

N° d'ordre :

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE & POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR & DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE



UNIVERSITE DJILLALI LIABES
FACULTE DES SCIENCES EXACTES
SIDI BEL-ABBES

THESE DE DOCTORAT

Présentée par

HAFSI ZOULIKHA

Spécialité : Physique

Option : Techniques physiques d'analyse et Instrumentation

Intitulée

*Etude du comportement du faisceau d'électrons dans un MEB à
pression variable – Conséquences sur les électrons rétrodiffusés*

Devant le jury composé de :

Président	CHAHED Larbi	Pr	Université de Sidi Bel-Abbès
Examineurs	BASSOU Ghaouti	Pr	Université de Sidi Bel-Abbès
	ZOUKEL Abdelhalim	MCA	Université de Laghouat
	MANSOUR Omar	MCA	Université de Djelfa
Co-directeur de thèse	KHOUCHAF Lahcen	Pr. Habilité	Ecole des Mines de Douai (France)
Directeur de thèse	KADOUN Abd-Ed-Daïm	Pr	Université de Sidi Bel-Abbès

Année universitaire 2017/2018

Résumé

La microscopie électronique à balayage (MEB ou SEM en anglais) est un outil essentiel de caractérisation des matériaux. Cependant, l'observation des échantillons est limitée à des objets conducteurs et, si ce n'est pas le cas, la surface doit être au préalable métallisée. La possibilité de caractériser en SEM des échantillons naturels non métallisés ou n'importe quel échantillon a conduit plusieurs fabricants à ajouter une nouvelle dimension à la microscopie électronique : c'est le SEM à pression variable (VPSEM). Cependant, l'imagerie en mode électron rétrodiffusé rencontre un défi majeur en ce qui concerne la diffusion du faisceau d'électrons primaires par les atomes/molécules du milieu gazeux. Ce phénomène de diffusion (skirt) conduit à l'apparition de plusieurs artefacts au-delà de ceux qui sont familiers dans un MEB conventionnel. Le principal artefact reconnu est la dégradation de la résolution spatiale qui est délimitée par le volume d'interaction. Les objectifs de la recherche rapportés ici sont les suivants: (1) étudier l'élargissement et l'étendue de la fraction du faisceau d'électrons diffusée. (2) le développement d'une méthodologie originale et nouvelle, afin de faire face à l'effet du skirt sur l'émission et la détection des électrons rétrodiffusés (BSE). L'efficacité de cette étude est démontrée par sa capacité à quantifier les effets de certains paramètres sur la dégradation de la résolution spatiale des BSE. En outre, nous avons introduit une nouvelle approche pour déterminer la gamme de pression de fonctionnement qui assure une dégradation minimale de la résolution latérale en mode BSE pour n'importe quel matériau donné et un gaz donné.

Abstract

Scanning electron microscope (SEM) is an essential tool to characterize materials. However, samples observation is limited to conductive objects and, if not, the surface must first be metalized. The possibility to characterize non-metallic natural samples or any sample in SEM has led many manufacturers to add a new dimension to electron microscopy: it is the variable pressure SEM (VPSEM). However, the imaging with backscattering electron mode face a major challenge with regard to the scattering of the primary electron beam by the atoms/molecules of the gas medium. This phenomenon of beam skirting leads to the appearance of several artifacts beyond those familiar in conventional SEM. The main recognized artifact is the degradation of the spatial resolution which is delineated by the high-vacuum interaction volume. The objectives of the research reported herein were: (1) to study the broadening and the extent of the electron beam skirt. (2) and the development of an original and new approach in order to deal with the skirting effect on the emission and detection of backscattered electrons (BSE). The effectiveness of this study is demonstrated by its ability to quantify the effects of some parameters on the degradation of the BSE spatial resolution. Further, we have introduced a new approach to determine the operating pressure range that ensures minimal degradation of the lateral resolution in BSE mode for a given sample material and a given gas.

المخلص

المجهر الإلكتروني (MEB بالفرنسية أو SEM باللغة الإنجليزية) هو أداة أساسية لمعرفة خصائص المواد. ومع ذلك، فإن مراقبة العينات تقتصر فقط على المواد المعدنية الناقلة، فالمواد لا يمكن الكشف عنها إلا إذا كان سطحها مطلي بمادة معدنية. وقد أدت عدم إمكانية كشف العينات الطبيعية غير المعدنية لإضافة مجاهر الكترونية تعمل بتغيير الضغط من بينها المجهر الإلكتروني ذو الضغط المتغير بالفرنسية (MEB à pression variable)، الهدف الرئيسي من التصوير الإلكتروني هو إيجاد حلول لتدهور البيانات التحليلية المكانية الذي يتم تحديده من خلال حجم التفاعل. الهدف من هذا البحث هو (1) دراسة اتساع ومدى تأثير الحزمة الإلكترونية المتناثرة. (2) تطوير منهجية جديدة لحل مشكل الانبعثات الإلكترونية المسماة skirt والكشف عن اثر الإلكترونات المرتدة (BSE). وتتجلى فعالية هذه الدراسة من خلال قدرتها على قياس تأثيرات بعض العوامل على تدهور التحليلية المكانية لإلكترونات المرتدة (BSE). وعلاوة على ذلك، أدخلنا نهجا جديدا لتحديد مجموعة لقيم الضغط التي تضمن التقليل من مشكل تدهور البيانات التي تنتج عن الإلكترونات المرتدة (BSE) مهما كانت المادة (العينات) والغاز.

