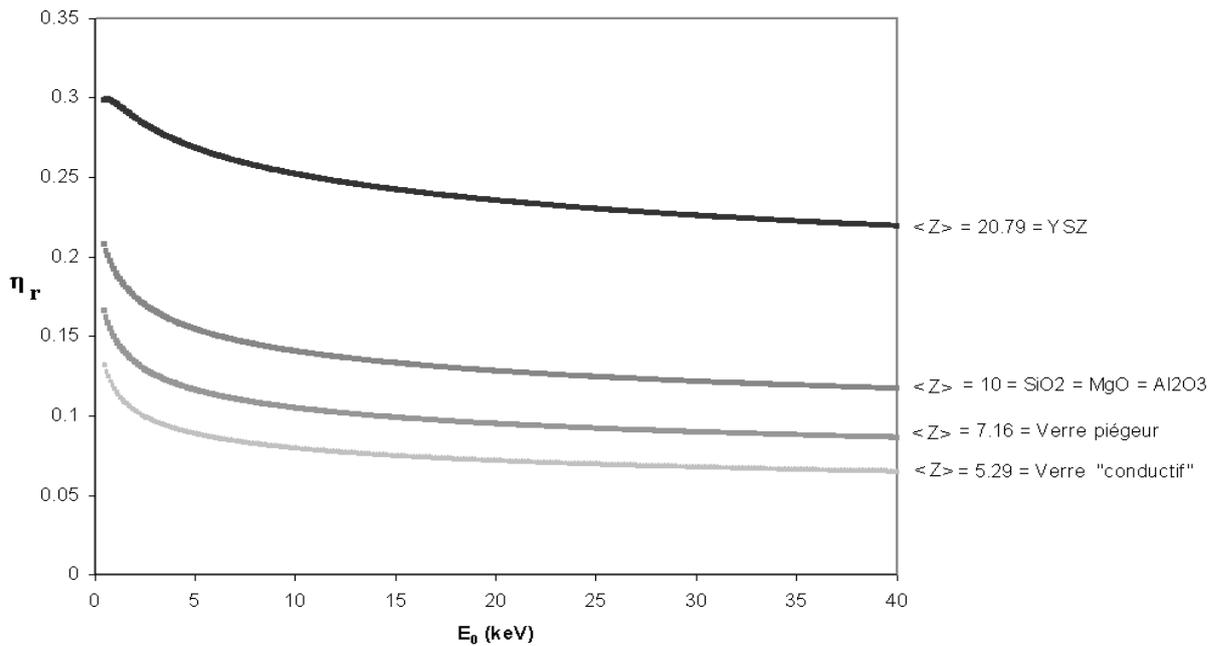


Figure III.7 : Variations du coefficient de rétrodiffusion η_r pour les matériaux massifs étudiés selon la formule (III.5) [48].

Quel que soit le domaine d'énergie considéré, on constate une diminution du rendement de rétrodiffusion lorsque Z décroît. Ceci s'explique par le fait que les interactions élastiques sont de moins en moins probables lorsque Z diminue. L'amplitude moyenne des déflexions angulaires dans le matériau et donc la probabilité de sortie diminuent puisque le nombre de chocs nécessaires pour qu'un électron fasse demi-tour devient plus grand. On remarquera que l'alumine, la silice et l'oxyde de magnésium qui présentent le même numéro atomique moyen $\langle Z \rangle = 10$ ont des coefficients de rétrodiffusion identiques.

b) Variation avec l'angle d'incidence du faisceau primaire :

Nous nous intéressons ici au coefficient de rétrodiffusion η_r^α d'un faisceau d'électrons pénétrant le matériau sous une incidence α par rapport à la normale à la surface (figure III.7)

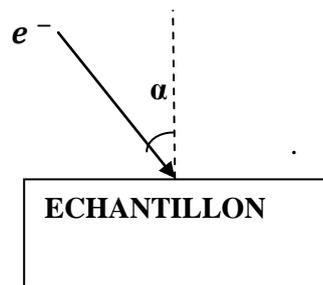


Figure III.8 : Impact d'un faisceau d'électrons sous une incidence α par rapport à la normale à la surface.

Staub [48], en reportant les valeurs de η_r^α fournies par Fitting et Technow [50] selon l'énergie des électrons primaires E_0 , montre que le coefficient de rétrodiffusion sous incidence oblique peut être exprimé sous la forme :

$$\eta_r^\alpha = (\eta_r^0) [1 - \varepsilon(1 - \cos \alpha)] \quad \text{(III.6)}$$

$$\text{avec } \varepsilon(E) = 1 - \exp(1 - 1.83E^{1/4})$$

On constate (figure III.8) que η_r^α augmente avec α . En effet, les électrons primaires pénètrent moins profondément sous la surface de l'échantillon et de ce fait, ils sortent plus facilement.

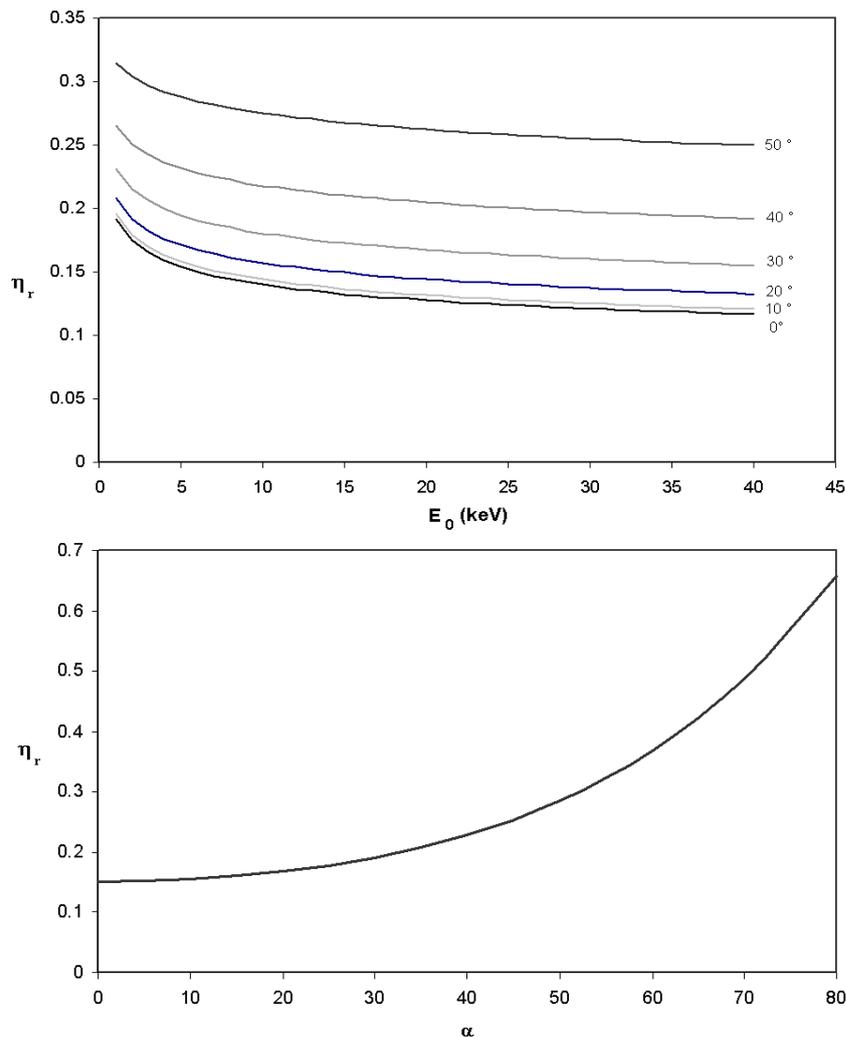


Figure III.9 : Variations du coefficient de rétrodiffusion η_r ($Z = 10$)

en fonction de E_0 pour différents angles α et en fonction de α pour $E_0 = 6$ keV selon la formule [48].

Bien que les autres signaux ne fassent pas l'objet de notre étude, nous allons les considérer dans ce qui suit pour complément d'information.

IV.2. Electrons secondaires :

Les électrons secondaires sont le produit des interactions des électrons primaires avec les électrons des couches externes des atomes de la cible (électrons faiblement liés). La génération d'électrons secondaires se fait le long du parcours des électrons primaires dans le volume d'interaction. Une fois à la surface, l'électron peut être émis en tant que électron secondaire. Les électrons secondaires émis ont une énergie qui n'excède pas au maximum quelques dizaines

d'eV. Conventionnellement et arbitrairement, l'ensemble des électrons émis à des énergies inférieures à 50 eV (figure III.3) est qualifié d'électrons secondaires, la majorité ayant des énergies <10 eV. (Fig.9), Le taux d'émission électronique secondaire, est défini comme étant, le rapport du nombre d'électrons secondaires émis par seconde et du courant primaire :

$$\delta = \frac{n_{SE}}{n_{PE}} = \frac{i_{SE}}{i_{PE}} \quad \text{(III.7)}$$

Contrairement aux électrons rétrodiffusés, les électrons secondaires ont un coefficient relativement insensible au numéro atomique Z. pour la plupart des éléments Une valeur typique de $\delta \sim 0.1$, bien que pour le carbone, δ a une valeur de $\sim 0,05$ et pour l'or δ est de ~ 0.2 .

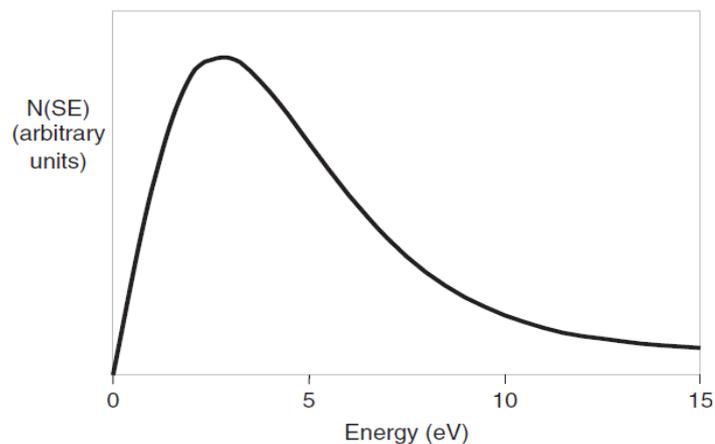


Figure III .10: courbe généralisé de l'émission secondaire montrant la distribution D'énergie avec un pic de 2-5eV [13].

IV.3. Emission de photons X et d'électron Auger :

Un électron primaire, du faisceau incident, peut éjecter un électron d'une couche profonde d'un atome de l'échantillon. Cet atome passe dans un état excité et "cherche" à repasser à l'état fondamental d'équilibre par émission:

- Soit d'électrons Auger
- Soit de rayonnements X caractéristiques de l'atome excité
- Soit émission de lumière de longueurs d'ondes visibles sur certains matériaux : cathodoluminescence.

Les électrons Auger possèdent une très faible énergie et sont des informations sur la composition de l'échantillon et plus particulièrement de la surface de l'échantillon ainsi que sur le

type de liaison chimique, dans la mesure évidemment où le MEB est équipé d'un détecteur d'électrons réalisant une discrimination en énergie. Ce sont des MEB spécialisés qui sont équipés d'analyseurs en énergie. On parle alors d'« analyse Auger » ou de « Spectrométrie Auger ». Le niveau de vide des microscopes électroniques Auger doit être bien meilleur que pour les MEB ordinaires, de l'ordre de 10⁻¹⁰ Torr (environ 10⁻¹³ atm).

Le faisceau d'électrons est suffisamment énergétique pour ioniser les couches profondes des atomes. Lors de la désexcitation, le remplissage de l'ordre énergétique de la structure électronique, se produit avec émission de rayons X. L'analyse des ces rayons permet d'obtenir des informations sur la nature chimique de l'atome. En détectant ces rayons X, on peut identifier les éléments contenus dans l'échantillon (analyse qualitative), mais on peut aussi déterminer la concentration de ces mêmes éléments (analyse quantitative).

III.4. Cathodoluminescence (CL) :

La cathodoluminescence (CL) est le phénomène d'émission de lumière (dans l'ultraviolet, le visible ou l'infrarouge) par un échantillon soumis à un bombardement électronique. Dans le cas des semi-conducteurs l'origine des photons provient de la recombinaison radiative des paires électron-trou générées lors de l'interaction électron-matière. L'analyse spatiale et spectrale de la CL permet de remonter à la nature des matériaux semi-conducteurs et des transitions mises en jeu ainsi qu'à la localisation des éventuels défauts et impuretés.

La technique de CL utilisant le microscope électronique à balayage (MEB) est complémentaire de la technique de microphotoluminescence dans le cadre de l'étude des nanostructures semi-conductrices réalisées couramment de nos jours. En effet, l'imagerie électronique et l'imagerie de CL ne sont pas limitées par la diffraction de la lumière ; de plus, la source électronique excitatrice est bien plus énergétique que les meilleurs lasers émettant dans l'ultraviolet ce qui permet l'étude spectroscopique des semi-conducteurs à très grande largeur de bande interdite comme le diamant par exemple.

Du point de vue expérimental, une étude de CL peut se simplifier à l'extrême à un canon à électrons, un échantillon et un détecteur : l'oeil. Cependant, dans le cadre de l'étude des nanostructures semi-conductrices, il est nécessaire de disposer d'un système d'émission électronique à haute résolution spatiale et d'un dispositif de détection à haute résolution spectrale. Le MEB se présente alors naturellement comme l'outil d'imagerie et d'excitation électronique le mieux adapté et le plus souple d'utilisation avec une résolution spatiale de

quelques nanomètres tandis qu'un spectromètre à réseau de diffraction donnera une résolution spectrale typique de l'ordre de l'Å.

La mesure de CL proche UV-visible-proche IR à basse température (fig.1) est l'association d'un système d'imagerie et d'excitation électronique de haute résolution (microscope électronique à balayage) (1), d'un dispositif de collection efficace de la lumière (miroir parabolique) (2), d'une détection à haute résolution spectrale (monochromateur avec détecteurs) (3) et d'une platine froide (régulation de température de 5 à 300 K) (4).

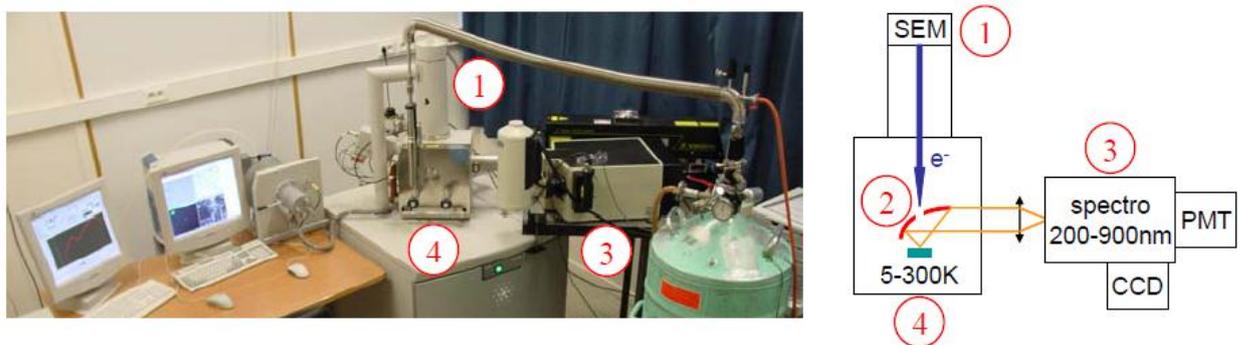


Figure III .11: dispositif de mesure de CL. (1) MEB, (2) miroir parabolique, (3) monochromateur, (4) platine froide.

Cathodoluminescence est un autre mode de détection impliquant les photons générés par l'interaction faisceau-échantillon. Ce mode a été démontré pour fonctionner également en ESEM par l'utilisation des tuyaux de la lumière après avoir été effacé du revêtement scintillant précédemment utilisé pour la détection de l'ESB. Toutefois, ne sait pas trop sur son utilisation en dehors du prototype expérimental testé à l'origine [51]. De toute évidence, ESEM est plus puissant et significatif dans ce mode de détection que SEM, puisque la surface naturelle de tout spécimen peut être examinée dans le processus d'imagerie. Cathodoluminescence est une propriété des matériaux, mais avec des traitements différents spécimens requis et les limitations d'autres SEM les propriétés sont obscurcies ou altérée, voire impossible à détecter et donc ce mode de détection n'est pas devenu populaire dans le passé. L'avènement de l'ESEM avec son potentiel illimité peut provoquer plus d'intérêt dans ce domaine aussi, à l'avenir.

V. INTERACTION ELECTRON-ISOLANT

En ce qui concerne notre étude sur les électrons rétrodiffusés, nous avons choisi des matériaux isolants car l'emploi de conducteurs est injustifié dans un HPSEM. Cependant ; le caractère

isolant du matériau n'apparaît pas dans notre algorithme puisque les seules informations à fournir sont le numéro atomique, la densité et la masse atomique du matériau considéré. Ainsi, dans notre programme Monte Carlo, l'interaction électron-isolant est assimilée à une interaction électron-matière en général. Néanmoins, à titre documentaire, nous avons jugé utile d'introduire le paragraphe suivant sur les isolants.

IV.1. Qu'est ce qu'un isolant :

Pour un novice, un isolant électrique est "un corps non conducteur de l'électricité" (définition du "Petit Larousse"). Cela conduit à se poser une question : qu'est ce que la conductivité ?

La conductivité γ d'un matériau est définie par :

$$\gamma = ne\mu \quad \text{(III.8)}$$

Où μ est la mobilité des électrons, e la charge élémentaire et n le nombre d'électrons par unité de volume.

Le tableau II.2 donne les valeurs à température ambiante de conductivité et de mobilité du cuivre Cu et de l'alumine monocristalline $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ de haute pureté [48]. On constate qu'il y a 23 ordres de grandeur entre les deux conductivités mais les mobilités sont proches d'où l'on conclut que l'alumine est un matériau apte à conduire l'électricité contrairement à la définition donnée précédemment.

Tableau III.12: Conductivité γ et mobilité μ à température ambiante du cuivre et de l'alumine monocristalline $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$.

	Cuivre	$\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$
$\gamma \text{ (}\Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}\text{)}$	$5.8 \cdot 10^{+5}$	$> 10^{-18}$
$\mu \text{ (cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$	80	200
$n \text{ (e}^{-} \cdot \text{cm}^{-3}\text{)}$	$4.5 \cdot 10^{+22}$	$3.1 \cdot 10^{-2}$

En appliquant l'équation (III.8), on trouve que le cuivre contient environ $n_{\text{Cu}} > 4.5 \cdot 10^{+22}$ électrons. cm^{-3} qui servent à la conduction tandis que l'alumine de haute pureté contient bien moins d'un électron par cm^{-3} .

L'alumine a donc une conductivité très faible parce qu'elle n'a pratiquement pas de charges libres à conduire et non pas parce qu'elle n'est pas apte à conduire les charges. Pour observer mais à la différence d'un métal, un isolant piège les charges en raison des défauts et des impuretés qu'il contient.

IV.2. Différences isolants / conducteurs

Figure III .7 représente les niveaux énergétiques des orbitales électroniques en fonction de la distance interatomique r pour deux types de matériaux cristallins, un matériau isolant et un matériau conducteur. Lorsque la distance interatomique r est grands, les fonctions d'onde ne se recouvrent pas, les niveaux sont discrets et correspondent à ceux des atomes isolés. Lorsque r diminue, les orbitales se recouvrent et les niveaux énergétiques s'élargissent. Un cristal étant constitué d'un très grand nombre d'atomes, chaque bande est alors assimilée à un continuum d'état électronique. Pour une distance interatomique r_0 , l'énergie totale du système est minimisée à l'équilibre. Dans un isolant, soit les bandes de valence ne se recouvrent pas à r_0 , soit elles forment par hybridation des bandes d'états liants et anti liants qui s'évitent. Il apparaît une bande interdite ou "gap" de largeur E_g (gap est le terme anglo-saxon). Le remplissage au zéro absolu se fait jusqu'au bas de la bande interdite. Dans un conducteur, les bandes de niveaux de cœur se recouvrent à r_0 et on a l'apparition d'une large bande de conduction partiellement remplie.