SOMMAIRE

INTRODUCTION	1
<u>CHAPITRE I</u>: LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE A PRESSION VARIABLE (MEB-PV)	3
I. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE	3
I.1. Introduction.....	3
II. LE DEVELOPPEMENT DE L'IMAGERIE DANS UN ENVIRONNEMENT GAZEUX	5
II.1. Surmonter les limites du SEM conventionnel	5
II.2. Aller plus loin	9
III. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE SOUS PRESSION DE GAZ	10
III. 1. Introduction	10
III.2. Instrumentation et mode opératoire.....	12
III.2.1. Terminologie	12
III.2.2. Imagerie et modes de détections.....	12
III.2.2. 1. Observation en mode électrons secondaire	12
III.2.2. 2. Observation BSE et Cathodoluminescence	15
IV.FONCTIONNEMENT DU VPSEM	16
IV.1. Imagerie a faible grossissement	16
IV.2. Haute résolution et imagerie à faible énergie.....	17
IV.3. Optimisation des conditions d'imagerie.....	19
IV.4. Influence du gaz	20
V. CONCLUSION	22
 <u>CHAPITRE II</u>: ETUDE DE L'INTERACTION ELECTRON-GAZ-MATIERE PAR LA METHODE DE MONTE CARLO	23
I. INTERACTION ELECTRON-GAZ DANS LE VPSEM	23
I.1. Introduction.....	23
I.2. Sections efficaces de diffusions	24
I.3. Transfert du faisceau d'électron-équations de base.....	32
I.4. Profil du faisceau électronique.....	35
1.4.1. Formulation du problème.....	35

I.4.2. Elargissement du faisceau d'électron (skirting):	38
I.5. Monte-Carlo dans le gaz.....	40
I.5. 1 Description des collisions.....	41
I.5. 2 Parcours électronique entre deux chocs.....	42
I.5. 3 Angles de diffusions.	42
I.5. 4 Pouvoir d'arrêt	43
I.5. 5 Trajectoire de l'électron	43
II. INTERACTION ELECTRON-SOLIDE DANS LE VPSEM.....	43
II.1. Historique.....	43
II. 2.1. Volume d'interaction et signaux générés.....	44
II. 2.2. Profondeur de pénétration des électrons dans la matière.....	45
II.3. Modélisation des trajectoires électroniques dans les matériaux par la méthode Monte-Carlo.....	46
II.3.1. Principe du model de la diffusion plurielle.....	46
II.3.2. Calcul du coefficient des électrons rétrodiffusés.....	47
III.3.3. Application de la simulation Monte Carlo.....	47
III. CONCLUSION.....	51
CHAPITRE III : LES ELECTRONS RETRODIFFUSES.....	52
I. INTRODUCTIO.....	52
II. ASPECTS PHENOMENOLOGIQUES.....	52
II.1. coefficient de rétrodiffusion.....	52
II.1.1. Variation du coefficient de rétrodiffusion η avec le numéro atomique Z pour divers matériaux.....	53
II.1.2. Variation du coefficient de rétrodiffusion η avec l'énergie incidente.....	54
II.1.3. Variation du coefficient de rétrodiffusion avec la densité.....	55
II.1.4. Variation avec l'angle d'incidence du faisceau primaire.....	56
II.2 Distributions des électrons rétrodiffusés.....	58
II.2.1 Distribution angulaire des électrons rétrodiffusés.....	58
II.2.2 Distribution spatial latérale des électrons rétrodiffusés.....	59
II.2.3 Distribution énergétique et angulaire des électrons rétrodiffusés.....	60
III. IMAGERIE EN ÉLECTRONS RÉTRODIFFUSÉES ET RESOLUTION SPACIAL.....	62
III.1. Dans un MEB Conventionnel.....	62
III.2. MEB à pression variable :.....	63
VI. CONCLUSION.....	65

CHAPITRE IV : EFFETS DU GAZ SUR LE FAISCEAU PRIMAIRE D'ELECTRONS – RESULTATS DES CALCULS MONTE CARLO.....	66
I.INTROUCTION	66
II. ETUDE DU PROFIL DU FAISCEAU D'ELECTRONS	67
II.1. Variation des rayons de skirt.....	67
II.2. Calcul de la fraction des électrons non diffusés :.....	71
II.3. La fraction diffusée.....	73
II.4. Libre parcours moyen.....	75
II.4.1 Effet du gaz.....	75
II.4.2 Effet de la pression.....	77
III. CONCLUSION.....	78
CHAPITRE V : EFFETS DU GAZ SUR L'EMISSION ET LA DETECTION DES ELECTRONS RETRODIFFUSES – RESULTATS DES CALCULS MONTE CARL.....	79
I.INTROUCTION.....	79
II. INFLUENCE DU GAZ SUR LES ELECTRONS RETRODIFFUSES DANS UN VP-SEM.....	79
II.1 Distribution spatiale des électrons rétrodiffusés.....	79
II.1.1 Effet du gaz sur la poire d'interaction.....	79
II.1.2 Effet du gaz sur la distribution spatial des BSE.....	82
II.2 Coefficient de rétrodiffusion (BSE..).....	91
II.3 BSE profile.....	98
II.4 Rayon de sortie des BSE (R_{bse}) en fonction du skirt.....	103
III. LES DISTRIBUTIONS ENERGETIQUES ET ANGULAIRES.....	107
III. 1 Distribution énergétique.....	107
III.2 Distribution angulaire.....	118
IV. CONCLUSION.....	121
CONCLUSION GENERALE.....	123
BIBLIOGRAPHIE.....	125

INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION

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). Ces nouveaux microscopes (VPSEM) 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 Monte Carlo.

Ce travail s'inscrit sur l'effet de gaz sur l'émission et la détection des électrons rétrodiffusés dans un VP-SEM à faible énergie. Des études antérieures (Zoukel 2013) ont été basées sur l'optimisation des paramètres expérimentaux pour lesquels les rayons X et la résolution latérale des BSE sont régis seulement par le volume d'interaction sous vide (le skirt devrait faire partie du volume d'interaction créé par le faisceau d'électrons primaire). Cette approche

était appliquée à basse pression et grande énergie du faisceau primaire. Dans notre travail, nous examinons l'effet du faisceau d'électrons diffusé sur la distribution des électrons rétrodiffusés (BSE) à la surface de l'échantillon par la simulation de Monte Carlo afin de trouver les paramètres expérimentaux optimaux nécessaires pour la représentation des BSE dans le VP-SEM à basse tension.