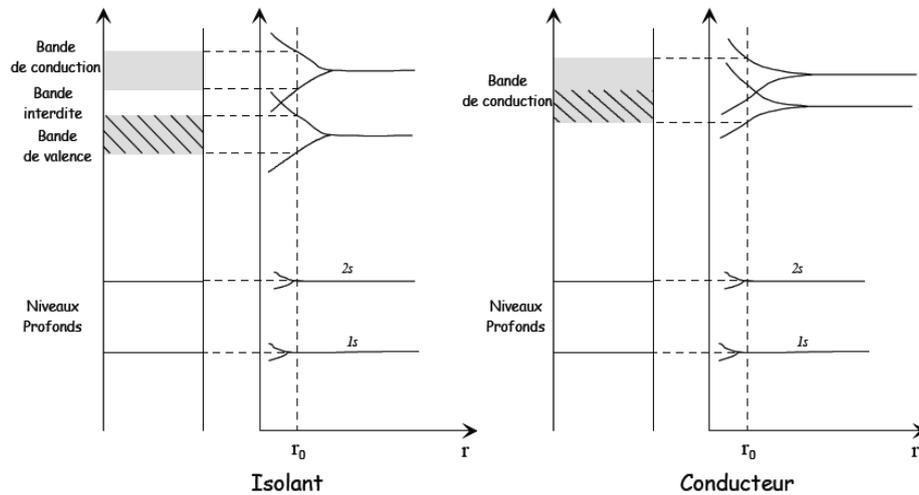


Figure III .12: Niveaux électroniques (sans hybridation) en fonction de la distance interatomique r dans le cas d'un isolant et d'un conducteur cristallins [48].

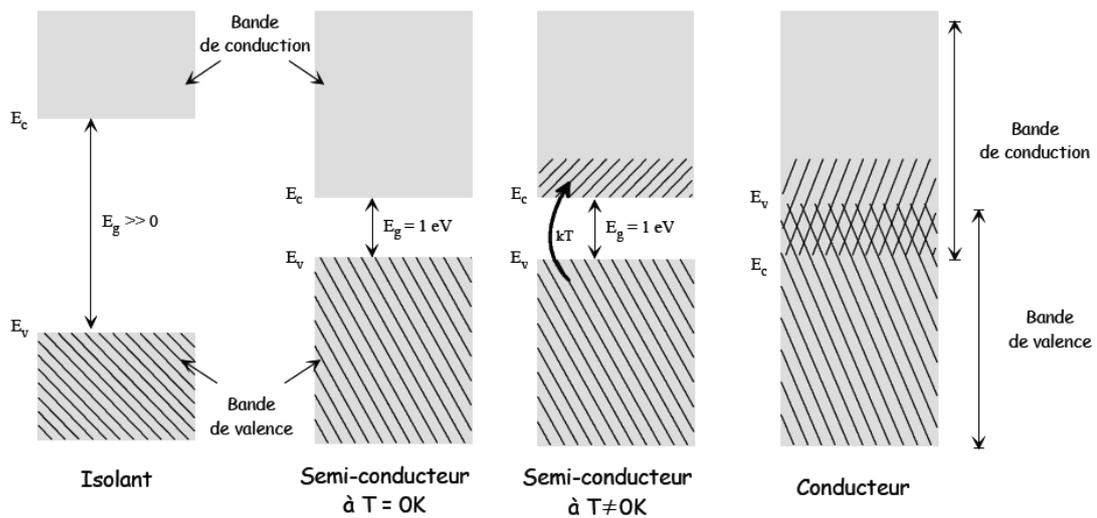


Figure III .13: Remplissage des bandes d'énergie par les électrons du solide [48].

La nature des atomes constituant le matériau va donc conditionner les propriétés électriques de celui-ci, le rendant conducteur, isolant ou encore semi-conducteur. Ainsi, la différence entre isolant et semi-conducteur ne s'exprime que lorsque la température augmente. Les transitions électroniques inter bandes (entre bande de valence et bande de conduction), activées thermiquement, deviennent possibles (figure III.8) et si le gap est petit ($E_g > 1 \text{ eV}$), on a un état

semi-conducteur. Si le gap est très grand ($8 \text{ d } E_g \text{ d } 10 \text{ eV}$), comme c'est le cas des matériaux traités ici, alors il n'y a pratiquement pas d'activation électronique inter bande à la température ambiante. On a donc pour les matériaux purs à grand gap, un état isolant par manque de porteurs de charge dans la bande de conduction.

Lorsqu'on injecte des électrons dans la bande de conduction, la forte mobilité de ceux-ci (Tableau III.1) s'explique par le fait que les interactions électrons-électrons sont réduites à rien par suite de la faible densité de charges libres. Dans un isolant parfait et parfaitement pur, seule subsiste l'interaction électrons-phonons pour limiter la mobilité. Si le solide contient des impuretés, celles-ci réduiront également la mobilité par formation d'états localisés d'Anderson.

L'injection d'une charge va induire une polarisation du milieu environnant car aucun porteur libre n'est disponible pour écranter le champ créé et rétablir l'équilibre électrostatique.

CHAIPITRE IV

MODELISATION ET SIMULATION

I. INTRODUCTION :

La méthode de Monte-Carlo, qui décrit bien les phénomènes aléatoires, est ici appliquée à calculer les trajectoires des électrons du faisceau au cours de son parcours dans la chambre d'analyse et la détermination des trajectoires électroniques de l'interaction électron- matière.

On en déduit simultanément les différents paramètres qui résultent de l'interaction électron-gaz et l'interaction électron- matériau. Le principe correspond à une méthode de tirage statistique d'événements.

Suite à un choc, la direction de l'électron primaire et son énergie sont modifiées. Entre deux événements, la moyenne du trajet rectiligne est appelée "libre parcours moyen" (noté λ_e).

II. LA METHODE DE MONTE CARLO :

II.1. Définition et historique

L'événement le plus célèbre pendant la deuxième guerre mondiale était les expériences nucléaires. Puisque ces expériences coutaient très cher, les scientifiques ont adopté la simulation des réactions nucléaires. La méthode la plus souple pour ces simulations était celle de Monte Carlo, ce qui l'a rendu célèbre dans différents domaines :

- En mathématiques : le calcul d'intégrales multiples ...etc.
- En physique statistique microscopique : description du comportement des particules en interaction entre elles ou avec d'autre particules.

La méthode Monte Carlo est basée sur un tirage au hasard des nombres aléatoires dans un ensemble de valeurs équiprobables d'une manière analogue au jeu de la roulette dans lequel cette dernière s'arrête sur une case tirée au hasard parmi un ensemble de cases qui ont une probabilité égale à sortir.

II.2. Générateurs de nombres aléatoires :

L'efficacité d'un code de Monte Carlo dépend en grande partie de la qualité de son générateur de nombres aléatoires. Une séquence de nombres aléatoires de haute qualité doit être telle que l'occurrence de chaque nombre est imprévisible.

De nos jours, ces nombres sont générés sur ordinateur par un algorithme mathématique, d'où la qualification de nombres "pseudo-aléatoires". Généralement, les algorithmes générateurs de nombres aléatoires produisent des séquences qui finissent par se recouper, c'est à dire qu'ils ont une période finie.

Il est important de déterminer si cette période est suffisante pour la simulation à effectuer.

Il faut noter néanmoins qu'un cycle de nombres aléatoires peut se répéter sans qu'il y ait forcément un comportement périodique des résultats, si et seulement si les particules primaires ne sont pas simulées avec les mêmes nombres aléatoires ou que ces nombres aléatoires sont affectés à un autre type "d'événement" que le précédent.

En 1951, Von Neumann propose de prendre un nombre entier de $2k$ chiffres, de l'élever au carré et de prendre les $2k$ chiffres du milieu comme nombre aléatoire R (par exemple, $3317^2 = 11002489$ d'où $R=24$.) Mais cela s'avère être rapidement périodique, et de plus la période peut être courte. Au lieu de X_n^2 , Von Neumann essaya X_{n-1} , X_n avec de meilleurs résultats mais limités à cause des éléments neutres. Lehmer eut l'idée de conserver uniquement les chiffres de poids faible et aboutit à la forme congruentielle [52]:

$$X_{n+1} = aX_n + C \pmod{P}, R_n = X_n/P \quad (\text{IV.1})$$

Où R_n est le nombre aléatoire, P est le plus grand nombre possible pour ce genre d'opération sur la machine considérée, égal à 2^k avec k le nombre de bits représentant un entier. Ce type de générateur est un générateur de nombres aléatoires congruents linéaires. Lorsque la valeur de c de l'équation (II.1) est prise égale à 0, on a alors un générateur de nombre aléatoire congruents multiplicatif. Ces 2 méthodes sont largement étudiées et utilisées dans les codes de Monte Carlo (Marsaglia C et al. 1968, 1990).

Le générateur de nombres aléatoires employé dans notre code de calcul est un générateur de nombres pseudo-aléatoires dont l'algorithme, introduit en 1948 par D.H Lehmer, définit par [52]:

$$X_{n+1} = (129 * X_n + 907633385) \pmod{2^{32}}. \quad (\text{IV.2})$$

La fonction RAND de turbo pascal, produit des nombres sur 32 bits uniformément distribués entre (0,1) et sa période est de 10^{18} , ce qui est largement suffisant actuellement.

II.3. Méthodes d'échantillonnage :

L'opération élémentaire d'une procédure de Monte Carlo est liée à la sélection d'une variable (position, énergie, type d'interaction) à partir de sa distribution de probabilité. Cet échantillonnage des grandeurs d'intérêt est rendu possible grâce à l'utilisation des nombres aléatoires R précédemment évoqués. Un nombre aléatoire R est tiré dans l'intervalle (0,1).

III. MODELISATION DES TRAJECTOIRES ELECTRONIQUES DANS LES GAZ PAR LA METHODE MONTE-CARLO:

L'histoire d'une particule est considérée comme une séquence aléatoire d'interactions reproduites par l'échantillonnage des sections efficaces employées, au cours desquelles la particule change sa direction et perd de l'énergie.

III.1. Description de la génération des trajectoires :

Soit une particule d'énergie cinétique initiale E , de coordonnées $r(x,y,z)$ et de direction $d(u,v,w)$. Chaque trajectoire simulée est caractérisée par une série de données r_n, E_n, d_n où r_n est la position du n 'ième événement, E_n l'énergie et d_n l'ensemble des cosinus directeurs u, v, w du mouvement après ce n 'ième événement. Supposons qu'une trajectoire ait déjà été simulée jusqu'à l'état r_n, E_n, d_n . La longueur S du libre parcours jusqu'à la prochaine collision, le mécanisme de diffusion, le changement de direction et l'énergie perdue dans cette collision sont des variables aléatoires échantillonnées à partir des distributions de densité de probabilité correspondantes.

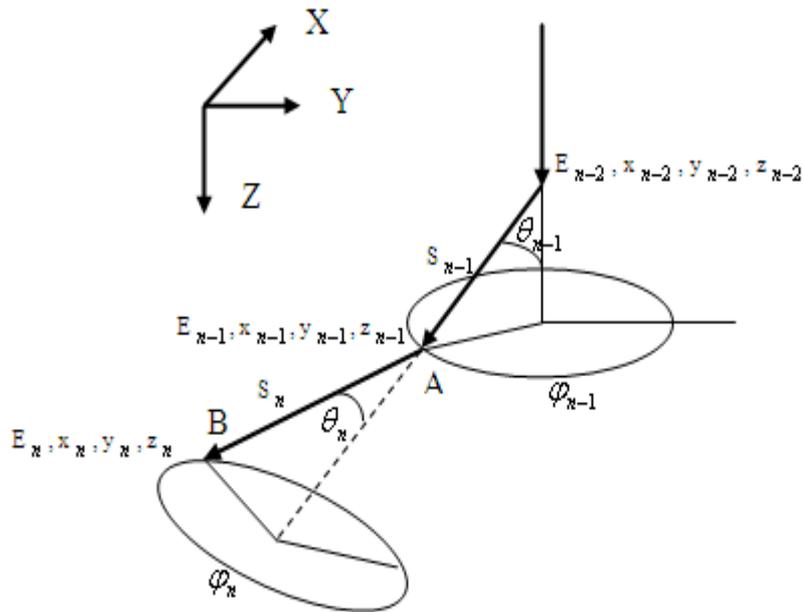


Figure IV. 1 : Elément caractéristique d'une étape de trajectoire d'un électron.

III.2. Description des collisions :

Dans le microscope électronique à balayage à haute pression, il existe une zone de transition près du PLA. Cela signifie que les électrons du faisceau primaire ne sont pas forcés à faire des collisions avec les molécules de gaz lors de leur première entrée dans la chambre d'analyse. Un choix pourrait être fait entre les deux solutions (collision avec une probabilité p , ou pas de collision) en choisissant un nombre aléatoire ($0 < \text{RND} < 1$) et en précisant que si $\text{RND} > p$, alors il n'y a pas de collision et l'électron suit son parcours sur une distance L_p , sinon, une collision se produit. La probabilité de collision p , est déterminée par [53]:

$$P = 1 - \exp[-L_p \Sigma(n\sigma_t(E))] \quad (\text{IV.3})$$

où n est la densité atomique (moléculaire) du gaz et $\sigma_t(E)$ est la section efficace totale de collision avec un atome ou molécule. Cette équation est seulement valide quand L_p est petit ainsi l'énergie reste constante au cours de cette distance. L_p peut être défini comme le libre parcours moyen qui est la distance moyenne parcourue par toutes les particules (atomes ou molécules) entre deux collisions mutuelles [39] :

$$L_p = \frac{114.5 \left(\frac{T}{M}\right)^{\frac{1}{2}} \eta}{P} \quad \text{(IV.4)}$$

Où η est la viscosité du gaz, T la température absolue, P la pression du gaz et M la masse molaire.

Dans cette simulation, et dans le cas d'un gaz monoatomique, la section efficace totale est divisée en deux composantes : section efficace élastique (σ_e) et inélastique (σ_i) :

$$\sigma_t(E) = \sigma_i(E) + \sigma_e(E) \quad \text{(IV.5)}$$

et la fraction de probabilité de chaque type de collision est calculé par :

$$\text{et :} \quad p_e = \sigma_e / \sigma_t \quad , \quad p_i = \sigma_i / \sigma_t \quad \text{(IV.6)}$$

Où p_e et p_i sont respectivement les probabilités de collision élastique et inélastique.

Dans le cas d'un gaz moléculaire, la section efficace inélastique est divisée en plusieurs réactions (voir chapitre II). Le type d'interaction ('Xn') est échantillonné à partir des distributions de probabilité d'occurrence du phénomène Xn :

$$P_{X1} = \sigma_{X1} / \sigma_t \dots \dots \dots \text{jusqu'à} \dots \dots \dots P_{Xn} = \sigma_{Xn} / \sigma_t \quad \text{(IV.7)}$$

La somme de ces fractions de probabilités, est égale à l'unité et un intervalle [0, 1], est divisé en segments de longueur proportionnelle à ces probabilités. La nature du type de collision est déterminée par la valeur d'un troisième nombre aléatoire en tombant soit dans la partie élastique ou inélastique.

III.3. Parcours électronique entre deux chocs

La distance entre deux chocs successifs est appelée "pas" et varie aléatoirement. La probabilité qu'un électron parcourt une distance s quand le libre parcours moyen est λ_e est donnée par :

$$p(s) = \frac{1}{\lambda_e} \exp\left(\frac{-s}{\lambda_e}\right) \quad \text{(IV.8)}$$

La fonction de répartition s'écrit alors :

$$f(s) = \frac{\int_0^s \exp(-\frac{s}{\lambda_e}).ds}{\int_0^\infty \exp(-\frac{s}{\lambda_e}).ds} \quad \text{(IV.9)}$$

En posant $f(s)=1-R_{n1}$ ou R_{n1} est un nombre aléatoire (fonction Radom) distribué uniformément sur l'intervalle] 0.1] et après intégration on obtient le pas [54] :

$$\text{Pas} = - \lambda_e \cdot \text{Ln}(R_{n1}) \quad \text{(IV.10)}$$

Avec $\lambda_e=1/n\sigma_x$ est le libre parcours moyen élastique ou inélastique, σ_x la section efficace de la réaction x (ionisations, excitation, élastique....etc.), et n étant le nombre d'éléments diffusants par unité de volume.

III. 4. Calcul des angles de diffusion θ et φ :

- cas d'He :

La fonction de répartition F (θ) de la variable aléatoire θ est par définition, la probabilité qu'un événement diffusant conduit à un angle de diffusion $0 \leq \theta_e \leq \theta$ [55], c'est à dire:

$$F(\theta) = \frac{\int_0^\theta \sigma(\theta).2\pi. \sin \theta.d\theta}{\sigma} \quad \text{(IV.11)}$$

Dans le cas ou la section efficace différentielle est connu comme dans le cas de l'hélium, le développement du calcul conduit à l'équation suivante pour la fonction de répartition:

$$F(\theta) = a.(1+a). \left[\frac{1}{a} - \frac{1}{\sin^2 \frac{\theta}{2} + a} \right] \quad \text{(IV.12)}$$

Avec $a = \sin^2 \left(\frac{\theta_0}{2} \right)$ (voir équations (II. 17), (II. 18)). Donc :

$$\theta = 0 \Rightarrow F(\theta) = 0$$

$$\theta = \pi \Rightarrow F(\pi) = 1$$

La forme mathématique de F (θ) permet de tirer de façon particulièrement simple l'angle de diffusion θ , suivant la loi de probabilité définit par $\sigma(\theta)$.

En effet, en générant une variable aléatoire R_{n2} répartie d'une façon uniforme sur l'intervalle $] 0, 1]$, on obtient :

$$\sin^2 \frac{\theta}{2} = \frac{a \cdot R_{n2}}{1 + a - R_{n2}} \quad (\text{IV.13})$$

Pour les angles de diffusion inélastique nous avons préféré de mettre la relation d'Egerton 1996 [56]:

$$\theta_i = \Delta E / E \quad (\text{IV.14})$$

Où ΔE est la perte d'énergie due aux collisions ionisantes.

E est l'énergie de l'électron après chaque collision.

L'angle azimutal (voir figure IV.1) est ensuite obtenu par simple tirage d'un nombre aléatoire R_{n3} distribué uniformément sur l'intervalle $] 0, 1]$

$$\varphi = 2\pi R_{n3} \quad (\text{IV.15})$$

REMARQUE :

Les équations IV.11 à IV.15 ont été utilisées pour le calcul des angles de diffusion pour He. Cependant, pour H₂O, nous n'avons pas pu mener les mêmes calculs en raison de l'indisponibilité des sections efficaces différentielles de diffusion nécessaires aux calculs. Pour cela nous avons choisi de travailler avec d'autres modèles :

- **Cas de H₂O :**

La direction de l'électron primaire après un choc inélastique est déterminée de la relation cinématique [52] suivante :

$$\sin^2 \theta = (2m_0 c^2 / (E - E_s) + 2m_0) (E_s / E) \quad (\text{IV.16})$$

E_s : énergie de l'électron secondaire, E : énergie de l'électron primaire, c la vitesse de la lumière et m_0 la masse de l'électron.

Après un choc élastique la direction du faisceau primaire est déterminée par la relation suivante [57] :

$$\text{Cos}\theta = (2\eta R_{n2}) / (1 + \eta - R_{n2}) \quad (\text{IV.17})$$

Où η est un paramètre d'écrantage donnée par $\eta = \eta_c \times 1.7 \times 10^{-5} Z^{2/3} \frac{1}{\tau(\tau + 2)}$ ou Z est le

nombre atomique effective de la molécule d'eau égale à 7.42, et $\tau = E/m_0c^2$, $\eta_c = 1.198$.

III. 5. Trajectoire de l'électron :

Une fois que l'électron entre en interaction avec la cible au point A (figure IV.2), il change de direction et s'enfonce dans le volume du gaz tout en cédant une partie de son énergie.