Le premier chapitre, est consacré à cette étude, comporte le principe de la microscopie électronique à balayage à pression variable (VPSEM) et un bref rappel des principes de base de cette technique de caractérisation des matériaux.

Dans le deuxième chapitre, nous avons décrit en détail le phénomène d'interaction électron-gaz. Nous avons insisté sur le calcul théorique des sections efficaces de collision dans le cas de gaz moléculaires (H_2O) et monoatomiques (Air et He). Deuxièmement nous avons détaillé les divers processus physiques qui interviennent lors de l'interaction électron-matière. Sur la base de ces calculs que repose notre simulation par la méthode de Monte Carlo (MC). Le troisième chapitre est consacré aux concepts théoriques et expérimentaux de l'émission des électrons rétrodiffusés. Les deux derniers chapitres présentent les résultats de nos calculs de simulation MC pour les trois gaz et les trois matériaux choisis : le carbone, le SiO_2 et l'interface C/ SiO_2 , en faisant varier tous les paramètres habituels d'observation.

Chapitre I

LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE ENVIRONNEMENTALE A BALAYAGE A PRESSION VARIABLE (MEB-PV)

CHAPITRE 1

LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE A PRESSION VARIABLE (MEB-PV)

I. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE

I.1. Introduction

La naissance de la microscopie électronique à balayage (MEB ou SEM en anglais), 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 détails sur le matériau au niveau microscopique et même nanoscopique. En outre, le SEM est apprécié pour sa capacité très précieuse d'observer dans un même endroit, la surface des échantillons, de visualiser les caractéristiques de la topographie et d'obtenir des informations quantitatives.

Pour les applications impliquant des matériaux métalliques, l'analyse et l'imagerie en SEM sont des questions relativement simples, sous réserve d'une bonne interprétation des résultats et d'une compréhension des facteurs qui peuvent affecter ceux-ci (tels que la propreté et la rugosité des surfaces, la formation d'oxyde, etc.) Toutefois, de nombreuses méthodes sont nécessaires lorsqu'il s'agit d'autres types de matériaux, due à des limites opérationnelles de l'instrument et de la physique de l'interaction faisceau d'électrons-échantillon.

Pour commencer, l'exigence fondamentale 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). Bien entendu, de nombreux spécimens biologiques, des mousses, émulsions, des systèmes alimentaires etc... contiennent de l'eau et / ou des huiles. Par conséquent, avant que l'imagerie ne puisse avoir lieu, ces échantillons nécessitent une préparation en vue d'éliminer les substances potentiellement volatiles, pour cela de nombreuses procédures ont été développées. Il s'agit notamment de la fixation chimique, déshydratation dans une série

d'alcool gradé, et le séchage. Les méthodes peuvent être très sophistiquées et consomment trop de temps. Un autre facteur est que la technique de préparation peut souvent changer la structure ou la nature chimique de l'échantillon à analyser, ce qui conduit à une imagerie d'objets non désirés. En outre, l'étude par microscopie électronique à haut-vide des spécimens à l'état liquide est, bien sûr, impossible, à moins que des procédures cryogéniques soient utilisées pour rendre l'échantillon solide. Toutefois, il convient de souligner que les méthodes associées à la cryo-préparation sont extrêmement efficaces pour une observation à haute résolution de matériaux hydratés-congelés.

Une autre considération dans un MEB est que durant l'observation, 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.

Les matériaux isolants doivent donc être soumis à un traitement supplémentaire sous forme d'une couche métallique. Le dépôt d'une fine couche d'un métal (typiquement quelques nm d'aluminium, d'or, le platine, le palladium, le chrome, etc ...) permet normalement d'éliminer l'excès de charge. Cependant, la présence de cette couche (donc de nature différente que l'échantillon) risque de réduire les contrastes topographique et de composition [1]. Les échantillons métallisés donnent seulement le contraste topographique, en raison de la courte profondeur d'émission des électrons dans les métaux, et donc la perte de la valeur du contraste de composition de l'échantillon sous-jacent.

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 [1]. 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. Les champs électriques dans et autour de l'échantillon se déforment rapidement, entraînant une

détérioration de la qualité de l'image, et parfois souvent importants, que l'échantillon ne peut être observé.

Aussi un liquide ou un échantillon hydraté directement observé au MEB, va dégrader 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 comme mentionné plus haut, 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 au MEB directement. Manifestement, il serait utile que les observations puissent être effectuées dynamiquement, in situ, et sans aucune étape de préparation et sans contrainte du vide.

Dans cette introduction nous avons exposé quelques-unes des contraintes du microscope électronique conventionnel vis à vis de l'accès à l'information en provenance de certains types d'échantillons ou de l'exécution d'expériences spécifiques. 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 MEB, fonctionnant sous environnement gazeux, comme nous le verrons dans le paragraphe suivant ainsi que dans le prochain chapitre.

II. LE DEVELOPPEMENT DE L'IMAGERIE DANS UN ENVIRONNEMENT GAZEUX

II.1. Surmonter les limites du MEB conventionnel

La solution était donc d'introduire une certaine quantité de gaz dans la chambre d'analyse afin de produire des ions positifs issus de l'interaction des électrons du faisceau primaire avec les atomes ou molécules du gaz. Ces ions viennent neutraliser les charges négatives à la surface de l'échantillon, au fur et à mesure de leur apparition. Pour cela, il a fallu trouver des solutions techniques afin de mettre la chambre d'analyse sous pression de gaz tout en gardant la colonne du microscope sous vide secondaire.

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 [2,3]. Puis, en 1970, Lane a démontré l'utilisation d'une ouverture limitée dans la

chambre d'un MEB [4], et aborda la conception d'un "environmental control stage", ainsi que la notion de section efficace de diffusion et 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 MEB capable de maintenir une forte pression tout en assurant le contrôle d'imagerie, par l'adaptation de la chambre d'analyse elle-même du MEB [5]. 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 [6]. Il travaillait sur une modification du JEOL JSM 2 SEM, ayant un système d'ouverture limitant la pression (Pressure Limiting Aperture ou PLA) de 100 μm pour séparer la région du haut vide contenant la source d'électrons à 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 rempli avec un mélange d'eau et de glace autour de l'échantillon. Un détecteur à l'état solide, d'électrons rétrodiffusés (ESB) a été utilisé, avec une résolution raisonnable pouvant aller jusqu'à un grossissement de 2000. La présence du système d'ouverture avait réduit l'amplitude de balayage du faisceau d'électrons et le champ de vision était limité, et le minimum était un grossissement de 100 [7].

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'objet non isolants à des pressions au-dessus de ~ 10 Pa, semble réduire les effets de charges. L'explication se concentrait sur l'idée que le film d'eau liquide a été responsable de l'apparition 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 en 1978 avait proposé que les collisions entre les électrons et les molécules de gaz, entraînent la production d'ions positifs (voir von Engel, 1965 [8]), et leurs attractions vers la charge négative de l'échantillon, qui était le mécanisme observé de la neutralisation de la charge excédentaire.

Moncrieff et ses collègues de travail ont calculés la valeur et les effets de la diffusion des électrons primaires par l'azote [9]. Une conclusion importante de ce travail est que, bien que certains électrons primaires fussent 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 l'intensité du 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 Semra Pty 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 a 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 une distance parcourue dans le gaz 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 de cette ouverture devrait être ramenée à $\sim 13\ \mu\text{m}$ [7]. Il en résulte une très grande restriction du champ de vision. Par conséquent, pour améliorer la situation, Danilatos et Robinson en 1979 ont introduit deux systèmes d'ouvertures (2 PLA) avec trois zones de pompage différentiels. Au même temps, Shah et Beckett [10] avaient obtenu des résultats similaires au Royaume-Uni, en utilisant l'acronyme MEATSEM (moist environment ambient-temperature SEM), et après une année Neal et Mills [11] 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 [12].

Dans les années 1990, d'autres instruments commençaient à être disponibles. Il s'agit du SEM à faible vide, (LVSEM, JEOL); naturel SEM (NSEM, Hitachi); SEM à environnement contrôlé (ECO SEM, Amray Inc) 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 FEI, qui est connue sous le nom de FEI Company en 2002.

Ainsi, l'imagerie dans un milieu gazeux est devenue un phénomène mondial et occupe maintenant une grande partie du marché du SEM. Cependant, il ressort de la discussion ci-dessus que les stratégies de marketing des différentes entreprises en cause, ont entraînés une multitude de noms et des confusions. Il n'y a pas de norme, en terme générique, ce qui rend très difficile de parler de la technologie sans l'aide d'une marque ou marque déposée. Toutefois, deux termes qui sont apparus comme les plus attirants sont : « pression variable » et « environnementale ». La distinction entre les deux, apparaît clairement dans le contexte de l'expérience. Idéalement, il serait plus pratique de créer un seul terme descriptif, plutôt que d'avoir à appeler explicitement une distinction entre les techniques qui utilisent essentiellement la même technologie de base. Par conséquent, afin de simplifier l'utilisation d'acronymes, la terminologie utilisée dans cette thèse sera VPSEM (microscope électronique à balayage à pression variable). 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 détection, le gaz environnant est au cœur de toutes ces méthodes.

- Détection du signal ionique via le courant induit d'échantillon [13-14].
- Collecte du signal d'électrons secondaires amplifié par le gaz [15-18]
- Luminescence du gaz où le signal photonique obtenu est amplifié par un photomultiplicateur [19, 20].
- Utilisation d'un détecteur d'électrons secondaires conventionnel de type Everhart-Thornley, séparé physiquement de la haute pression régnant dans la chambre d'échantillon [21, 22].

II.2. Aller plus loin

Depuis les premiers travaux examinés ci-dessus, certains nombres d'améliorations apportées à la théorie et à la pratique du VPSEM ont été mises au point. Les processus touchant l'amplification des signaux ont été étudiés plus en détail [17,23] et les propriétés d'imagerie sous différents gaz ont été bien explorées [24-26]. Les calculs ont été effectués et des mesures expérimentales ont été réalisées pour évaluer le profil du faisceau d'électrons primaires, en tenant compte de la déviation des électrons formant le « skirt » [27-34]. En addition à cela, des travaux ont été entamés pour déterminer dans quelle mesure la présence du gaz dans la chambre peut influencer quantitativement les résultats de la microanalyse X. Les théories ont été postulées et les algorithmes ont été écrits pour corriger les « faux » rayons X produits par les électrons primaires diffusés [35-41].

Pendant ce temps, plusieurs expériences ont commencé à suggérer que peut être en revanche il y a un certain nouveau mécanisme de contraste disponibles dans le VPSEM, comme ceux qu'on trouve dans les SEMs (telles que le contraste de tension), mais avec plus de complication dont les effets dépendent des conditions d'exploitations spécifiques du VPSEM [42-46]. À partir de 1997, il y avait beaucoup d'activité dans la communauté utilisant le VPSEM issue des résultats présentés par Griffin (1997) et Doehne (1998) [47,48]. Pendant l'observation des échantillons minéraux polis, ils ont observés que certains éléments étaient seulement visibles sous certaine condition, attribuée à un mécanisme de charge [49]. À la même époque, des travaux ont été menés pour expliquer le contraste observé dans les liquides hétérogènes [50,51] et même un effet transitoire a été observé dans ces systèmes [52].