III. 5. a. Coordonnées de l'électron :

Les coordonnées initiales de l'électron à l'entrée de la cible sont choisies telles que :

$$\begin{cases} X = 0 \\ Y = 0 \\ Z = 0 \end{cases} \quad (\text{IV.18})$$

Si l'électron subit une interaction au point B après avoir parcouru le trajet s_n , les coordonnées du point B sont calculées par rapport à celles de A (figure IV. 2) suivant les relations [54] :

$$\begin{cases} x_n = x_{n-1} + s_n \cdot C_n^x \\ y_n = y_{n-1} + s_n \cdot C_n^y \\ z_n = z_{n-1} + s_n \cdot C_n^z \end{cases} \quad (\text{IV.19})$$

Les facteurs C_n^x, C_n^y et C_n^z représentent les cosinus directeurs du vecteur \vec{AB} :

$$\begin{cases} C_n^x = C_{n-1}^x \cdot \cos \theta_n + V_1 \cdot V_2 + C_{n-1}^x \cdot V_2 \cdot V_4 \\ C_n^y = C_{n-1}^y \cdot \cos \theta_n + V_4 (C_{n-1}^z \cdot V_1 - C_{n-1}^x \cdot V_2) \\ C_n^z = C_{n-1}^z \cdot \cos \theta_n + V_2 \cdot V_3 - C_{n-1}^y \cdot V_1 \cdot V_4 \end{cases} \quad (\text{IV.20})$$

avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} V_1 = \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{C_{n-1}^x}{C_{n-1}^z}\right)^2}} \cdot \sin \theta_n \\ V_2 = -\frac{C_{n-1}^x}{C_{n-1}^z} \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{C_{n-1}^x}{C_{n-1}^z}\right)^2}} \cdot \sin \theta_n \\ V_3 = \cos \varphi_n \\ V_4 = \sin \varphi_n \end{array} \right. \quad (\text{IV.21})$$

III. 5. b. Pouvoir d'arrêt :

Après une collision (élastique ou inélastique), l'électron perd une certaine quantité d'énergie suivant le type de collision et l'étape suivante dépendra de la quantité de cette perte :

Nous avons utilisé l'approximation de perte d'énergie de Bethe modifié par Joy et Luo par l'équation(III.2):

$$\frac{dE}{dS} = -78,500 \cdot \frac{\rho Z}{AE} \log \left(\frac{1,166E}{J} + 1 \right) \frac{\text{keV}}{\text{cm}}$$

VI. MODELISATION DES TRAGECTOIRES ELECTRONIQUES DANS LES MATERIAUX PAR LA METHODE MONTE-CARLO

VI.1 Principe de base :

La technique de Monte Carlo, comme appliquée dans le domaine de microscopie électronique, essaye de décrire la trajectoire qui prend l'électron par le solide. Bien qu'aucune trajectoire individuelle produite par la simulation ne représente une vraie trajectoire, si la physique des processus produits par l'électron est correctement modelée alors les prévisions basées sur un grand nombre de trajectoire décriront exactement les effets qui peuvent être expérimentalement observés. Afin de rendre ceux-ci le calcul possible, deux informations de base, l'angle de dispersion, par lequel l'électron est dispersé et la longueur moyenne d'étape entre deux événements successifs de dispersion indiqués l'énergie particulière d'incident sont exigées [Joy, 1995] [62].

Le principe de base de cette application est que la longueur de l'étape réitérée de base dans un tel calcul est habituellement placée comme une certaine fraction du chemin libre moyen (c.-à-d. la distance moyenne a traversé par une molécule entre les collisions, c'est un paramètre principal relié avec l'électron dispersant l'étude et le chemin libre moyen d'un électron dans un solide dépend fortement de sa énergie cinétique) pour l'élastique dispersant ("choisissez disperser Monte Carlo") ou une dispersion de multiple ("dispersion multiple Monte Carlo"). À partir du chemin libre moyen et du taux de déperdition d'énergie dus à la dispersion non élastique comme calculée avec les expressions de Bethe [Bethe et autres 1930] ou de Joy-Luo [Joy et autres 1989], la perte d'énergie peut être calculée le long du chemin de l'électron. Après que l'électron voyage une distance égale au chemin libre moyen, le prochain emplacement de dispersion est atteint, et un nouvel angle de dispersion est choisi pour la prochaine étape basée sur la nouvelle valeur de l'énergie.

Puisque l'angle élastique de dispersion peut prendre n'importe quelle valeur sur un éventail de 0 à 180 degrés, des nombres aléatoires sont employés avec un facteur pesant approprié pour produire la distribution statistique appropriée de la dispersion. En raison de l'utilisation étendue des nombres aléatoires dans la simulation, le nom "Monte Carlo" est appliqué à cette technique.

VI.2 Présentation du modèle original :

Il y a deux approximations principales basées sur lesquelles le modèle original a été établi.

1. seulement les événements élastiques de dispersion décrits par la section efficace de Rutherford sont significatifs en déterminant le chemin pris par n'importe quel électron donné car il se déplace par le solide, nous utilisons la section efficace de Rutherford σ_e [62] donnée ci-dessous:

$$\sigma_e(>\theta_0) = 1.62 \times 10^{-20} (Z^2 / E^2) \cot^2(\theta_0 / 2) \quad (\text{IV.28})$$

Où

θ_0 : est l'angle de diffusion, en radians

$\sigma_e (>\theta_0)$ indique la probabilité de diffusion d'un électron pour des angles supérieurs à θ_0 exprimé en cm^2 .

E : L'énergie du faisceau incident, est en keV.

Z : numéro atomique.

La dépendance en Z est due au fait que plus le nombre atomique n'est grand, le nombre de protons dans le noyau est grand et donc une attraction coulombienne très importante, il y a essentiellement deux genres de dispersion, d'élastique dispersant et dispersion non élastique. La dispersion d'élastique se produit quand les électrons repoussés par les électrons orbitaux du noyau tandis que subissent l'attraction de Coulomb du noyau franchement chargé de l'atome de cible. Pendant la dispersion élastique, une gamme étendue ($5^\circ \sim 180^\circ$) de disperser des angles pourrait être couverte [Edgerton 1986] [63], cependant seulement moins que la déperdition d'énergie 1eV de l'électron d'incident à l'atome de cible. D'autre part, la majorité des débâtements angulaires de produit non élastique de dispersion typiquement de 0.5° ou de moins, mais avec la grande fraction de la déperdition d'énergie. En conséquence la dispersion élastique domine en déterminant le chemin de la trajectoire des électrons et ignorer les effets non élastiques présente seulement l'erreur négligeable tout en considérablement réduisant le nombre de calculs qui peuvent être exigés.

2. On suppose que la déperdition d'énergie des électrons incidents est un processus continu le long de leur chemin à un taux déterminé par le rapport de Bethe 1930, et non le résultat des événements non élastiques discrets de dispersion. En réalité la déperdition d'énergie continue, telle que l'émission de rayonnement par freinage, et la déperdition d'énergie discrète comme des plasmons et la caractéristique radiographie l'excitation créée simultanément, ainsi la moyenne de Bethe ces processus de déperdition d'énergie et a créé le rapport de Bethe pour le modèle simple de dispersion [Bethe et autres 1930].

VI.3. Principe de dispersion multiple “plural scattering” :

Le modèle de dispersion multiple (plural scattering) est identique à ceux pour le modèle simple de dispersion (single scattering), mais l'exécution est nettement différente. Toute la longueur de la trajectoire d'électron dans l'échantillon est prise pour être R_B (Bethe range) l'équation III.3 (Chapitre III).

$$R_B = \int_0^{E_0} \left[\frac{-1}{\frac{dE}{ds}} \right] dE$$

$\frac{dE}{ds}$ est le pouvoir d'arrêt de Bethe donnée dans l'équation (III.1)

$$\frac{dE}{ds} = -78.500 \frac{\rho Z}{A_w E} \log\left(\frac{1.166E}{J}\right) \text{keV/cm}$$

R_B (Bethe range) est alors divisée en, typiquement, cinquante segments. Ceci assure que, à la différence du cas simple de dispersion, il y a une constante et un nombre relativement petit d'étapes informatiques liées à chaque trajectoire. $E[n]$, l'énergie de l'électron au début de la nième étape de la trajectoire, est trouvée en résolvant numériquement l'équation :

$$En = E_{n-1} - \int \left[\frac{dE}{ds} \right] ds \quad (\text{IV.29})$$

Là où E_{n-1} est l'énergie à P_{n-1} , ds le est le chemin a voyagé entre P_{n-1} et P_n (Figure IV.6) , et $\frac{dE}{ds}$ est la puissance d'arrêt modifiée de Bethe.

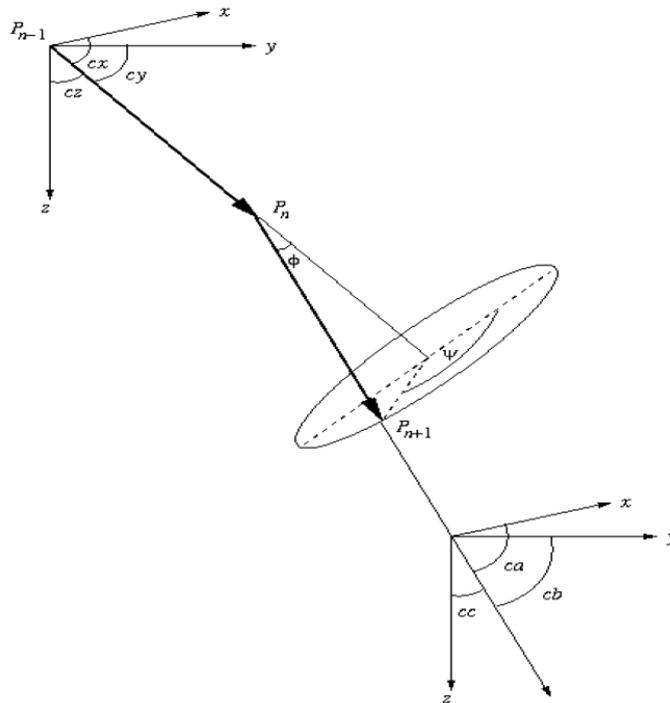


Figure IV.2 : Élément caractéristique d'une étape de trajectoire d'un électron [65].

Pour déterminer l'angle de diffusion, une formule de dispersion randomisée de type Rutherford peut être appliquée pour calculer un angle de diffusion pour chaque événement. Pour une telle dispersion, la formule proposée par Mykelbust et autres (1976) [66] est donnée par :

$$\tan\left(\frac{\phi}{2}\right) = \frac{F}{E} \left(\frac{1}{\sqrt{R_L}} - 1 \right) \quad (\text{IV.30})$$

\emptyset Représente l'angle de diffusion, E est l'énergie instantanée de l'électron (keV), et R_L est un nombre aléatoire dans l'intervalle $[0, 1]$. La quantité F incarne les paramètres p et b dans l'équation $\cot\left(\frac{\emptyset}{2}\right) = \frac{2b}{a}$, (obtenir la formule de le Rutherford de diffusion), et est donnée par:

$$F = 0.0072 \frac{ZE_0}{P_0} \text{(IV.31)}$$

Et

$$P_0 = 0.394Z^{0.4} \text{(IV.32)}$$

L'électron peut diffuser à n'importe quel point sur la base du cône dans figure (IV.5), l'angle de diffusion azimutal peut être calculé :

$$\psi = 2\pi R_L \text{(IV.33)}$$

R_L est un nouveau nombre aléatoire dans l'intervalle $[0, 1]$. Nous avons maintenant toute l'information (longueur d'étape, \emptyset d'angle de diffusion, et ψ azimutal d'angle) et nous devons rapporter P_{n+1} à P_n

CHAIPITRE IV

MODELISATION ET SIMULATION

I. INTRODUCTION :

La méthode de Monte-Carlo, qui décrit bien les phénomènes aléatoires, est ici appliquée à calculer les trajectoires des électrons du faisceau au cours de son parcours dans la chambre d'analyse et la détermination des trajectoires électroniques de l'interaction électron- matière.

On en déduit simultanément les différents paramètres qui résultent de l'interaction électron-gaz et l'interaction électron- matériau. Le principe correspond à une méthode de tirage statistique d'événements.

Suite à un choc, la direction de l'électron primaire et son énergie sont modifiées. Entre deux événements, la moyenne du trajet rectiligne est appelée "libre parcours moyen" (noté λ_c).

III.1. Description de la génération des trajectoires :

Soit une particule d'énergie cinétique initiale E , de coordonnées $r(x,y,z)$ et de direction $d(u,v,w)$. Chaque trajectoire simulée est caractérisée par une série de données r_n, E_n, d_n où r_n est la position du n 'ième événement, E_n l'énergie et d_n l'ensemble des cosinus directeurs u, v, w du mouvement après ce n 'ième événement. Supposons qu'une trajectoire ait déjà été simulée jusqu'à l'état r_n, E_n, d_n . La longueur S du libre parcours jusqu'à la prochaine collision, le mécanisme de diffusion, le changement de direction et l'énergie perdue dans cette collision sont des variables aléatoires échantillonnées à partir des distributions de densité de probabilité correspondantes.

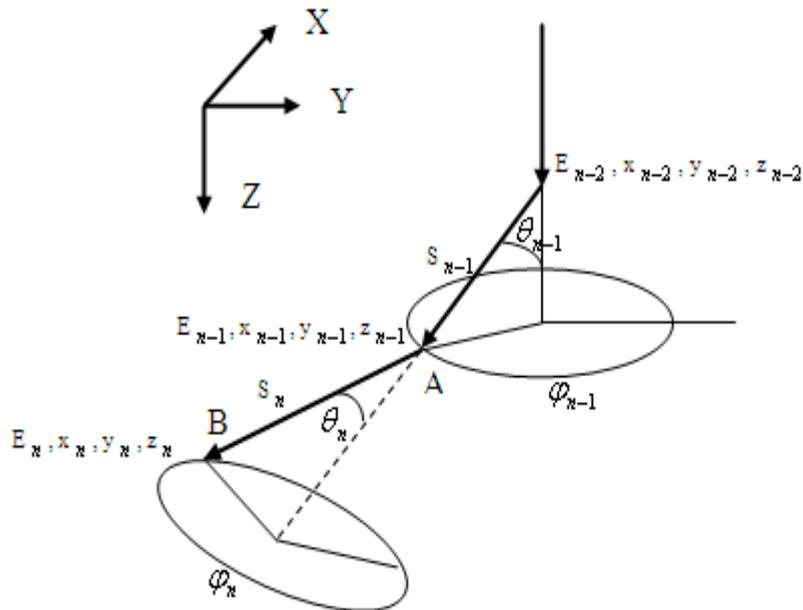


Figure IV. 1 : Elément caractéristique d'une étape de trajectoire d'un électron.

III.2. Description des collisions :

Dans le microscope électronique à balayage à haute pression, il existe une zone de transition près du PLA. Cela signifie que les électrons du faisceau primaire ne sont pas forcés à faire des collisions avec les molécules de gaz lors de leur première entrée dans la chambre d'analyse. Un choix pourrait être fait entre les deux solutions (collision avec une probabilité p , ou pas de collision) en choisissant un nombre aléatoire ($0 < \text{RND} < 1$) et en précisant que si $\text{RND} > p$, alors il n'y a pas de collision et l'électron suit son parcours sur une distance L_p , sinon, une collision se produit. La probabilité de collision p , est déterminée par [53]:

$$P = 1 - \exp[-L_p \Sigma(n\sigma_t(E))] \quad (\text{IV.3})$$

où n est la densité atomique (moléculaire) du gaz et $\sigma_t(E)$ est la section efficace totale de collision avec un atome ou molécule. Cette équation est seulement valide quand L_p est petit ainsi l'énergie reste constante au cours de cette distance. L_p peut être défini comme le libre parcours moyen qui est la distance moyenne parcourue par toutes les particules (atomes ou molécules) entre deux collisions mutuelles [39] :

$$L_p = \frac{114.5 \left(\frac{T}{M}\right)^{\frac{1}{2}} \eta}{P} \quad (\text{IV.4})$$

Où η est la viscosité du gaz, T la température absolue, P la pression du gaz et M la masse molaire.

Dans cette simulation, et dans le cas d'un gaz monoatomique, la section efficace totale est divisée en deux composantes : section efficace élastique (σ_e) et inélastique (σ_i) :

$$\sigma_t(E) = \sigma_i(E) + \sigma_e(E) \quad (\text{IV.5})$$

et la fraction de probabilité de chaque type de collision est calculé par :

$$\text{et :} \quad p_e = \sigma_e / \sigma_t \quad , \quad p_i = \sigma_i / \sigma_t \quad (\text{IV.6})$$

Où p_e et p_i sont respectivement les probabilités de collision élastique et inélastique.

Dans le cas d'un gaz moléculaire, la section efficace inélastique est divisée en plusieurs réactions (voir chapitre II). Le type d'interaction ('Xn') est échantillonné à partir des distributions de probabilité d'occurrence du phénomène Xn :

$$P_{X1} = \sigma_{X1} / \sigma_t \dots \dots \dots \text{jusqu'à} \dots \dots \dots P_{Xn} = \sigma_{Xn} / \sigma_t \quad (\text{IV.7})$$

La somme de ces fractions de probabilités, est égale à l'unité et un intervalle [0, 1], est divisé en segments de longueur proportionnelle à ces probabilités. La nature du type de collision est déterminée par la valeur d'un troisième nombre aléatoire en tombant soit dans la partie élastique ou inélastique.

III.3. Parcours électronique entre deux chocs

La distance entre deux chocs successifs est appelée "pas" et varie aléatoirement. La probabilité qu'un électron parcourt une distance s quand le libre parcours moyen est λ_e est donnée par :

$$p(s) = \frac{1}{\lambda_e} \exp\left(\frac{-s}{\lambda_e}\right) \quad (\text{IV.8})$$

La fonction de répartition s'écrit alors :

$$f(s) = \frac{\int_0^s \exp\left(-\frac{s}{\lambda_e}\right).ds}{\int_0^\infty \exp\left(-\frac{s}{\lambda_e}\right).ds} \quad (\text{IV.9})$$

En posant $f(s)=1-R_{n1}$ ou R_{n1} est un nombre aléatoire (fonction Radom) distribué uniformément sur l'intervalle] 0.1] et après intégration on obtient le pas [54] :

$$\text{Pas} = - \lambda_e \cdot \text{Ln}(R_{n1}) \quad (\text{IV.10})$$

Avec $\lambda_e=1/n\sigma_x$ est le libre parcours moyen élastique ou inélastique, σ_x la section efficace de la réaction x (ionisations, excitation, élastique....etc.), et n étant le nombre d'éléments diffusants par unité de volume.

III. 4. Calcul des angles de diffusion θ et φ :

- cas d'He :

La fonction de répartition F (θ) de la variable aléatoire θ est par définition, la probabilité qu'un événement diffusant conduit à un angle de diffusion $0 \leq \theta_e \leq \theta$ [55], c'est à dire:

$$F(\theta) = \frac{\int_0^\theta \sigma(\theta).2\pi \cdot \sin \theta.d\theta}{\sigma} \quad (\text{IV.11})$$

Dans le cas ou la section efficace différentielle est connu comme dans le cas de l'hélium, le développement du calcul conduit à l'équation suivante pour la fonction de répartition:

$$F(\theta) = a.(1+a) \cdot \left[\frac{1}{a} - \frac{1}{\sin^2 \frac{\theta}{2} + a} \right] \quad (\text{IV.12})$$

Avec $a = \sin^2\left(\frac{\theta_0}{2}\right)$ (voir équations (II. 17), (II. 18)). Donc :

$$\theta = 0 \Rightarrow F(\theta) = 0$$

$$\theta = \pi \Rightarrow F(\pi) = 1$$

La forme mathématique de F (θ) permet de tirer de façon particulièrement simple l'angle de diffusion θ , suivant la loi de probabilité définit par $\sigma(\theta)$.

En effet, en générant une variable aléatoire R_{n2} répartie d'une façon uniforme sur l'intervalle] 0, 1], on obtient :

$$\sin^2 \frac{\theta}{2} = \frac{a \cdot R_{n2}}{1 + a - R_{n2}} \quad (\text{IV.13})$$

Pour les angles de diffusion inélastique nous avons préféré de mettre la relation d'Egerton 1996 [56]:

$$\theta_i = \Delta E / E \quad (\text{IV.14})$$

Où ΔE est la perte d'énergie due aux collisions ionisantes.

E est l'énergie de l'électron après chaque collision.

L'angle azimutal (voir figure IV.1) est ensuite obtenu par simple tirage d'un nombre aléatoire R_{n3} distribué uniformément sur l'intervalle] 0, 1]

$$\varphi = 2\pi R_{n3} \quad (\text{IV.15})$$

REMARQUE :

Les équations IV.11 à IV.15 ont été utilisées pour le calcul des angles de diffusion pour He. Cependant, pour H_2O , nous n'avons pas pu mener les mêmes calculs en raison de l'indisponibilité des sections efficaces différentielles de diffusion nécessaires aux calculs. Pour cela nous avons choisi de travailler avec d'autres modèles :

- **Cas de H_2O :**

La direction de l'électron primaire après un choc inélastique est déterminée de la relation cinématique [52] suivante :

$$\sin^2 \theta = (2m_0 c^2 / (E - E_s) + 2m_0) (E_s / E) \quad (\text{IV.16})$$

E_s : énergie de l'électron secondaire, E : énergie de l'électron primaire, c la vitesse de la lumière et m_0 la masse de l'électron.

Après un choc élastique la direction du faisceau primaire est déterminée par la relation suivante [57] :

$$\text{Cos}\theta = (2\eta R_{n2}) / (1 + \eta - R_{n2}) \quad (\text{IV.17})$$

Où η est un paramètre d'écrantage donnée par $\eta = \eta_c \times 1.7 \times 10^{-5} Z^{2/3} \frac{1}{\tau(\tau + 2)}$ ou Z est le

nombre atomique effective de la molécule d'eau égale à 7.42, et $\tau = E/m_0c^2$, $\eta_c = 1.198$.

III. 5. Trajectoire de l'électron :

Une fois que l'électron entre en interaction avec la cible au point A (figure IV.2), il change de direction et s'enfonce dans le volume du gaz tout en cédant une partie de son énergie.

III. 5. a. Coordonnées de l'électron :

Les coordonnées initiales de l'électron à l'entrée de la cible sont choisies telles que :

$$\begin{cases} X = 0 \\ Y = 0 \\ Z = 0 \end{cases} \quad (\text{IV.18})$$

Si l'électron subit une interaction au point B après avoir parcouru le trajet s_n , les coordonnées du point B sont calculées par rapport à celles de A (figure IV. 2) suivant les relations [54] :

$$\begin{cases} x_n = x_{n-1} + s_n \cdot C_n^x \\ y_n = y_{n-1} + s_n \cdot C_n^y \\ z_n = z_{n-1} + s_n \cdot C_n^z \end{cases} \quad (\text{IV.19})$$

Les facteurs C_n^x, C_n^y et C_n^z représentent les cosinus directeurs du vecteur \vec{AB} :

$$\begin{cases} C_n^x = C_{n-1}^x \cdot \cos \theta_n + V_1 \cdot V_2 + C_{n-1}^x \cdot V_2 \cdot V_4 \\ C_n^y = C_{n-1}^y \cdot \cos \theta_n + V_4 (C_{n-1}^z \cdot V_1 - C_{n-1}^x \cdot V_2) \\ C_n^z = C_{n-1}^z \cdot \cos \theta_n + V_2 \cdot V_3 - C_{n-1}^y \cdot V_1 \cdot V_4 \end{cases} \quad (\text{IV.20})$$

avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} V_1 = \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{C_{n-1}^x}{C_{n-1}^z}\right)^2}} \cdot \sin \theta_n \\ V_2 = -\frac{C_{n-1}^x}{C_{n-1}^z} \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{C_{n-1}^x}{C_{n-1}^z}\right)^2}} \cdot \sin \theta_n \\ V_3 = \cos \varphi_n \\ V_4 = \sin \varphi_n \end{array} \right. \quad (\text{IV.21})$$

III. 5. b. Pouvoir d'arrêt :

Après une collision (élastique ou inélastique), l'électron perd une certaine quantité d'énergie suivant le type de collision et l'étape suivante dépendra de la quantité de cette perte :

Nous avons utilisé l'approximation de perte d'énergie de Bethe modifié par Joy et Luo par l'équation(III.2):

$$\frac{dE}{dS} = -78,500 \cdot \frac{\rho Z}{AE} \log \left(\frac{1,166E}{J} + 1 \right) \frac{\text{keV}}{\text{cm}}$$

VI. MODELISATION DES TRAJECTOIRES ELECTRONIQUES DANS LES MATERIAUX PAR LA METHODE MONTE-CARLO

VI.1 Principe de base :

La technique de Monte Carlo, comme appliquée dans le domaine de microscopie électronique, essaye de décrire la trajectoire qui prend l'électron par le solide. Bien qu'aucune trajectoire individuelle produite par la simulation ne représente une vraie trajectoire, si la physique des processus produits par l'électron est correctement modélisée alors les prévisions basées sur un grand nombre de trajectoire décriront exactement les effets qui peuvent être expérimentalement observés. Afin de rendre ceux-ci le calcul possible, deux informations de base, l'angle de dispersion, par lequel l'électron est dispersé et la longueur moyenne d'étape entre deux

événements successifs de dispersion indiqués l'énergie particulière d'incident sont exigées [Joy, 1995] [62].

Le principe de base de cette application est que la longueur de l'étape réitérée de base dans un tel calcul est habituellement placée comme une certaine fraction du chemin libre moyen (c.-à-d. la distance moyenne traversée par une molécule entre les collisions, c'est un paramètre principal relié avec l'électron dispersant l'étude et le chemin libre moyen d'un électron dans un solide dépend fortement de sa énergie cinétique) pour l'élastique dispersant ("choisissez disperser Monte Carlo") ou une dispersion de multiple ("dispersion multiple Monte Carlo"). À partir du chemin libre moyen et du taux de déperdition d'énergie dus à la dispersion non élastique comme calculée avec les expressions de Bethe [Bethe et autres 1930] ou de Joy-Luo [Joy et autres 1989], la perte d'énergie peut être calculée le long du chemin de l'électron. Après que l'électron voyage une distance égale au chemin libre moyen, le prochain emplacement de dispersion est atteint, et un nouvel angle de dispersion est choisi pour la prochaine étape basée sur la nouvelle valeur de l'énergie.

Puisque l'angle élastique de dispersion peut prendre n'importe quelle valeur sur un éventail de 0 à 180 degrés, des nombres aléatoires sont employés avec un facteur pesant approprié pour produire la distribution statistique appropriée de la dispersion. En raison de l'utilisation étendue des nombres aléatoires dans la simulation, le nom "Monte Carlo" est appliqué à cette technique.

VI.2 Présentation du modèle original :

Il y a deux approximations principales basées sur lesquelles le modèle original a été établi.

1. seulement les événements élastiques de dispersion décrits par la section efficace de Rutherford sont significatifs en déterminant le chemin pris par n'importe quel électron donné car il se déplace par le solide, nous utilisons la section efficace de Rutherford σ_e [62] donnée ci-dessous:

$$\sigma_e(> \theta_0) = 1.62 \times 10^{-20} (Z^2 / E^2) \cot^2(\theta_0 / 2) \quad (\text{IV.28})$$

Où

θ_0 : est l'angle de diffusion, en radians

$\sigma_e (> \theta_0)$ indique la probabilité de diffusion d'un électron pour des angles supérieurs à θ_0 exprimé en cm^2 .

E : L'énergie du faisceau incident, est en keV.

Z : numéro atomique.

La dépendance en Z est due au fait que plus le nombre atomique n'est grand, le nombre de protons dans le noyau est grand et donc une attraction coulombienne très importante, il y a essentiellement deux genres de dispersion, d'élastique dispersant et dispersion non élastique. La dispersion d'élastique se produit quand les électrons repoussés par les électrons orbitaux du noyau tandis que subissent l'attraction de Coulomb du noyau franchement chargé de l'atome de cible. Pendant la dispersion élastique, une gamme étendue ($5^\circ \sim 180^\circ$) de disperser des angles pourrait être couverte [Edgerton 1986] [63], cependant seulement moins que la déperdition d'énergie 1eV de l'électron d'incident à l'atome de cible. D'autre part, la majorité des déviations angulaires de produit non élastique de dispersion typiquement de 0.5° ou de moins, mais avec la grande fraction de la déperdition d'énergie. En conséquence la dispersion élastique domine en déterminant le chemin de la trajectoire des électrons et ignorer les effets non élastiques présente seulement l'erreur négligeable tout en considérablement réduisant le nombre de calculs qui peuvent être exigés.

2. On suppose que la déperdition d'énergie des électrons incidents est un processus continu le long de leur chemin à un taux déterminé par le rapport de Bethe 1930, et non le résultat des événements non élastiques discrets de dispersion. En réalité la déperdition d'énergie continue, telle que l'émission de rayonnement par freinage, et la déperdition d'énergie discrète comme des plasmons et la caractéristique radiographie l'excitation créée simultanément, ainsi la moyenne de Bethe ces processus de déperdition d'énergie et a créé le rapport de Bethe pour le modèle simple de dispersion [Bethe et autres 1930].

VI.3. Principe de dispersion multiple “plural scattering” :

Le modèle de dispersion multiple (plural scattering) est identique à ceux pour le modèle simple de dispersion (single scattering), mais l'exécution est nettement différente. Toute la longueur de la trajectoire d'électron dans l'échantillon est prise pour être R_B (Bethe range) l'équation III.3 (Chapitre III).

$$R_B = \int_0^{E_0} \left[\frac{-1}{\frac{dE}{ds}} \right] dE$$

$\frac{dE}{ds}$ est le pouvoir d'arrêt de Bethe donnée dans l'équation (III.1)

$$\frac{dE}{ds} = -78.500 \frac{\rho Z}{A_w E} \log\left(\frac{1.166E}{J}\right) \text{keV/cm}$$

R_B (Bethe range) est alors divisée en, typiquement, cinquante segments. Ceci assure que, à la différence du cas simple de dispersion, il y a une constante et un nombre relativement petit d'étapes informatiques liées à chaque trajectoire. $E[n]$, l'énergie de l'électron au début de la n ème étape de la trajectoire, est trouvée en résolvant numériquement l'équation :

$$E_n = E_{n-1} - \int \left[\frac{dE}{ds} \right] ds \quad \text{(IV.29)}$$

Là où E_{n-1} est l'énergie à P_{n-1} , ds le est le chemin a voyagé entre P_{n-1} et P_n (Figure IV.6) , et $\frac{dE}{ds}$ est la puissance d'arrêt modifiée de Bethe.

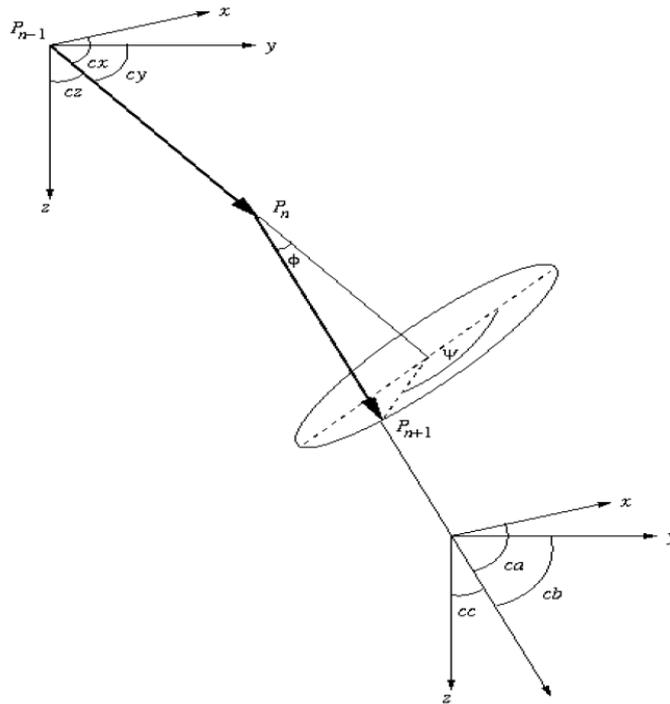


Figure IV.2 : Elément caractéristique d'une étape de trajectoire d'un électron [65].

Pour déterminer l'angle de diffusion, une formule de dispersion randomisée de type Rutherford peut être appliquée pour calculer un angle de diffusion pour chaque événement. Pour une telle dispersion, la formule proposée par Mykelbust et autres (1976) [66] est donnée par :

$$\tan\left(\frac{\varnothing}{2}\right) = \frac{F}{E} \left(\frac{1}{\sqrt{R_L}} - 1 \right) \quad \text{(IV.30)}$$

\varnothing Représente l'angle de diffusion, E est l'énergie instantanée de l'électron (keV), et R_L est un nombre aléatoire dans l'intervalle $[0, 1]$. La quantité F incarne les paramètres p et b dans l'équation $\cot\left(\frac{\varnothing}{2}\right) = \frac{2b}{d}$, (obtenir la formule de le Rutherford de diffusion), et est donnée par:

$$F = 0.0072 \frac{ZE_0}{P_0} \quad \text{(IV.31)}$$

Et

$$P_0 = 0.394Z^{0.4} \quad \text{(IV.32)}$$

L'électron peut diffuser à n'importe quel point sur la base du cône dans figure (IV.5), l'angle de diffusion azimutal peut être calculé :

$$\psi = 2\pi R_L \quad (\text{IV.33})$$

R_L est un nouveau nombre aléatoire dans l'intervalle $[0, 1]$. Nous avons maintenant toute l'information (longueur d'étape, \emptyset d'angle de diffusion, et ψ azimutal d'angle) et nous devons rapporter P_{n+1} à P_n

CHAPITRE V

RESULTATS ET INTERPRETATIONS

I. INTRODUCTION

Dans ce chapitre, nous exposons les applications de la méthode de Monte Carlo pour la détermination des trajectoires électroniques lors de l'interaction électron-matière, après passage de l'électron par une masse gazeuse. Pour cela, nous avons choisi comme matériaux isolants, les oxydes suivants: Oxyde d'aluminium Al_2O_3 , et Oxyde de cuivre CuO (numéro atomique plus grand). On présentera les résultats de calcul concernant : les pourcentages des électrons rétrodiffusés en fonction de la pression, la tension d'accélération, et la distance de travail. Chaque calcul a été effectué pour 10^4 trajectoires électroniques. Nous avons choisi deux gaz, l'un (vapeur d'eau) connu pour son excellent taux d'ionisation, l'autre (hélium) pour sa faible dispersion.

II. RESULTATS RELATIFS AUX INTERACTIONS ELECTRON-MATIERE (SOUS VIDE). APPLICATION AU Al_2O_3 et CUO

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés aux résultats de l'interaction du faisceau d'électrons avec la matière, le faisceau se propageant dans le vide (cas du SEM conventionnel). Pour cela, nous avons choisi un isolant suivants, Al_2O_3 , et CuO. Du point de vue calcul, nous avons utilisé notre programme en affectant une valeur $P=10^{-3}$ Pa à la pression du gaz.

III.1. Influence de la nature chimique du matériau :

Les figures (V.1 et V.2) illustrent l'effet de la nature chimique de matériau sur la pénétration des électrons dans les échantillons Al_2O_3 et CuO.

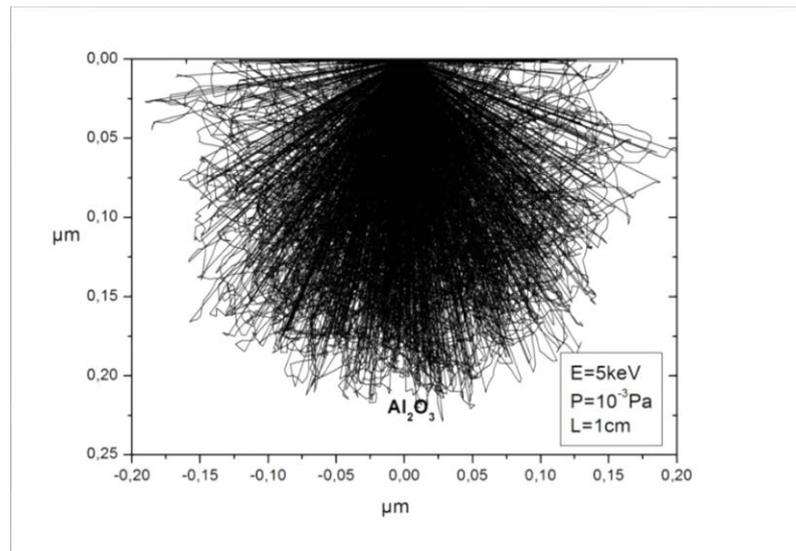


Figure V.1: Trajectoires électroniques à incidence normale de Al_2O_3 ($Z=10$) dans le vide pour $E = 5\text{keV}$

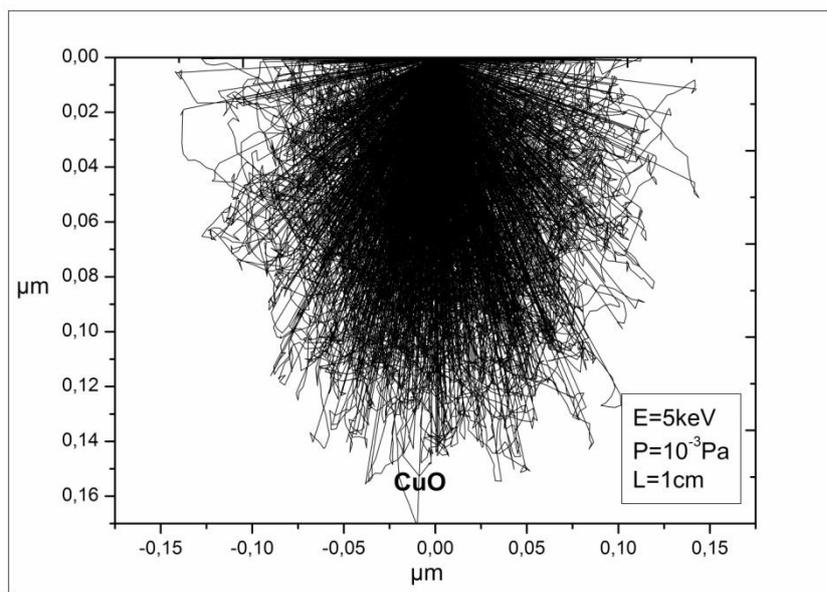


Figure V.2: Trajectoires électroniques à incidence normale de CuO ($Z=18,5$) dans le vide pour $E = 5\text{keV}$

On observe que quand le nombre atomique augmente, le volume de génération diminue et les électrons ne pénètrent pas plus profondément dans le volume de l'échantillon.

Chapitre V résultats et interprétation

Le libre parcours moyen λ_e des électrons est inversement proportionnel à la section efficace σ_e qui est proportionnel au numéro atomique Z de matériau (chapitre 4) donc si le numéro atomique augmente, la profondeur de pénétration diminue.

III.2. Influence de l'énergie incidente :

De la même manière que précédemment, on fait varier l'énergie incidente entre 5 keV et 25 keV.