Le potentiel du VPSEM dans l'étude des spécimens ayant trait à la science de la vie a également été exploré et évalué, et les méthodologies sont en cours de développement, ce qui a permis l'observation des matériaux biologiques hydratés très délicats, sans préparation laborieuse [53-56]. Divers aspects fondamentaux et des applications du VPSEM peuvent être trouvée dans un certain nombre d'articles de revues, par exemple Newbury (2002) [40]; Donald (2003) [57], Stokes (2003b) [58]; Muscariello et al. (2005) [59]; Thiel et Toth (2005) [60], dans un numéro spécial de la microscopie et de microanalyse [61] et, dans quelques chapitres de livres (Doehne, 1997b [62] ; Baker et al, 2003 [63]; Stokes, 2003a [64]; Donald, 2007 [65]; Griffin, 2007 [66]).

III. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE SOUS PRESSION DE GAZ

III. 1. Introduction

L'utilisation d'une pression élevée de gaz dans la chambre d'analyse d'un microscope électronique à balayage, avec des détecteurs électroniques bien spécifiés permet de favoriser les conditions nécessaires à l'étude et l'imagerie d'échantillons biologiques, sans aucune préparation. Des conditions de fonctionnement à haute pression combinée avec le système de refroidissement de l'échantillon peuvent permettre à des échantillons hydratés d'être maintenus dans leur état naturel pendant de longues périodes de temps. Également les processus dynamiques peuvent être facilement observés. Un plus large éventail d'options de détection et de paramètres d'imagerie, introduisent une plus grande complexité d'opération au VPSEM que celle présente dans un SEM conventionnel. L'instrumentation actuelle avec des sources d'émission d'électrons à effet de champ a permis une résolution à l'échelle nanométrique (environ 1 nm) et une capacité de basse tension de faisceau (0,1 kV). Toutefois, à des conditions extrêmes de pression variable, des informations utiles peuvent être obtenues à des résolutions de 2 à 4 nm, et avec des tensions d'accélération allant jusqu'à 1,0 kV.

L'utilisation d'un gaz dans la chambre d'analyse d'un échantillon afin de réduire au minimum l'excès de charges est bien établie. Les premières techniques ont été destinées à l'imagerie d'échantillons minéraux et la microanalyse en utilisant l'argon à des pressions de 15 Pa (0,1 torr), avec des détecteurs d'électrons rétrodiffusée (BSEDs [67]). L'extension de l'opération à des pressions élevées (à 3000 Pa) a été atteinte à la fin des années 1970, avec un pompage différentiel de la colonne optique et l'introduction de multiples ouvertures de limitation de pression (voir fig.I.4), [68].

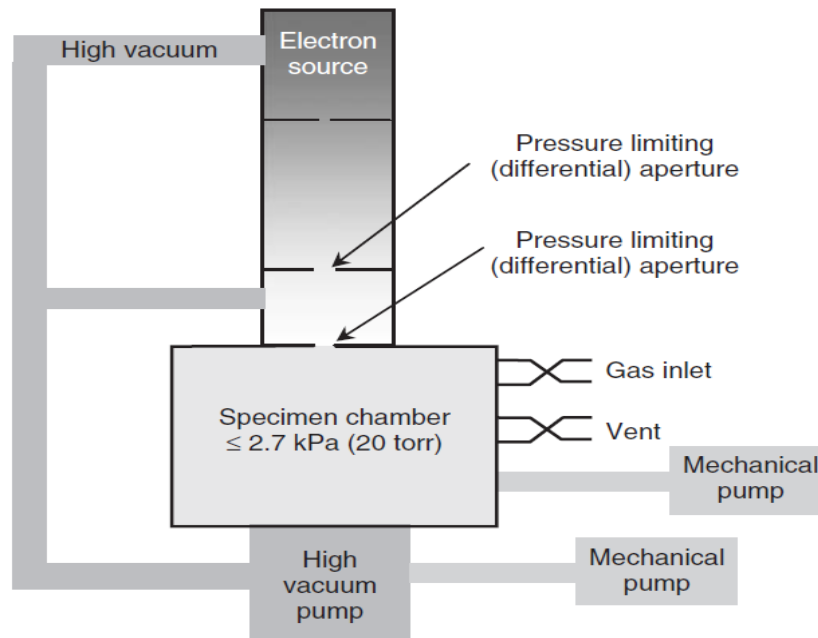


Figure I.1. Schéma d'un microscope électronique à balayage sous pression de gaz

L'opération à ces niveaux supérieurs de pression a permis la stabilisation d'échantillons hydratés et même des liquides, lorsqu'ils sont utilisés en conjonction avec des systèmes de refroidissement et de la vapeur d'eau comme gaz dans la chambre d'analyse [69]. La dernière contrainte vis à vis de l'imagerie, utilisant un faible signal d'électrons d'énergie secondaire a été surmonté grâce au développement de «détecteur d'électrons secondaires environnemental », qui a rapidement évolué vers le «Détecteur à gaz d'électrons secondaires (GSED [70,71]).

Les développements récents de la technologie des détecteurs ont permis la réalisation d'image de qualité (résolution et rapport signal-bruit) comparable avec ceux des SEM [72,73].

Dans ce qui va suivre, nous allons montrer comment on peut appliquer ces techniques à l'étude d'échantillons biologiques. Nous commencerons par fournir un résumé aussi clair et concis que possible des instruments disponibles, des options du signal de détection, et de l'information obtenue par les différents signaux détectables.

III.2. Instrumentation et mode opératoire

III.2.1. Terminologie

Le VPSEM fonctionne à des pressions élevées dans la chambre d'analyse. Une variété de gaz peut être utilisée, et les différents gaz potentiellement utilisables ont fait l'objet de diverses études [25]. Pour l'imagerie d'échantillons biologiques, deux gaz dominent l'usage courant ; l'air et la vapeur d'eau. La vapeur d'eau est sans doute le gaz le plus efficace, utilisé depuis l'origine du développement l'VPSEM. La vapeur d'eau a des caractéristiques d'ionisation idéales, et se comporte bien en matière d'imagerie. D'autres gaz peuvent être sélectionnés pour plusieurs raisons, souvent parce que l'échantillon est sensible à certains gaz ou parce que les conditions d'une expérience entraîne l'utilisation d'un gaz particulier. Nous traiterons certains de ces gaz et leurs effets, ainsi que quelques-unes de leurs applications dans le chapitre II.