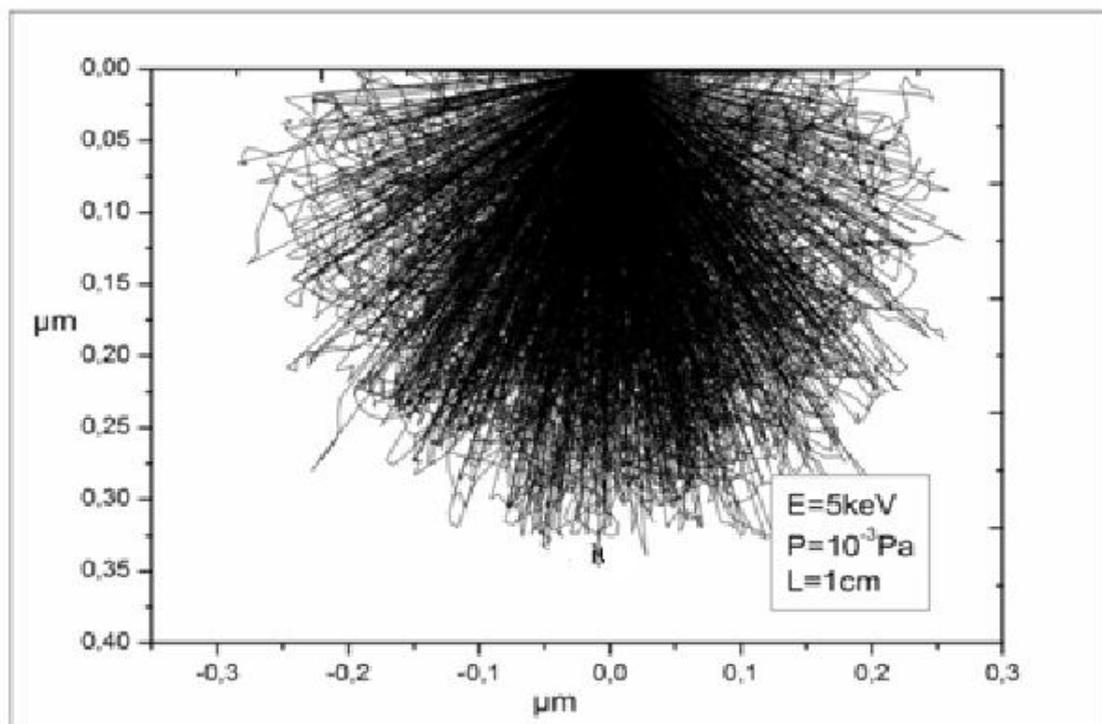


Figure V.3: Trajectoires électroniques à incidence normale de Al_2O_3 dans le vide pour $E = 5\text{keV}$

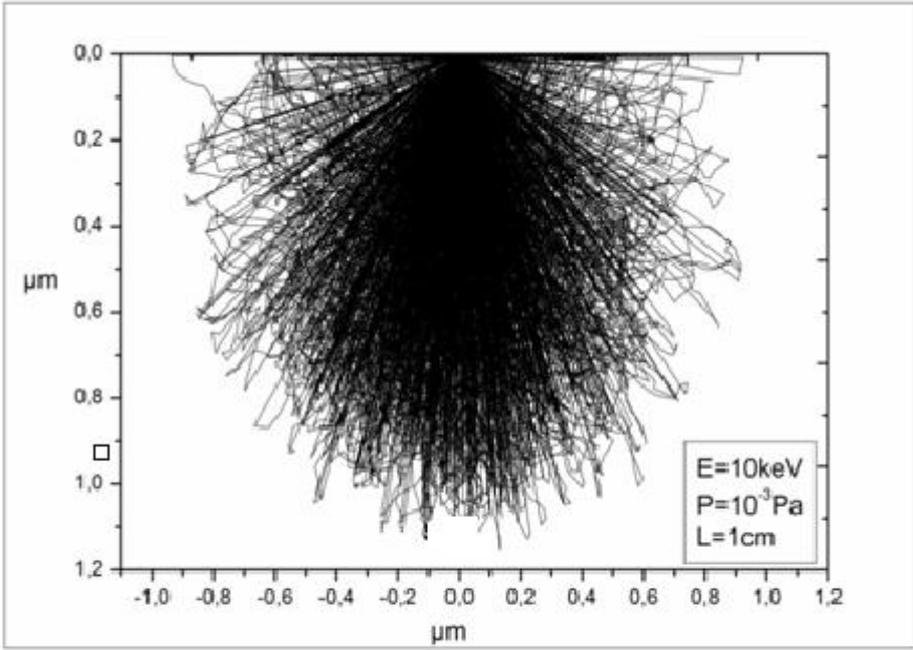


Figure V.4: Trajectoires électroniques à incidence normale de Al_2O_3 dans le vide pour $E=10\text{keV}$

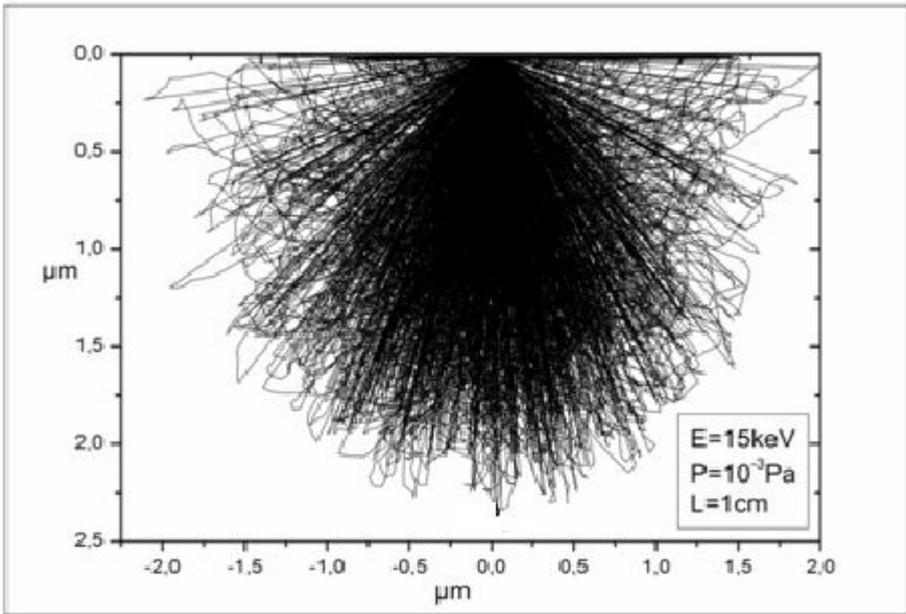


Figure V.5: Trajectoires électroniques à incidence normale de Al_2O_3 dans le vide pour $E=15\text{keV}$

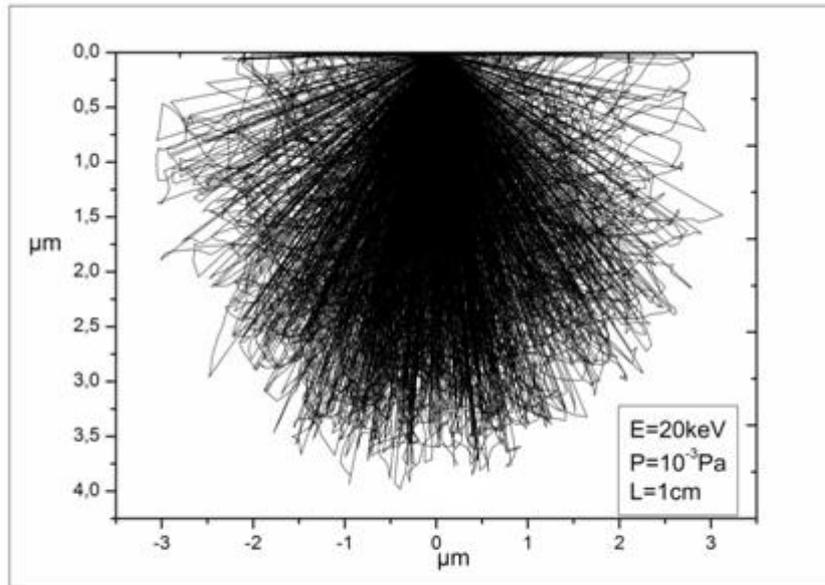


Figure V.6: Trajectoires électroniques à incidence normale de Al_2O_3 dans le vide pour $E = 20\text{keV}$

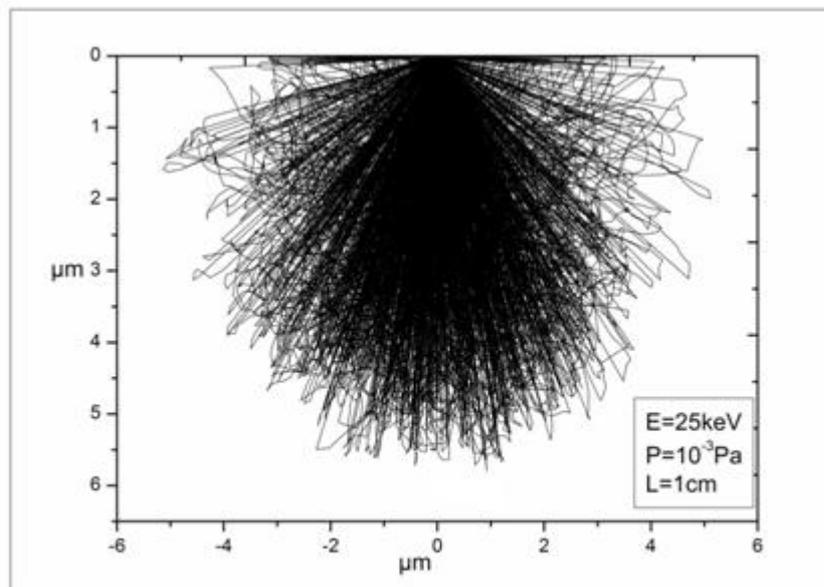


Figure V.7: Trajectoires électroniques à incidence normale de Al_2O_3 dans le vide pour $E = 25\text{keV}$

Les figures (V.3, V.7) illustrent la variation du volume de génération pour diverses énergies incidentes (le faisceau incident est normal à la surface de balayage).

On observe que quand l'énergie incidente augmente la profondeur de pénétration augmente.

Le libre parcours moyen λ_e des électrons est inversement proportionnel à la section efficace σ_e , et la section efficace σ_e est inversement proportionnelle à l'énergie incidente de l'électron, (chapitre IV), donc le libre parcours moyen λ_e est proportionnel à l'énergie incidente.

D'autre part, on a précisé que notre modèle repose sur des collisions élastiques et inélastiques, Les premières donnent une déviation angulaire et les deuxièmes donnent une perte d'énergie. Donc l'électron dès son interaction avec l'échantillon commence à perdre de l'énergie après chaque étape. Logiquement, si l'énergie incidente est grande, l'électron pourra pénétrer profondément dans la l'échantillon.

IV. EFFET DE LA PRESENCE DU GAZ SUR LE VOLUME D'INTERACTION (LA POIRE D'INTERACTION)

Nous pensons qu'il est intéressant de commencer cette étude sur l'effet du gaz par examiner cet effet sur le volume et la forme de la poire d'interaction. Pour cela, nous avons pris deux gaz : la vapeur d'eau de l'hélium et deux oxydes : Al_2O_3 et CuO . Afin d'étudier l'effet de la pression, nous avons effectué nos calculs d'abord pour 5 keV, puis à plus grande énergie (25 keV). Nous avons pris une pression $P=533Pa$ (4 Torr) et une distance de travail moyenne de 1 cm.

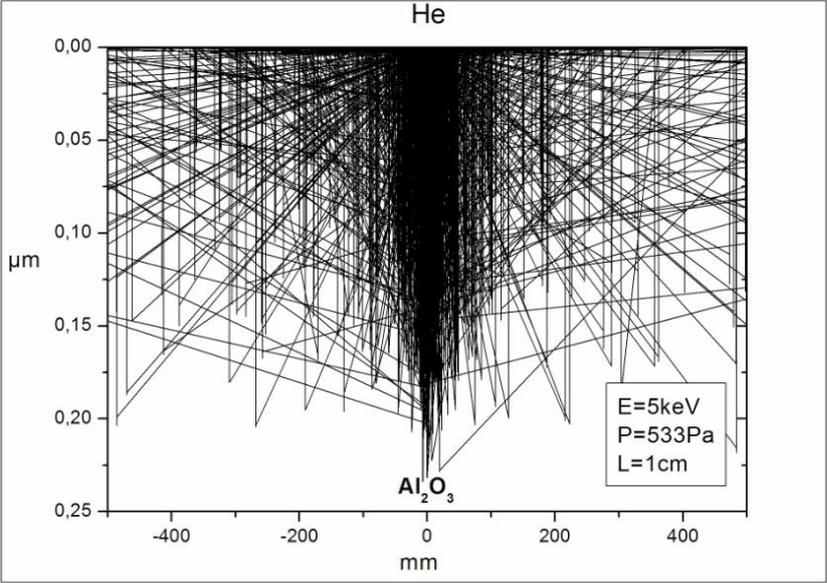


Figure V.8: Trajectoires électroniques de Al_2O_3 P=533Pa, E =5keV

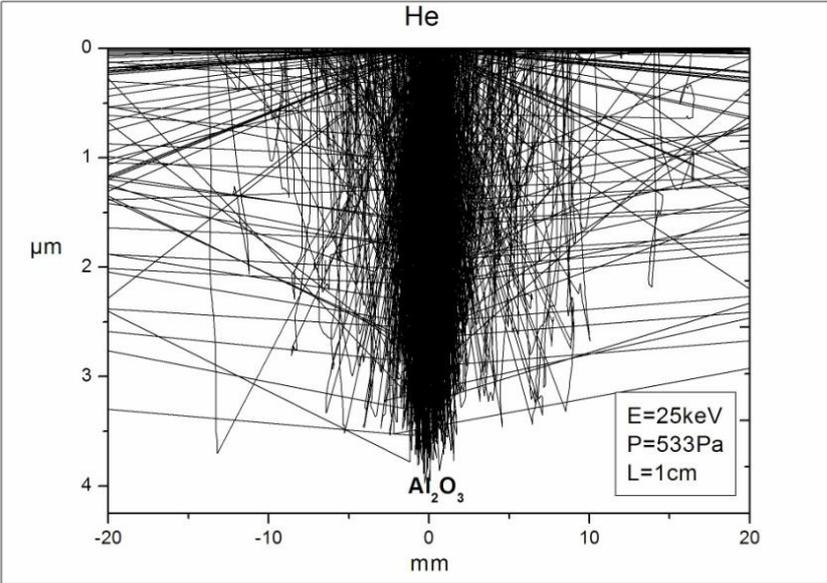


Figure V.9: Trajectoires électroniques de Al_2O_3 P=533Pa, E =25keV

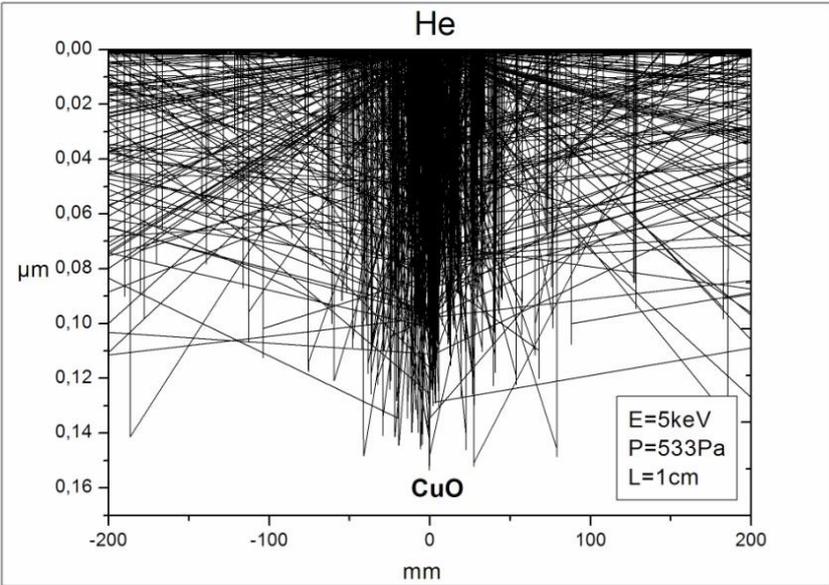


Figure V.10: Trajectoires électroniques de CuO $P=533\text{Pa}$, $E =5\text{keV}$

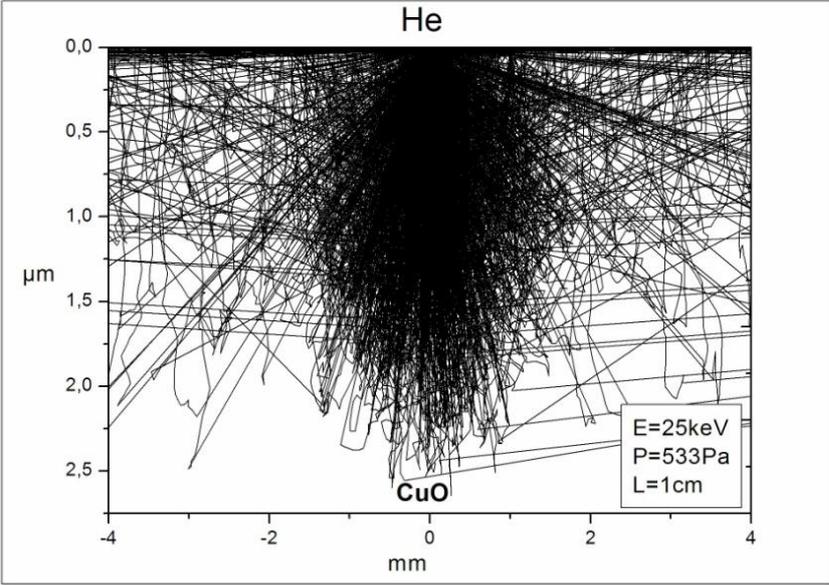


Figure V.11:Trajectoires électroniques de CuO $P=533\text{Pa}$, $E =25\text{keV}$

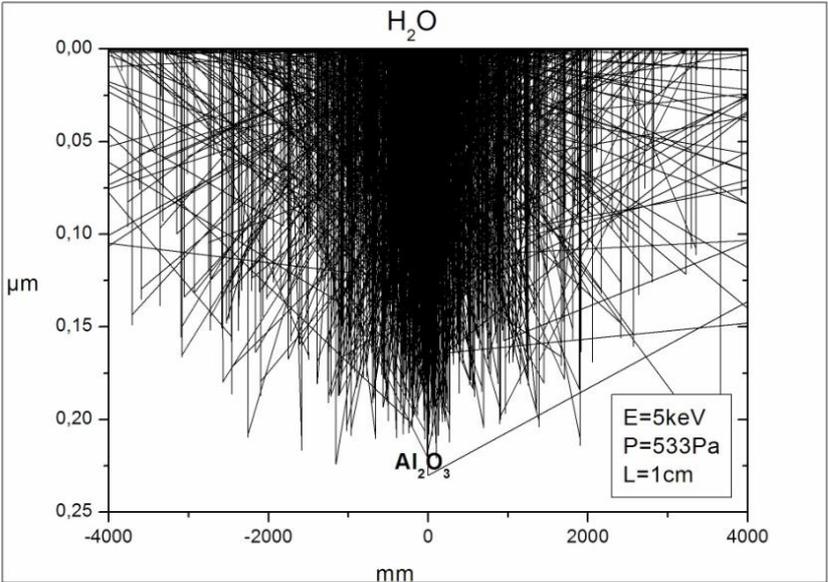


Figure V.12:Trajectoires électroniques de Al_2O_3 $P=533\text{Pa}$, $E =5\text{keV}$

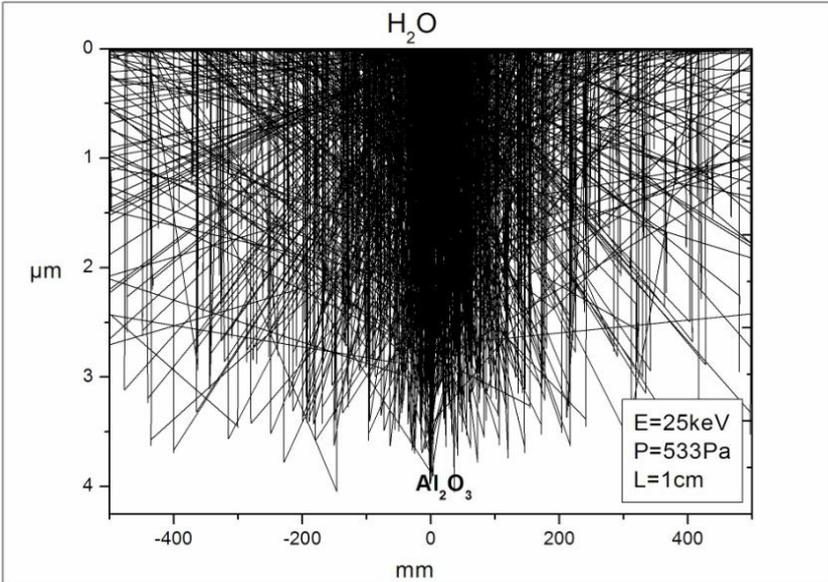


Figure V.13:Trajectoires électroniques de Al_2O_3 $P=533\text{Pa}$, $E =25\text{keV}$

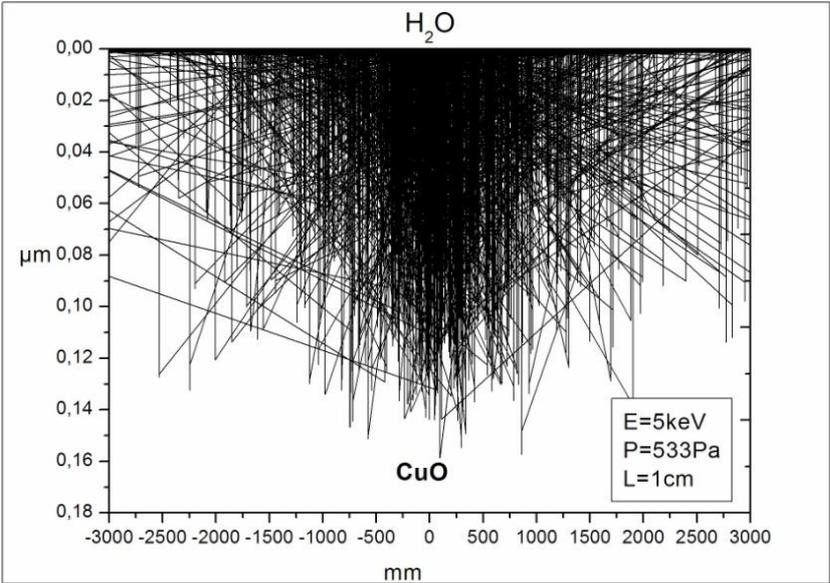


Figure V.14:Trajectoires électroniques de CuO P=533Pa, E =5keV

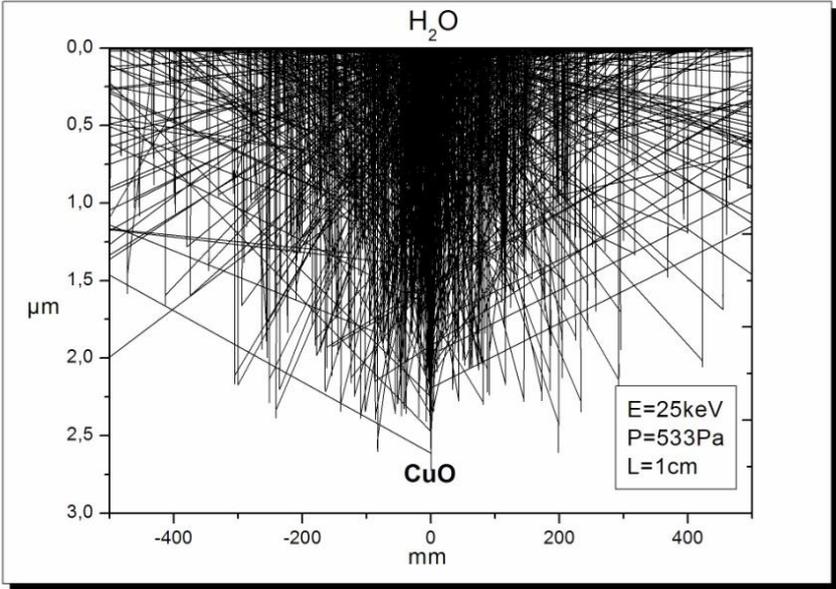


Figure V.15:Trajectoires électroniques de CuO P=533Pa, E =25keV

Comparées avec les trajectoires tracées dans le vide (figures V.8 à V.15), ces résultats montrent une modification de la forme des poires d'interaction en présence du gaz. : les profondeurs restent inchangées alors que les dimensions latérales des poires sont augmentées. Ceci est dû à la

Chapitre V résultats et interprétation

contribution de la partie diffusée du faisceau électronique par le gaz. Les profondeurs, déterminées par la partie centrale du faisceau (partie non diffusée) ne sont donc pas affectées par la présence du gaz.

V. EFFET DE LA VAPEUR D'EAU ET DE L'HELIUM SUR L'EMISSION RETRODIFFUSEE POUR LES MATERIAUX Al_2O_3, CuO

V.1. Effet de la pression :

Nous présentons dans ce paragraphe les résultats de la variation du pourcentage des électrons rétrodiffusés en fonction de la pression dans les deux matériaux, Al_2O_3 et CuO , pour la vapeur d'eau et l'hélium, ces résultats sont tracés dans les graphes et les tableaux suivants :

1. Cas de H_2O :

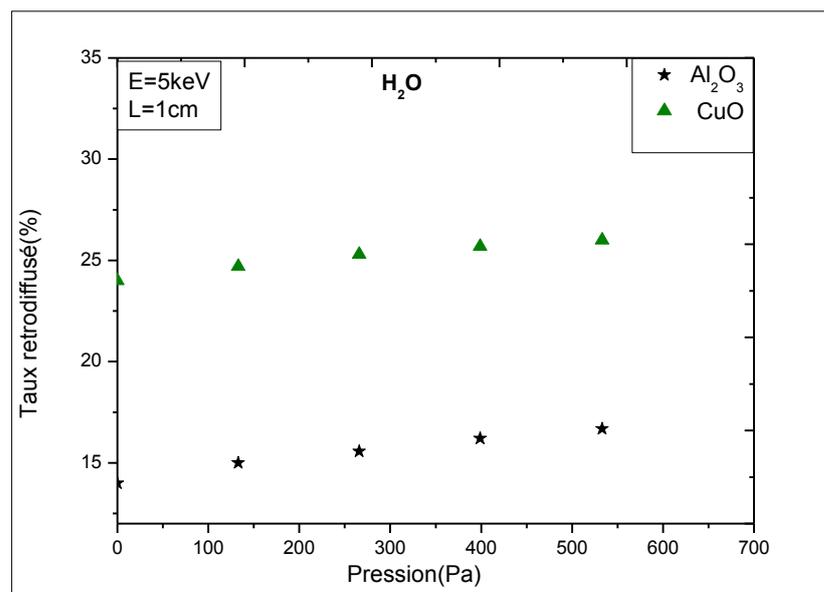


Figure V.16 : Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression et pour différents matériaux pour H_2O

Chapitre V résultats et interprétation

Tableau V.1 : Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression et pour différents matériaux pour H₂O et E=5keV L=1cm

Pression(Pa)	10 ⁻³ Pa	133.3Pa 1Torr	266.6Pa 2Torr	399.9Pa 3Torr	533.2Pa 4Torr	Gain à 4Torr (%)
Electrons rétrodiffusés (%) Echantillon Al ₂ O ₃	14	15	15.57	16.2	16.68	19.14
Les électrons rétrodiffusés(%) L'échantillon CuO	24	24.7	25.3	25.69	26	8.33

Tableau V.2 : Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression et pour différents matériaux pour H₂O et E=25keV L=1cm

Pression(Pa)	10 ⁻³ Pa	133.3Pa	266.6Pa	399.9Pa	533.2Pa	Gain à 4Torr (%)
Electrons rétrodiffusés (%) Echantillon Al ₂ O ₃	11.17	11.23	11.41	11.64	11.88	6.35
Les électrons rétrodiffusés (%) L'échantillon CuO	21	21.28	21.58	21.65	21.77	3.66

2. Cas de He :

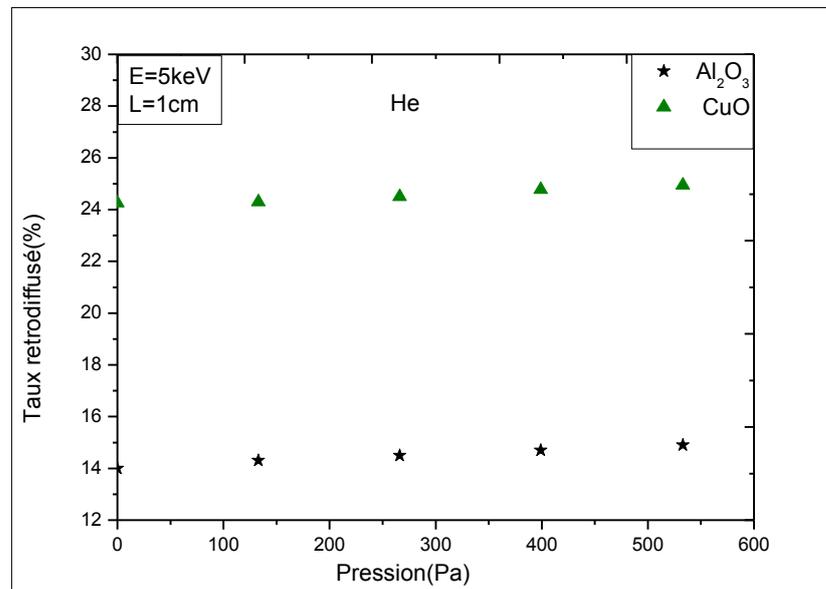


Figure V.17: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression et pour différents matériaux pour He

Tableau V.3 : Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression et pour différents matériaux pour He et E=5keV

Pression(Pa)	10 ⁻³	133.3Pa	266.6Pa	399.9Pa	533.2Pa	Gain à 4Torr (%)
Electrons rétrodiffusés (%) Echantillon Al ₂ O ₃	14	14.3	14.5	14.7	14.9	6.24
Les électrons rétrodiffusés(%) L'échantillon CuO	24	24.3	24.5	24.77	24.94	3.91

Chapitre V résultats et interprétation

Tableau V.4: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression et pour différents matériaux pour He et E=25keV

Pression(Pa)	10^{-3} Pa	133.3Pa	266.6Pa	399.9Pa	533.2Pa	Gain à 4Torr (%)
Electrons rétrodiffusés (%) Echantillon Al_2O_3	11	11.20	11.33	11.41	11,56	5.09
Les électrons rétrodiffusés L'échantillon CuO (%)	21	21.15	21.28	21.45	21,65	3,1

Dans les graphes et les tableaux, on remarque que le pourcentage des électrons rétrodiffusés augmente avec la pression pour les deux matériaux. Dans les tableaux, le gain à 4 Torr représente l'augmentation relative du coefficient de rétrodiffusion à 4 Torr par rapport à celui calculé à 10^{-3} Pa (vide).

L'interprétation de cette augmentation a une relation avec le faisceau des électrons, ce dernier est composé de deux parties : l'une externe (outer) correspond aux électrons diffusés et l'autre interne (inner) correspond aux électrons non diffusés et constitue la partie utile à l'imagerie MEB. Les trajectoires des électrons de la partie externe sont toujours inclinées par rapport à la surface de l'échantillon.

En conclusion, si la pression augmente, l'émission des électrons rétrodiffusés augmente à cause de l'élargissement latéral de faisceau incident constituant le skirt (diffusion élastique). En dehors de la partie centrale du faisceau, tout se passe comme si l'échantillon était localement « tilté ».

Pour le gain avec les deux matériaux, on observe que le gain pour l'oxyde de cuivre est inférieur à ceux des deux autres oxydes. Ceci est attribué au fait que le premier oxyde est plus lourd. Nous savons en effet que l'inclinaison a moins d'influence dans un matériau lourd [66], donc, et bien qu'elle

augmente en importance avec la pression, la partie externe du faisceau (élargissement latéral) a moins d'effet dans le cas de CuO.

V.2. Effet de l'énergie :

De la même manière que précédemment, on fait varier l'énergie incidente

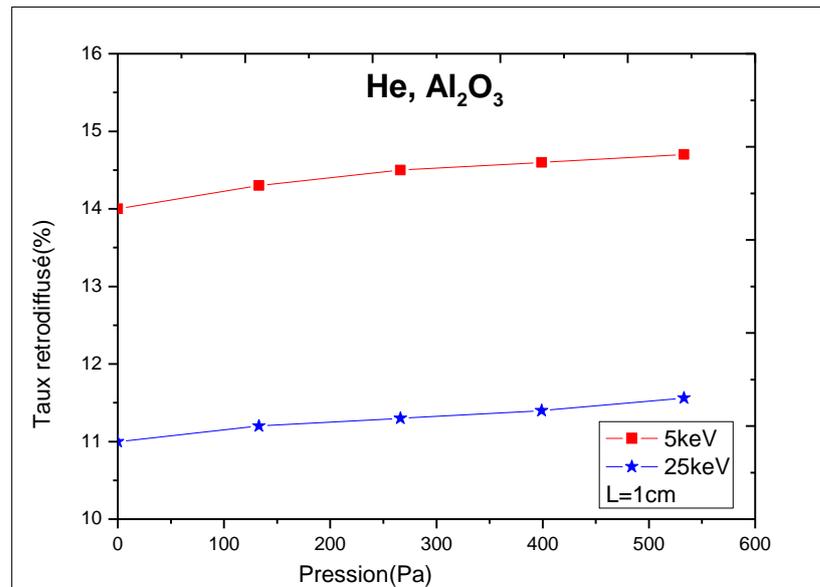


Figure V.19: Variation du taux de rétrodiffusés en fonction de la pression pour différentes énergie pour le couple He-Al₂O₃

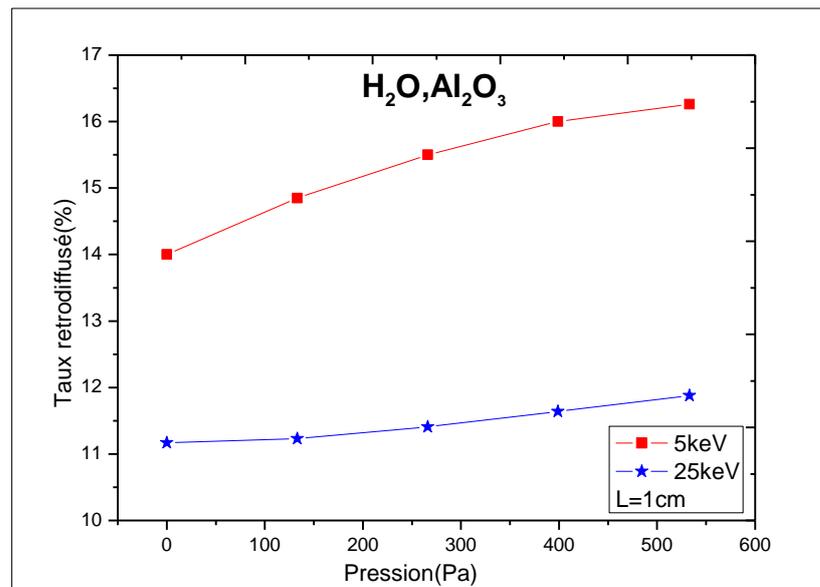


Figure V.20: Variation du taux rétrodiffusé en fonction de la pression et pour différentes énergie pour le couple $H_2O-Al_2O_3$

On voit bien sur ces dernières figures, que pour la même pression, Le taux rétrodiffusé diminue en augmentant l'énergie du faisceau incident. De la même manière que précédemment, cette diminution est expliquée par la diminution du skirt quand l'énergie augmente. En effet, l'élargissement du faisceau diminue en augmentant l'énergie du faisceau incident, cette diminution est due à la diminution de nombre de collision (diminution de la section efficace de collision). L'élargissement latéral, qui conditionne la variation du taux de rétrodiffusion diminue et donc ce taux diminue.

V.3. Effet de la distance de travail:

Dans cette partie , nous présentons les résultats de la variation du pourcentage des électrons rétrodiffusés en fonction de distance de travail dans les deux matériaux Al_2O_3 et CuO , pour la vapeur d'eau et l'hélium, ces résultats sont tracés dans les graphes et les tableau suivants :

a) Avec l'hélium

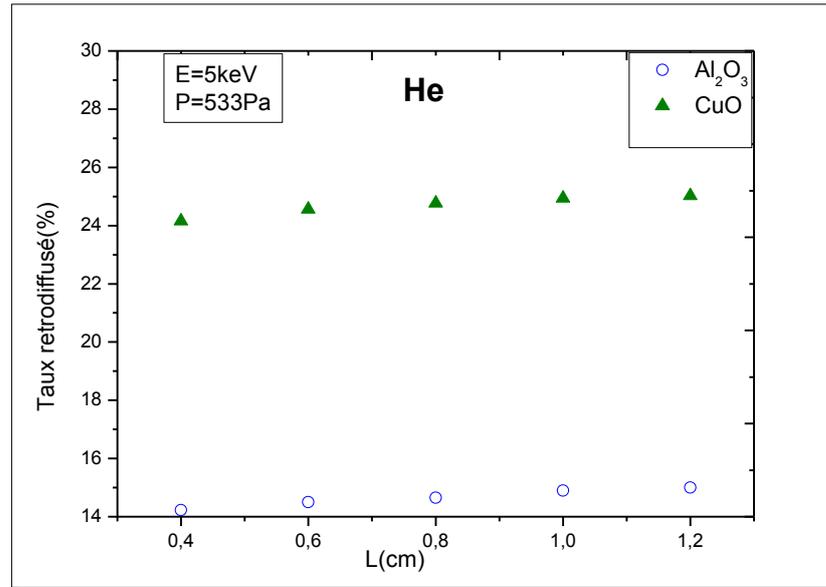


Figure V.21: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la distance de travail et pour différents matériaux pour He

Tableau V.5 : Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la distance de travail pour différents matériaux pour He t E=5keV

Distance de travail (cm)	0.004	0.008	0.01	0.012
Electrons rétrodiffusés (%) Echantillon Al ₂ O ₃	14,23	14,5	14,65	14,9
Electrons rétrodiffusés (%) Echantillon CuO	24,16	24,56	24,77	24,94

Tableau V.6: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la distance de travail pour différents matériaux pour He et E=25keV

Distance de travail (cm)	0.004	0.008	0.01	0.012
Electrons rétrodiffusés (%) Echantillon Al_2O_3	10.12	10.28	11,53	10.93
Les électrons rétrodiffusés L'échantillon CuO (%)	21.03	21.28	21,65	21.98

b) Avec la vapeur d'eau

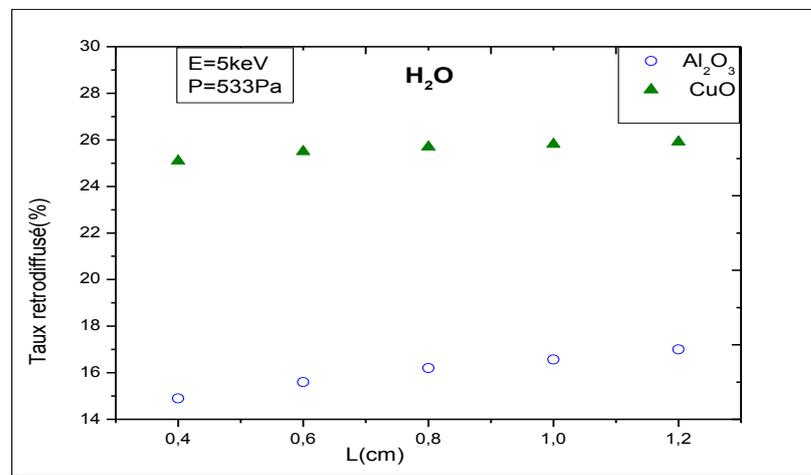


Figure V.22: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la distance de travail et pour différents matériaux pour H₂O

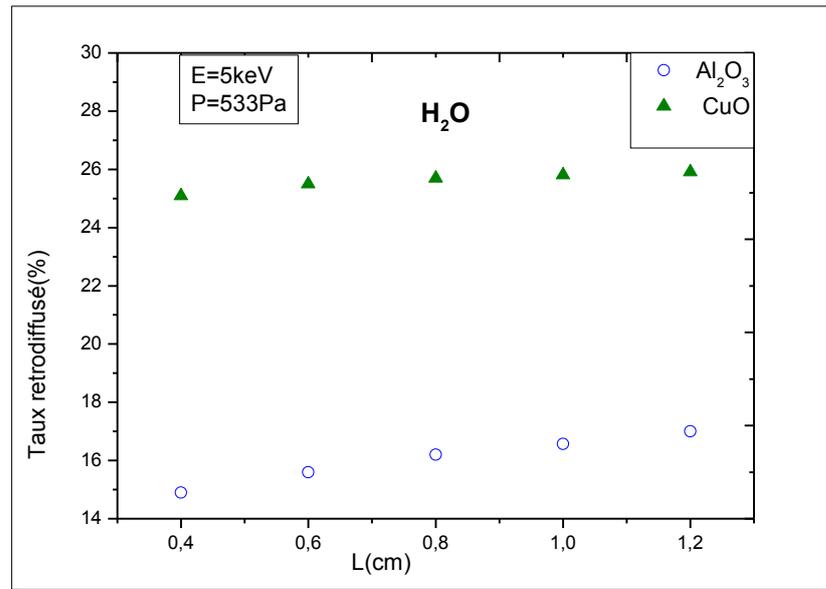


Figure V.23: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la distance de travail et pour différents matériaux pour H₂O

Tableau V.7: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la distance de travail pour différents matériaux pour H₂O et E=5keV

Distance de travail (cm)	0.004	0.008	0.01	0.012
Electrons rétrodiffusés (%)			16.68	
Echantillon Al ₂ O ₃	14,9	15,6		16,77
Electrons rétrodiffusés (%)			26	
Echantillon CuO	25,09	25,5		26,21

Tableau V.8: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la distance de travail pour différents matériaux pour H₂O et E=25keV

Distance de travail (cm)	0.004	0.008	0.01	0.012
Electrons rétrodiffusés (%) Echantillon AL ₂ O ₃	10.13	10.34	11.88	10.94
Les électrons rétrodiffusés L'échantillon CuO (%)	21.07	21.37	21.77	21.95

D'après les figures et les tableaux précédentes, nous constatons que lorsqu'on augmente la distance de travail, le taux rétrodiffusé augmente, car l'élargissement du faisceau augmente, cette augmentation est due à l'augmentation du nombre de collisions. C'est pour cela que le pourcentage d'électrons rétrodiffusés augmente.