III.2.2. Imagerie et modes de détections

Avant tout, c'est le mode de détection électronique secondaire (SE) qui a été introduit, employé et développé dans l'ESEM par Danilatos qui a reçu le plus d'attention dans l'industrie à ce jour. En mode rayon X, où le skirt d'électrons présente une barrière de résolution spatiale, un nombre important de travaux a été réalisés à partir de Bolon et al. (1989) [74] jusqu'à récemment avec Zoukel et al. (2013) [75]. Le mode d'électrons rétrodiffusé (BSE) a été initialement utilisé par Robinson (1974) [6] mais culminé par le système optimal de détection des BSE élaboré par Danilatos (1985) [76]. Cependant, Le mode BSE n'est pas souvent rencontré dans les travaux qui emploient les machines commerciales VPSEM. De même, la cathodoluminescence a été utilisé par Danilatos mais toujours non disponible sur les machines commerciales. En particulier, la prédominance des électrons secondaires par rapport à l'imagerie BSE peut être attribuée généralement à l'idée que le premier offre une meilleure résolution par rapport au deuxième. En fait, la nouvelle possibilité d'examiner les surfaces naturelles dans ESEM en présence de gaz devrait être une raison supplémentaire pour augmenter la popularité du mode BSE, ce qui est meilleur pour le contraste de composition, mais aussi avec un excellent contraste topographique sous des configurations spéciales de détecteurs. Récemment l'imagerie en mode BSE dans l'industrie du SEM à immerger par la mise en œuvre du filtrage d'énergie et l'assemblages de plusieurs détecteurs (Reimer, 1985) [77] fournissant des avantages accrus par rapport aux détecteurs d'électrons rétrodiffusées ordinaires.

III.2.2. 1 Observation en mode électrons secondaires

Le détecteur Everhard-Thornley ne fonctionne pas à des conditions de pression très élevée, ceci est dû à la production d'une décharge à haute tension. Une gamme de détecteurs d'électrons secondaires a été élaborée, basée sur l'attraction d'électrons secondaires vers la grille polarisée. Dans tous les cas, les électrons émis interagissent avec le gaz et une cascade d'amplification du signal d'électrons se produit vers la grille polarisée (fig.1.4.a). Les électrons émis sont accélérés à un point où ils peuvent ioniser une molécule de gaz, puis le processus se répète avec l'électron résultant.

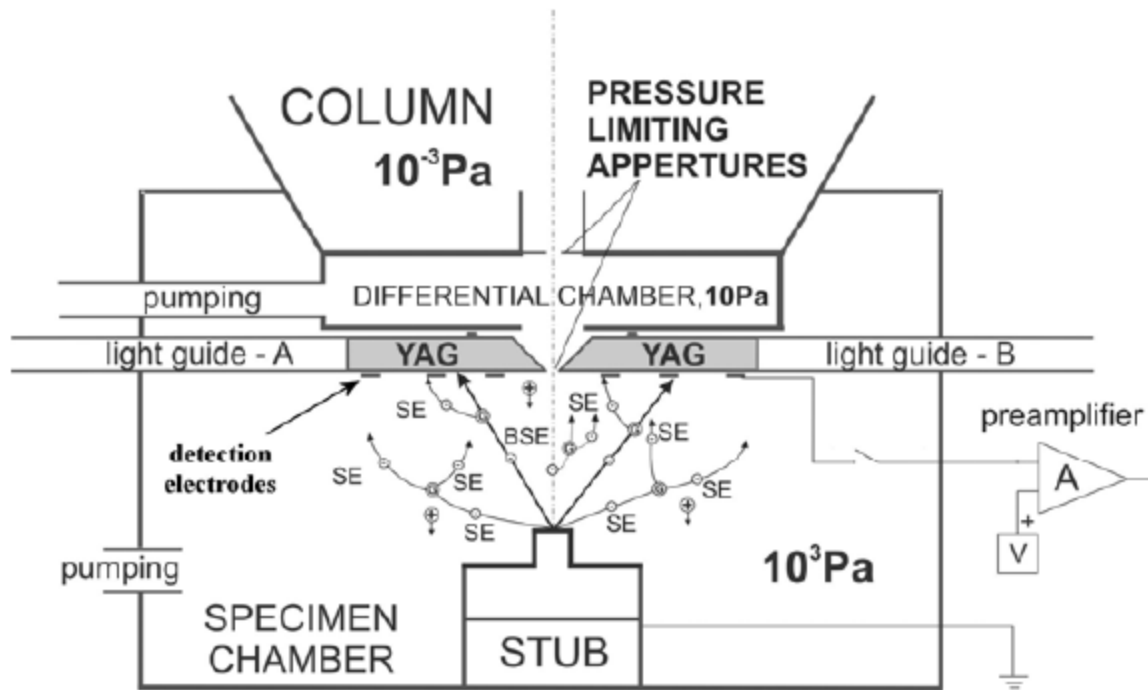


Figure I.2.a. Principe du GSED

Le signal d'électrons résultant est appelé signal d'électrons secondaires du gaz (GSE). Le plus souvent, le détecteur GSE mesure le flux du signal dans la grille polarisée [16], une deuxième variante mesure le courant d'échantillon qui est en fait le flux d'ions nappant la surface de l'échantillon, et résultant de l'amplification électrons-gaz [53].