V.4. Effet de la nature chimique du gaz :

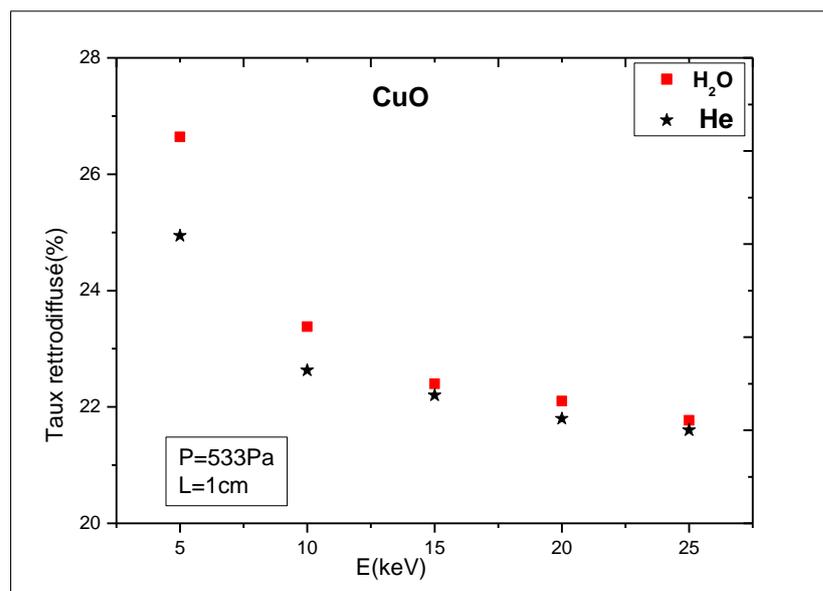


Figure V.24: Variation de taux rétrodiffusé en fonction

de la pression pour différentes énergie dans CuO pour les deux gaz

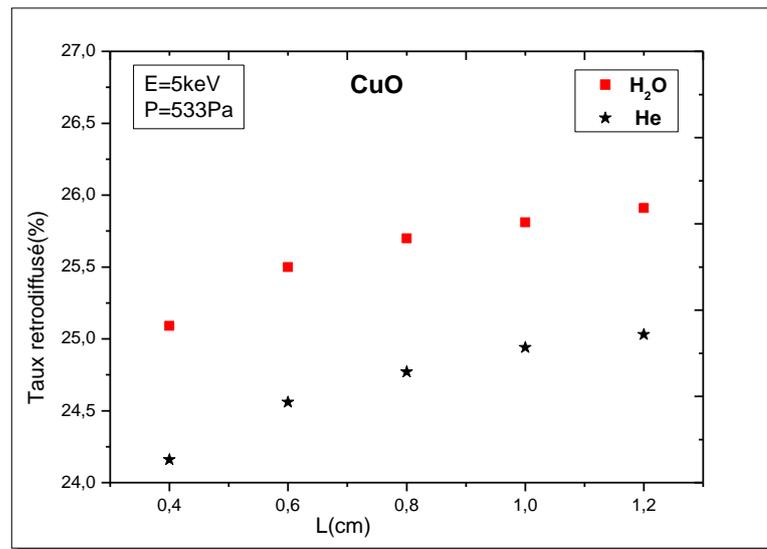


Figure V.25: Variation de taux rétrodiffusé en fonction de la pression pour différent distance de travail dans CuO pour les deux gaz

D'après les figures précédentes, on voit que pour la même énergie, même pression et la même distance de travail, le taux rétrodiffusé plus important pour la vapeur d'eau, que pour l'Hélium. Cette différence est due à la nature chimique de l'élément choisi. Plus ce dernier ne possède une section efficace de diffusion grande, plus le nombre de collisions des électrons augmente le pourcentage des électrons rétrodiffusés, ce qui entraîne un élargissement plus important.

V.5. La distribution des électrons rétrodiffusés :

Nous présentons dans ce paragraphe les résultats de la distribution des électrons rétrodiffusés dans les trois matériaux, pour les deux gaz. L'étendue en abscisse désigne le rayon de sortie R_s des électrons rétrodiffusés de la matière.

a)- Sous Vide $P=10^{-3}$ Pa (vide)

Dans notre programme, nous donnons la valeur $P = 10^{-3}$ Pa à la pression pour l'hélium. Les résultats sont évidemment les mêmes pour H₂O car ce sont les conditions de vide.

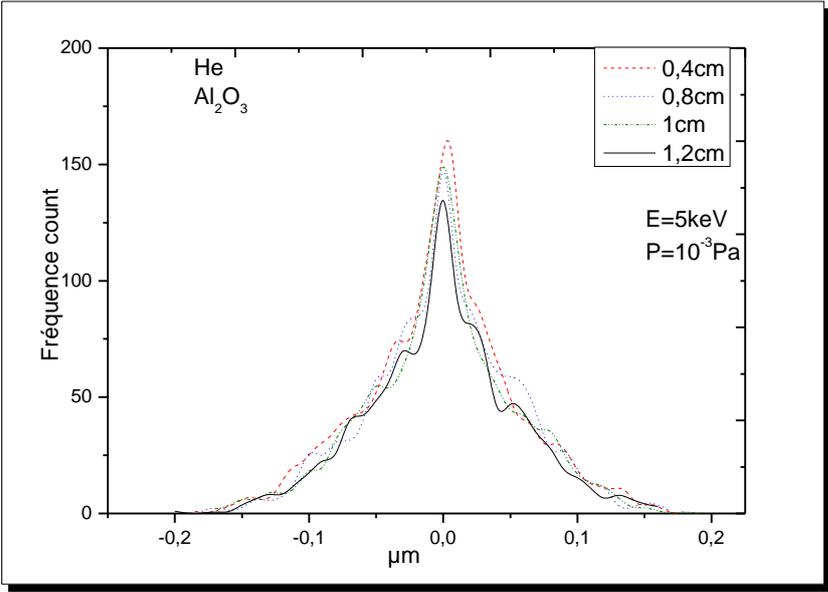


Figure V.26: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail sous vide pour Al₂O₃E=5keV

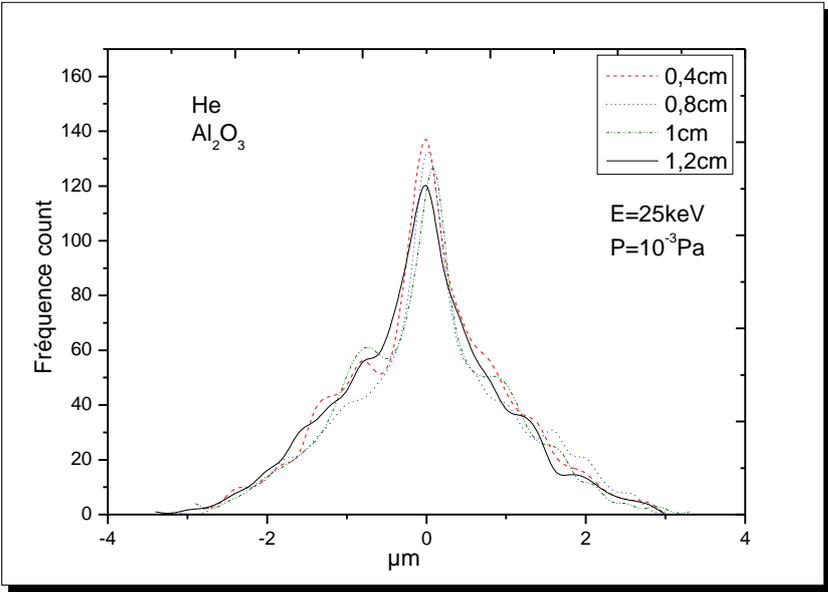


Figure V.27: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail sous vide pour Al₂O₃, E=25keV

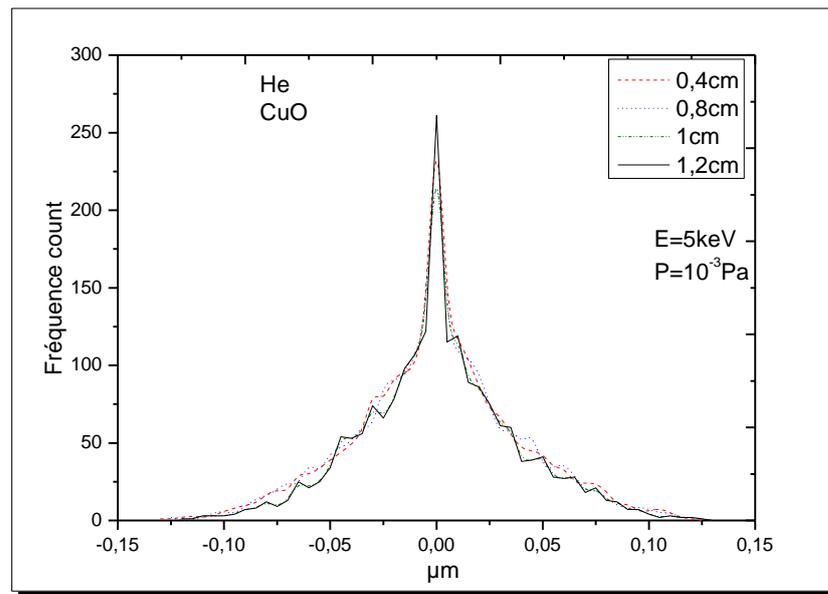


Figure V.28: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail sous vide pour CuO, E=5keV

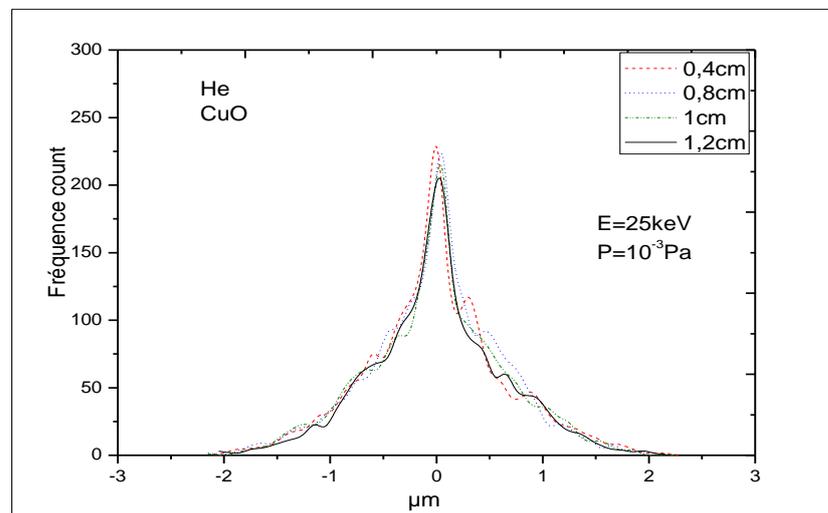


Figure V.29: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail sous vide pour CuO, E=25keV

Les figures (V.24 à V.29) montrent que le rayon de sortie R_s des électrons rétrodiffusés est comme

Chapitre V résultats et interprétation

prévu, indépendant de la distance de travail dans des conditions de vide. R_s dépend de l'énergie des électrons incidents et augmente avec elle. Il est légèrement plus petit pour CuO (Z plus grand) que pour Al_2O_3 .

Nous allons à présent voir quel est l'effet de la présence de gaz sur cette distribution des électrons rétrodiffusés.

b)-A pression $P=533Pa$ (4 Torr) :

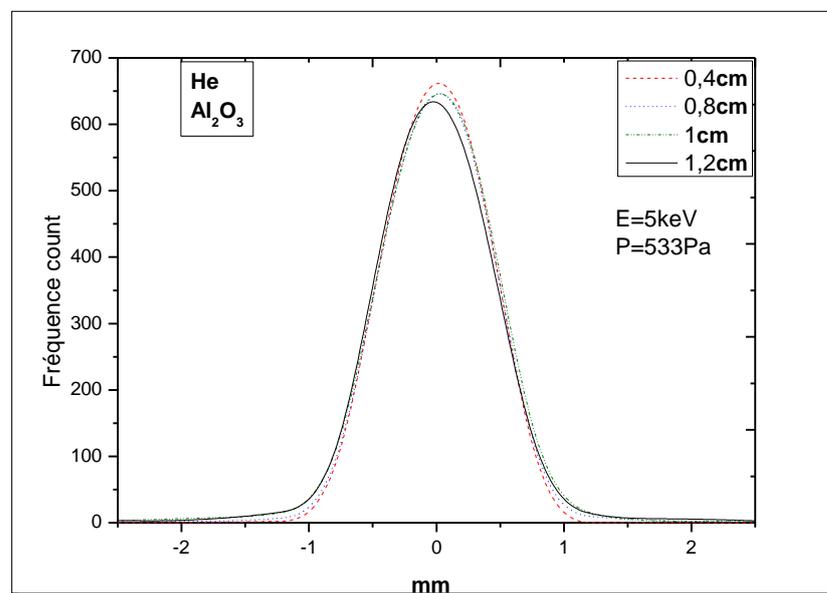


Figure V.30: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différentes distances de travail en présence de l'hélium pour Al_2O_3 $E=5keV$

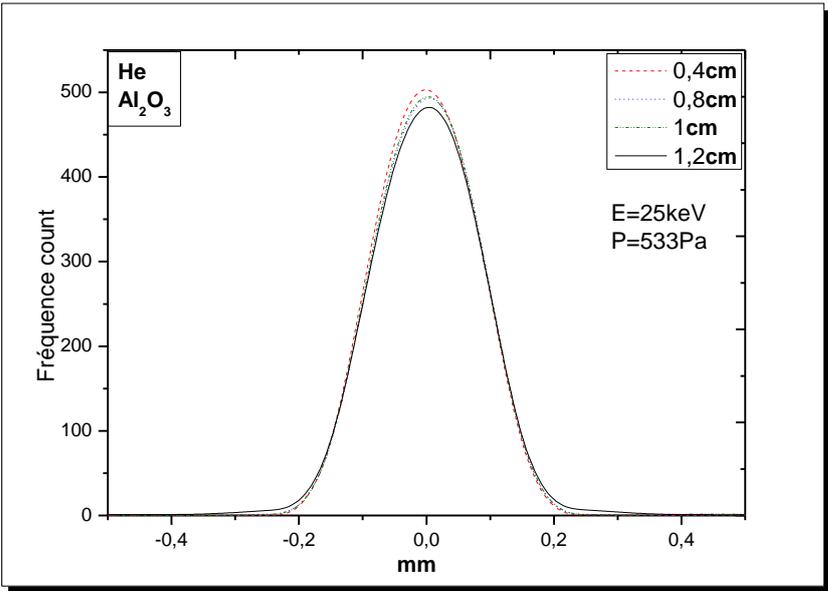


Figure V.31: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de l'hélium pour Al_2O_3 $E=25\text{keV}$

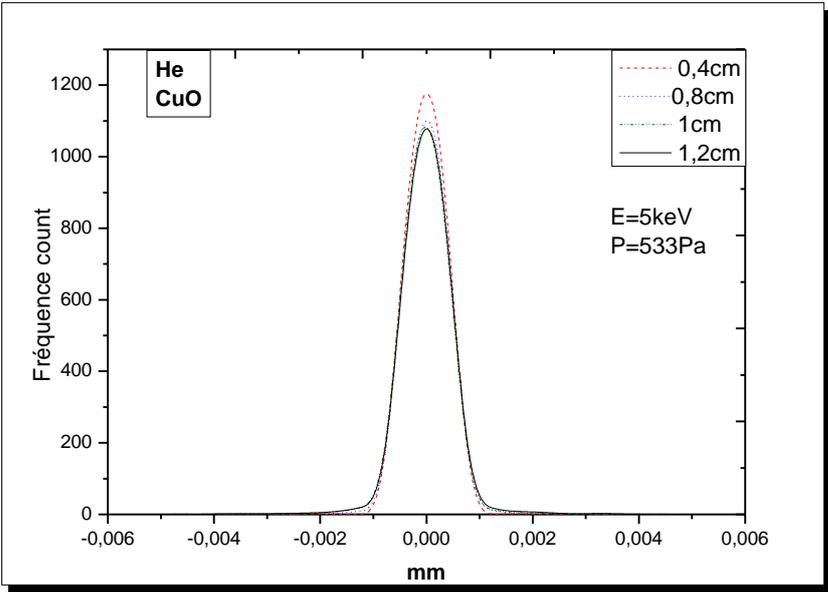


Figure V.32: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de l'hélium pour CuO $E=5\text{keV}$

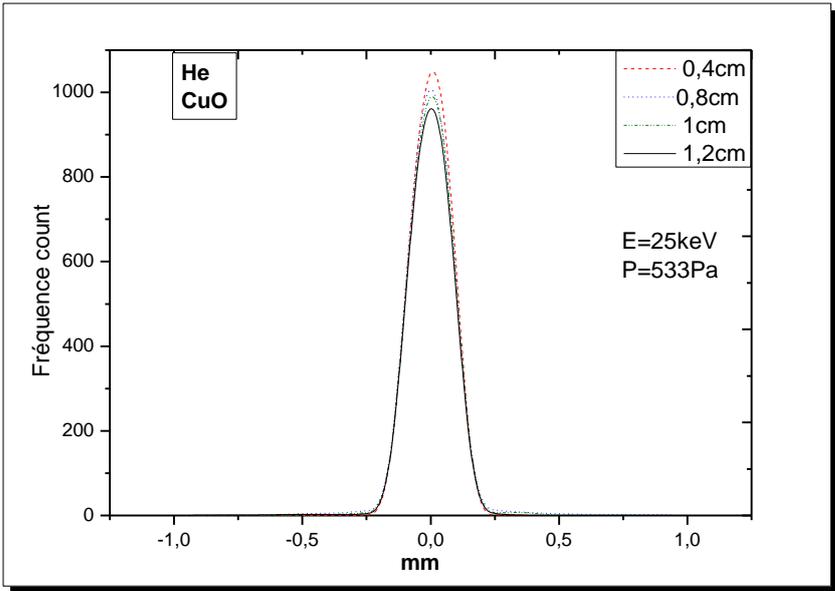


Figure V.33: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de l'hélium pour CuOE=25keV

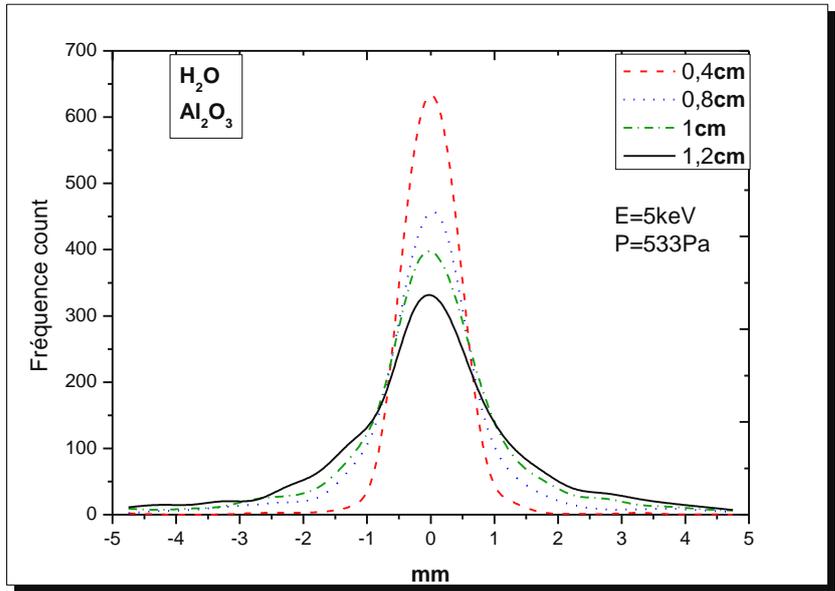


Figure V.34: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de la vapeur d'eau pour Al₃O₂ E=5keV

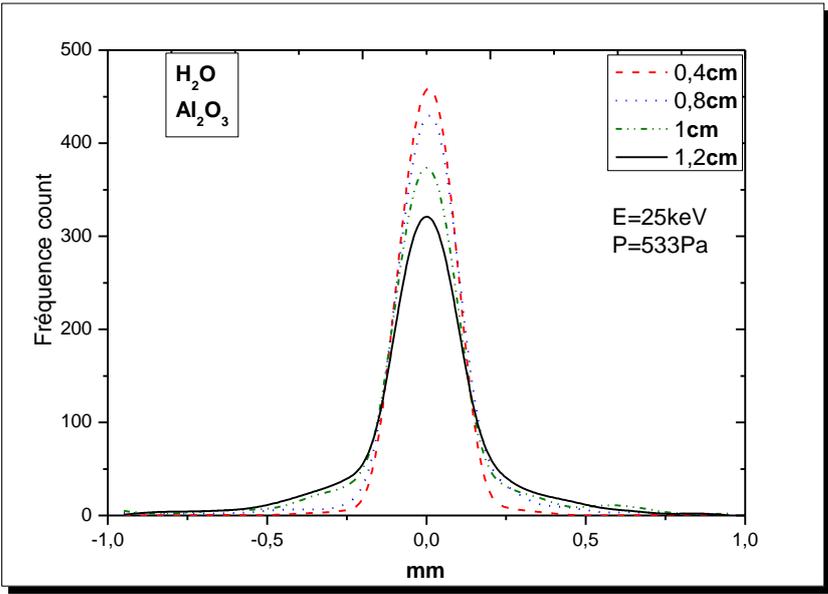


Figure V.35: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail présence de la vapeur d'eau pour Al₃O₂ E=25keV

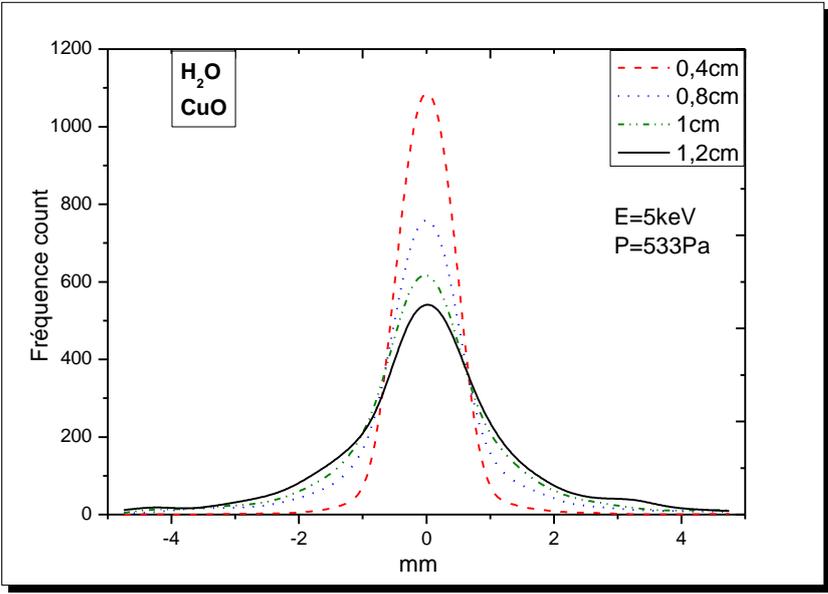


Figure V.36: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de la vapeur d'eau pour CuO E=5keV

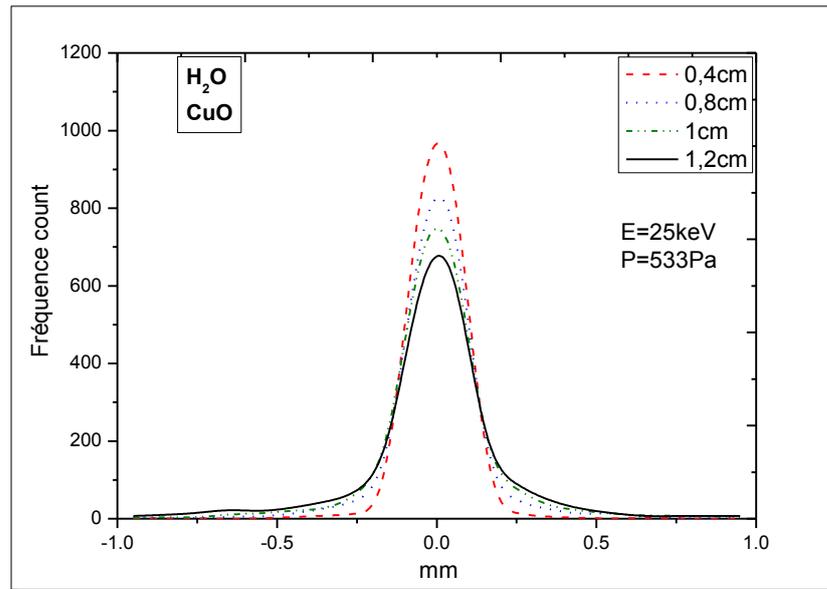


Figure V.37: La distribution des électrons rétrodiffusés pour différent distance de travail en présence de la vapeur d'eau pour CuO E=25keV

Il apparaît clairement à partir de ces courbes sous pression et des courbes sous vide (V. à V.37) que la présence du gaz change la distribution des électrons rétrodiffusés. En particulier, le rayon de sortie R_s est considérablement augmenté. De plus, il apparaît que la variation de la distance de travail a peu d'effet en présence d'hélium, ce qui n'est pas le cas de H₂O.

Pour confirmer par les chiffres ces résultats, nous avons regroupé les valeurs de R_s pour les deux matériaux et les 2 gaz pour $E = 5 \text{ keV}$:

Tableau V.9: Variation du rayon de sortie des électrons rétrodiffusés en fonction de la distance de travail pour différents matériaux

Distance de travail (cm)		0.4	0.8	1	1.2	
Rs (μm)	Echantillon Al_2O_3	0.15	0.15	0.15	0.15	
	Echantillon CuO	0.11	0.11	0.11	0.11	
P= 10^{-3} Pa						
Rs (μm)	He	Echantillon Al_2O_3	108	170	200	2011
		Echantillon CuO	108	160	160	160
	H ₂ O					
		Echantillon Al_2O_3	700	2500	3260	4300
P=533Pa						
		Echantillon CuO	700	2201	3230	4200

A ce niveau de notre discussion, il est intéressant de comparer les rayons de sortie des électrons rétrodiffusés avec les rayons d'impact (rayon du skirt) des électrons incidents ($r_{0,9}$). Ceci est montré dans le tableau (V. 11) où on a fait varier la distance de travail pour les 2 gaz pour Al_2O_3 et 5 keV.

Tableau V.11: Variation du rayon de sortie des électrons rétrodiffusés et le rayon de skirt en fonction de la distance de travail pour les deux gaz cas de Al_2O_3

Distance de travail (cm)		0.4	0.8	1	1.2
He	$r_{0,9}$ (μm)	250	600	890	1000
	R_s (μm)	108	170	200	2011
H_2O	$r_{0,9}$ (μm)	700	2200	Pour ces deux distances de travail, le signal d'entrée est insuffisant	
	R_s (μm)	700	2500		

A partir de ce tableau, on voit que pour He, $r_{0,9}$ est bien plus grand que R_s , surtout à grande distance de travail alors que pour H_2O , R_s et $r_{0,9}$ sont comparables. Ceci est dû au caractère diffusant de H_2O , comparé à l'hélium qui diffuse le moins.

Par conséquent, pour H_2O , la résolution pour le signal des électrons rétrodiffusés est comparable au diamètre d'impact sur la surface de l'échantillon et diminue quand L est augmenté, alors que pour l'hélium, elle est quasiment indépendante de L , bien que le diamètre d'impact (skirt) augmente légèrement avec L . Ce nouveau résultat est à mettre au crédit des bonnes performances d'Hélium

CONCLUSION GENERALE

Nous avons définis graduellement le principe de microscopie électronique à balayage pression variable nous avons commencé par décrire tout un ensemble d'outils destinés à l'étude de l'interaction du faisceau d'électrons de la sonde avec le gaz dans la chambre d'analyse et à l'effet de cette interaction sur le transfert du faisceau d'électrons à travers la couche gazeuse et à la distribution spatiale des électrons (profil du faisceau), nous avons détaillé les divers processus physiques qui interviennent lors de l'interaction électron-matière afin de prédire les trajectoires électroniques et leurs variations suite aux changements dans les paramètres du SEM.

Pour atteindre ces objectifs, nous avons utilisé la méthode de Monte-Carlo qui explique bien le comportement de tout phénomène aléatoire. Nous avons appliqué cette méthode à l'interaction électron –matériau isolants en présence de gaz dans le VPSEM afin de prédire par la simulation le comportement du faisceau électronique de la sonde lors de sa traversée de la chambre d'analyse du microscope et le comportement du faisceau électronique dans l'échantillon. Nous avons choisi de mener ce travail sur deux gaz différents; un gaz monoatomique (He) et un gaz moléculaires H₂O. Pour cela, nous avons choisi comme matériaux isolants, les oxydes suivants: Oxyde d'aluminium Al₂O₃, Oxyde de cuivre CuO. Dans tous les cas, nous avons effectué les calculs avec 10⁴ trajectoires, ce que nous avons vérifié comme étant suffisant en termes de précision.

Le tracé des trajectoires électroniques dans les deux matériaux dans le vide montre, comme prévu que quand le nombre atomique augmente, le volume de génération diminue pour une énergie incidente donnée. Par contre, quand l'énergie incidente augmente, la profondeur de pénétration augmente ainsi que la dimension latérale de la poire d'interaction.

En présence de gaz, on constate une modification de la forme des poires d'interactions : Les profondeurs restent inchangées alors que les dimensions latérales des poires sont augmentées. Nous avons expliqué ce fait par la forme du faisceau incident traversant le gaz. Ce faisceau est composé de deux parties, l'une interne (électrons non déviés) responsable de la profondeur de pénétration dans la matière, l'autre, externe formée par les électrons diffusés responsable de l'augmentation de la dimension latérale de la poire.

Concluaient générale

L'examen des courbes de la variation du taux d'électrons rétrodiffusés en fonction des trois paramètres (pression, distance de travail et la nature chimique du gaz), nous montre que quand on augmente la pression ou la distance de travail ou on utilise H₂O au lieu de He, ce taux augmente. Augmenter P ou L ou utiliser un gaz de section efficace de diffusion plus importante revient à augmenter le nombre de collision et donc le skirt (partie externe du faisceau). Quand le skirt augmente, les trajectoires électroniques dans le gaz sont de plus en plus obliques et arrivent inclinées sur la surface de l'échantillon. Tout se passe comme si, localement, l'échantillon est tilté. Or on sait que le tilt augmente le taux de rétrodiffusés. Ceci explique l'augmentation de ce taux quand le skirt augmente.

Cet effet de la pression est plus prononcé sur H₂O que sur l'hélium. Ceci nous conduit à préconiser l'utilisation de la vapeur d'eau à faible pression.

L'étude systématique de la distribution des électrons rétrodiffusés a montré que la présence du gaz change la distribution des électrons rétrodiffusés. En particulier, le rayon de sortie R_s est considérablement augmenté. De plus, il apparaît que la variation de la distance de travail a peu d'effet en présence d'hélium, ce qui n'est pas le cas de H₂O.

Enfin, nous pouvons conclure que pour H₂O, la résolution pour le signal des électrons rétrodiffusés est comparable au diamètre d'impact sur la surface de l'échantillon et diminue quand L est augmenté, alors que pour l'hélium, elle est quasiment indépendante de L, bien que le diamètre d'impact (skirt) augmente légèrement avec L. Ce nouveau résultat est à mettre au crédit des bonnes performances de He, pour lequel la résolution en électrons rétrodiffusés est certes diminuée par rapport au fonctionnement sous vide mais s'avère ainsi quasiment indépendante de la distance de travail.

Enfin, nous pensons avoir contribué à un travail fondamental important sur un plan phénoménologique et théorique. Nos résultats concernant le comportement des électrons rétrodiffusés dans le VPSEM restent cependant à exploiter sur un plan technologique.

BIBLIOGRAPHIE

- [1]: **Principles and Practice of Variable Pressure/Environmental Scanning Electron Microscopy (VP-ESEM)** Debbie J Stokes © 2008 John Wiley & Sons, Ltd. ISBN: 978-0-470-06540-2 (01/02).
- [2]: **Goldstein JI, Newbury DE, Echlin P, Joy DC, Romig AD Jr, Lyman CE, Fiori C, Lifshin. E:** Scanning Electron Microscopy and X-ray microanalysis. Plenum Press, New York (1992).
- [3]: **Jing He:** A study of the electron beam scattering under various gaseous environment. Master thesis of science degree, university of Tennessee, Knoxville (2003).
- [4]: **Moncrieff DA, Robinson VNE, Harris LB:** Charge neutralization of insulating surfaces in the SEM by gas ionization. J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 11, 2315-2325 (1978).
- [5]: **Y. Ji, H.S. Guo, T.X. Zhong, H. Zhang, X.L. Quan, Y.Q. Zhang, X.D. Xu:** Charge and charging compensation on oxides and hydroxides in oxygen environmental SEM. Ultramicroscopy 103 (2005) 191–198.
- [6]: **G.D. Danilatos :** Environmental scanning electron microscopy and microanalysis. Microchim, 114/115, 143/155, (1994).
- [7]: **R. Durkin, J. S. Shah:** Amplification and noise in high pressure scanning electron microscopy. Journal of microscopy, 169, 33-51, (1993).
- [8]: **D. A. Moncrieff, P. R. Barker, and V. N. E. Robinson:** Electron Scattering by Gas in the Scanning Electron Microscope. J. phys. D: Appl. phys, 12, 481, (1979).
- [9]: **G. D. Danilatos:** Equation of charge distribution in the environmental scanning electron microscopy ESEM, Scanning Microscopy, 4, 799-823, (1990).
- [10]: **G. D. Danilatos:** Foundations of environmental scanning electron microscopy. Advances in electronics and electron physics, 71, (1988).
- [11]: **G. D. Danilatos:** Research Disclosure, 23311, 284, (1983a).
- [12]: **G. D. Danilatos :** Micron and Microscopica Acta, 14, 307, (1983b).
- [13]: **Principles and Practice of Variable Pressure/Environmental Scanning Electron Microscopy (VP-ESEM)** Debbie J Stokes © 2008 John Wiley & Sons, Ltd. ISBN: 978-0-470-06540-2 (06/08).
- [14] **V. N. E. Robinson, J. Phys E Sci Instrum, 7, 3, 650-652 (1974).**

Bibliographique

- [15] **G .D. Danilatos, V .N. E. Robinson**, Scanning, 2, 72-82 (1979).
- [16] **G .D. Danilatos**, Micron and MicroscopicaActa, 14, 4, 307-318 (1983).
- [17]: **G .D. Danilatos**, Adv. Electron. Electron Phys, 78, 1-102 (1990).
- [18]:**E.Oho,A. Akai, SukehiroItoh**; Journal of electron Microscopy 49(6): 761-763(2000)
- [19] :**B. L. Thiel, I.C. Bache, A.L. Fletcher, P Meredith, A. M. Donald**, J. Microsc, 187,3, 143157(1997).
- [20]:**Gaseous secondary electron detection and cascade amplification in the environmental scannig electron microscope** (2005) ,24.
- [21]:**R.Belkhorissat**: Etude par la méthode de Monte Carlo de l'interaction électron gaz dans les microscopes électronique à balayage à haute pression. Mémoire de magistère, université de Sidi Bel Abbés, (2001).
- [22]:**Jost, J. Kessler, Zeits:Phys**, 176, 126, (1963).
- [23]:**W. Bothe, Zeits:Phys**, 5, 63, (1921).
- [24]:**H. F. Wellenstein, R. A. Bonham, R. C. Ulsh**: Phys. Rev. A, 8, 304, (1973).
- [25]:**J. Kessler, Zeits:Phys**, 182, 137, (1964a).
- [26]:**J. Kessler, Zeits:Phys**, 182, 153, (1964b).
- [27]:**F. Lenz, Zeits:Naturf**, 9a, 185, (1954).
- [28]:**G. Wentzel, Zeits:Phys**, 40, 590, (1927).
- [29]:**E. Williams, Proc. Roy. Soc, A**, 169, 531, (1939).
- [30]:**S. Leisgang, Zeits:Naturf**, 132, 183, (1952).
- [31]:**R. E. Burge, G. H. Smith, Proc: Phys. Soc**, 79, 673, (1962).
- [32]:**J. A. Bers, B. K. Vainstein**: International Cristallographic tables Vol III. Kynoch Press, Birmingham, (1962).
- [33]:**L. Reimer**: Scanning Electron Microscopy, Springer-Verlag, Berlin, (1985).
- [34]:**Eli. Napchan**: Physics Used in MC-SET. Department of Materials, Imperial College, London (2004).
- [35]:**N. F. Mott, H. S. W Massey**:The Theory of atomic Collision. Oxford Clarendon Press, (1965).
- [36]:**B. W. Schumacher**: Ontario Research Foundation Physics Research report, 6604, (1968)
- [37]:**L. Reimer, H. Gilde, K. H. Sommer**:Optik, 30, 590, (1970).

Bibliographique

- [38]:**R. C. Smith, B. W. Schumacher:** J. Chem. Phys, 60, 103, (1974).
- [39]:**G. D. Danilatos:** Foundations of Environmental Scanning Electron Microscopy, Adv. Electronics Electron Phys. **71**, 109-249 (1988).
- [40]: **A. E. Grün, Zeits:Naturf**, 12a, 89, (1957).
- [41]:**M.Hadef**,these de magister Univ.Constantine (1999).
- [42] H. Seiler, Electron Beam Interaction With Solids (SEM, Inc., Chicago, IL, 1984). Edité par D.F. Kyser, H. Niedrig, D.E. Newbury and R. Shimizu, p. 33.
- [43]: **Bethe, H.A.** "Zur Theories Durchgangs Schneller Korpus kularstrahlendurch Materie. " *Annalen der Physik* 5:5, pp. 325-400, 1930.
- [44]:**Hinkfoth, Glaefake, Huhr**, Fitting (1991), Phys. Stat. Sol. (a). **126**, 85 (1991).
- [45]:**Reimer**, Scanning electron microscopy, Springer-Verlag, 1985.
- [46]:**Dapor**Phys. Let. A, 151, 84, (1990).
- [47]:**Hunger, Kùchler**Phys. Stat. Sol. (a), **56**, K45 , (1979).
- [48] :**M.DelfinBerag**, Etude des phénomènes de charge des matériaux isolants sous faisceau d'électrons de basse énergie (200ev-30keV), mémoire de doctorat, université de Paris ,2003.
- [49] :**Niedrig**, J. Appl. Phys., **53**, 4, R15 (et erratum p 5361 et 7618 du même volume), 1982.
- [50]:**Technow**, Fitting, Phys. Stat. Sol. (a), **76**, K151, 1983.
- [51]:**Danilatos, GD**, "Cathodoluminescence and gaseous scintillation in the environmental SEM" . *Scanning***8** : 279–284 ,1986.
- [52]:**Adaptation du code de monte Carlo Penelope pour la métrologie de la dose absorbée :** caractérisation des faisceaux de photons x de haute énergie et calcule de facteurs de correction de dosimètre de référence. Thèse doctorat L'université Paul Sabatier de Toulouse 1999.
- [53]:**Bogaerts A,straatenMV,renaatG.Spectrochimica Acta Part B**,2:179-176, 1995.
- [54]:**M.Deraz:** Simulation et corrélation du courant EBIC par la méthode de Monte Carlo. Mémoire de magistère, université de Sidi Bel Abbés, (1996).
- [55]:**A. Kadoun, R. Belkorissat, C. Mathieu and B. Khelifa:** Computation and experiments on the beam spread in the VP-SEM: Application to X-Ray microanalysis. Journal of Trace and Microprobe Techniques, Vol 21, 229-238, (2003).
- [56]:**M. Fink, J. Kessler, Zeits:Phys**, 196, 1, (1996).
- [57]:**Advanced simulation code for alpha spectrometry:**Nuclear instruments and Methods in physics research section A elsevier ;2005,vol 550,425-434.
- [58]: **Track-structure codes in radiation research :**2006 Elsevier Ltd. All rights reserved.

Bibliographique

[59]: **Yukikazu Itikawa** : Cross Sections for Electron Collisions with Water Molecules :J. Phys. Chem. Ref. Data, Vol. 34, No. 1, 2005.

[60]: Y.-K. Kim and M.E. Rudd, Phys. Rev. A **50**, 3954-3967 , *Erratum*: Page 3958, Table I, 4th column, the M_i^2 for H_2 should read 1.598,1994.

[61]: **W. Hwang, Y.-K. Kim, and M.E. Rudd**, J. Chem. Phys. **104**, 2956-2966 ,1996.

[62] :**Joy, David C.**Monte Carlo Methods for Electron Microscopy and Microanalysis. New York: Oxford UP, 1995.

[63] :**Egerton, R.F** :Electron Energy –Loss Spectroscopy in the Electron Microscope. New York: Plenum Press, 1986.

[64] :**J.Henoc** : Interaction électron-matière : Ecole d'été de StMartin d'hères,pp123-159 ,11-16 Sept.1978.

[65] :**Dustin F. Kapraun**, Monte Carlo Techniques for Predicting Electron Backscattering North Carolina State University in partial fulfillment of the requirements for the Degree of Master science 2001.

[66] :**J.RUSTE**. Les interactions rayonnements-matière, Ecole d'été sur la sur la microscopie 2005.