La troisième variété, mesure la luminescence du gaz après recombinaison [78]. La cascade des électrons et les divers détecteurs GSED (gaseous secondary electron detector) sont indiqués dans la Figure I.2.b

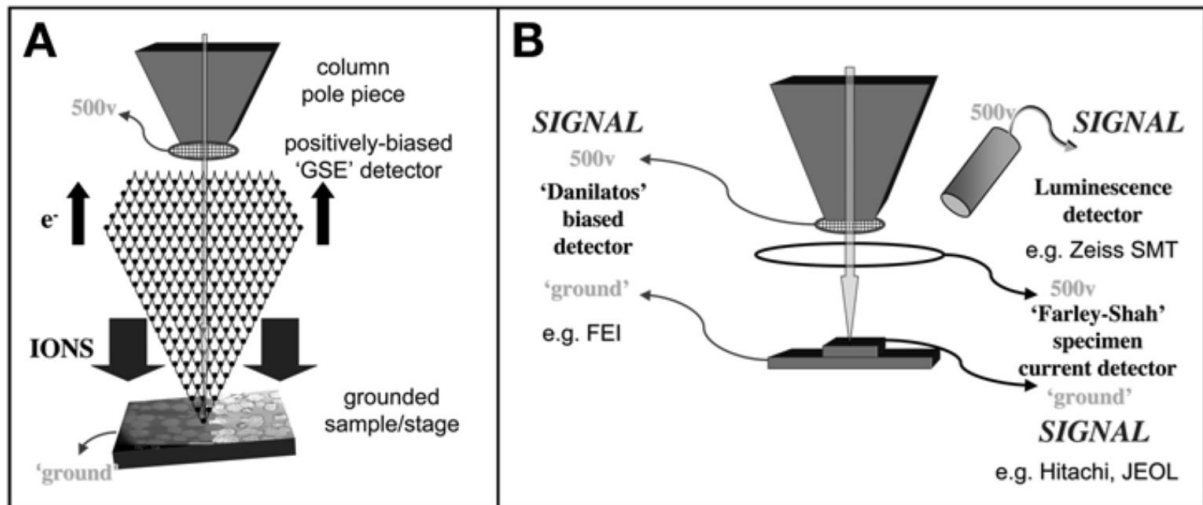


Figure I.2.b. Schéma illustrant (A) le processus d'amplification (B) détecteurs d'électrons secondaires à gaz (GSE) utilisables dans le microscope à balayage à pression variable et dans le microscope électronique à balayage environnemental

Le faisceau primaire et les électrons rétrodiffusés contribuent au signal GSED détecté. Le niveau de contribution est en fonction des paramètres de diffusion. La diffusion est en relation inverse avec l'énergie du faisceau primaire, c'est-à-dire une faible énergie du faisceau incident entraîne un degré très élevé de diffusion. Certaines variétés de détecteur recueillent en parallèle le signal d'électrons rétrodiffusés et le soustrait du signal GSE pour fournir un signal pur de type SE. Une étude complète sur le processus d'amplification et les mécanismes de contraste ont été présentés par Thiel, 2005 [60].

La présence de l'amplification dans le gaz et le fonctionnement du GSED produit un excès d'ions positifs qui dépassent le courant du faisceau d'électrons primaire. Les ions se déplacent lentement par rapport aux électrons, et peuvent être observés pratiquement comme une brève instabilité d'image SE due au déplacement à une nouvelle zone de l'échantillon. Lorsque les ions dominent le signal, un grippage de l'image est présent et surtout à des taux très rapide de balayage du faisceau. Plus important encore, les ions peuvent se recombinaison et réduire ainsi le signal GSE. Un deuxième élément détecteur, mis à la terre ou légèrement polarisé négativement, introduit entre l'échantillon et le détecteur GSE polarisé permettra de réduire cet effet, et peut sensiblement améliorer la qualité de l'image dans certaines conditions [79,80].

III.2.2. 2 Observation BSE et Cathodoluminescence

À l'origine, l'imagerie en mode VPSEM a été fondée à la fois sur l'état solide et sur le scintillateur BSED et les résultats obtenus restent excellents sur des échantillons biologiques (voir Fig.I.5). Dans la pratique, la limitation pour le VPSEM est dans l'épaisseur de l'assemblage du BSED qui est placé à la normale directement au-dessus de l'échantillon (voir Fig.I.6). Un BSED épais peut compromettre sérieusement le minimum possible atteint par la distance de travail et doit être évité. Pratiquement, une longue distance de travail, pourra limiter la qualité d'image à des pressions modérées et / ou une faible tension d'accélération.

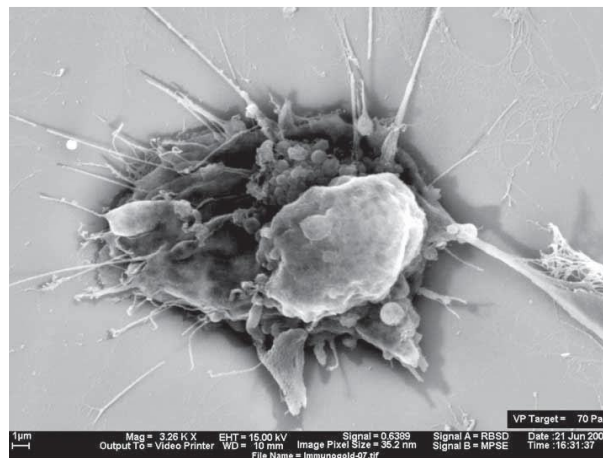


Figure I.3. Image BSE-GSE mixte de cellules cancéreuses cultivées sur verre [66]

L'imagerie CL est couramment réalisable avec des détecteurs CL. Le seul compromis est que les émissions dues à la luminescence du gaz et l'imagerie par contraste de charge peuvent interférer avec le signal CL. Pratiquement la contribution au signal CL à partir de ces autres processus peut être facilement déterminée par l'imagerie GSED et ensuite on identifie les différentes contributions au signal.

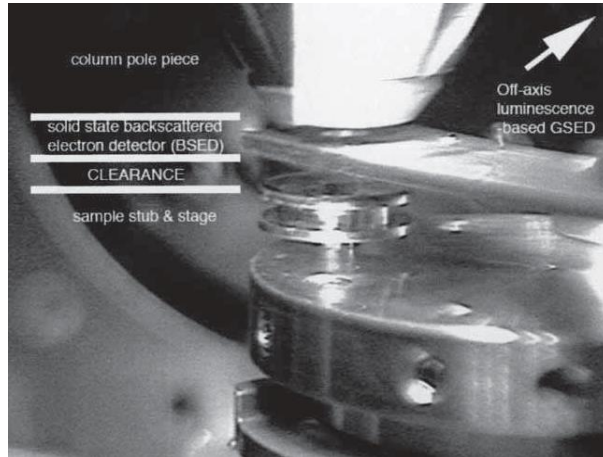


Figure I.4. Vue par caméra CCD d'un détecteur à électrons rétrodiffusés (BSED) placé au-dessus de l'échantillon sous la pièce polaire avec un détecteur de type GSED placé loin de l'axe. On voit bien que la présence du BSED augmente le GPL [66]

IV.FONCTIONNEMENT DU VPSEM

IV.1. Imagerie a faible grossissement

Dans le VPSEM, le fonctionnement à des pressions faible signifie qu'il ya peu de restriction sur l'ouverture finale (PLA) et un grand champ de vision peut être réalisé. Comme dans un MEB conventionnel, le champ de vision est sensible à la fois à la distance de travail et la tension d'accélération. À titre d'exemple, pour une longue distance de travail et une faible tension d'accélération, un large champ de vision de 9-mm peut être obtenu dans l'Electro-Scan E - 3 ESEM en mode VPSEM. Le GSED utilisé pour le VPSEM et le grand champ de vision d'imagerie peut être placé en dehors de l'axe, comme chez le cas du détecteur à Grand Champ du FEI et de Zeiss. Ce positionnement hors axe fournira un degré de sensibilité directionnelle ou d'ombrage qui renforce les détails de l'image.

Pour de grande distance de travail, une faible pression de gaz et une faible polarisation du GSED peuvent être utilisés à la fois avec un degré d'annulation de charge similaire. Un résumé pratique des conditions optimales d'imagerie peut être exprimé comme le produit suivant (V. Robinson, personnel communication):

$$Pressure \times Working Distance \times GSED\ bias = an\ Imaging\ constant$$

Cette équation est un guide pour varier les différents paramètres en conservant la qualité du signal. Un autre avantage apprécié des VPSEM, c'est le régime de la pression dynamique qui permet l'observation d'échantillons qui se dégaze sensiblement. La chambre des capteurs de pression permet de mesurer tout simplement la pression totale de la chambre et tout dégazage issu

de l'échantillon. Cela permet à de grands échantillons d'être examinés intact, par exemple, des rongeurs ou des crânes humains, des mâchoires,...etc.

IV.2. Haute résolution et imagerie à faible énergie

Le plus grand défi pour l'imagerie est que le faisceau primaire soit réduit en énergie (basse tension), ce qui entraîne que la probabilité de diffusion d'électrons primaire augmente de manière significative. La difficulté de fonctionnement à basse énergie de faisceau primaire (d'échantillons biologiques) est clairement illustrée dans la Figure (I.5) [81]. La limite actuelle d'opération à basse tension du VPSEM est en dessous de 1 kV et ces images (voir figure I.6) ont été obtenues à partir d'une très faible distance de travail, très haut courant de faisceau et très lent taux de balayage (à cause du très faible rapport signal / bruit).

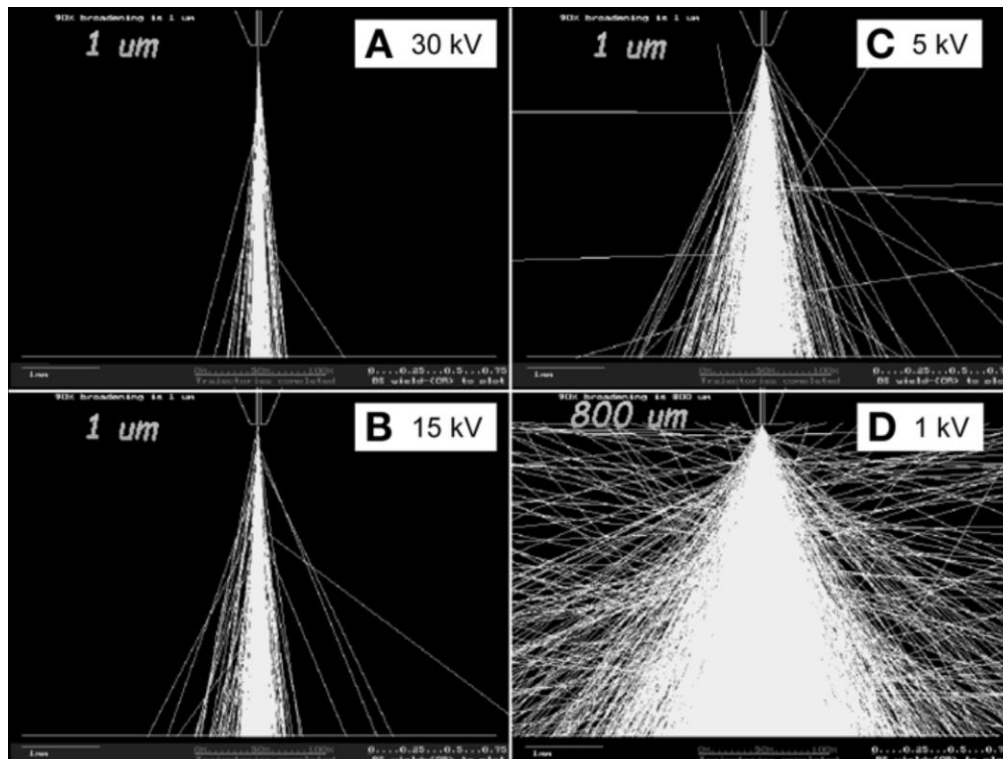


Figure I.5. *Modélisation des effets de la diffusion pour différentes énergies du faisceau d'électrons primaire à une distance de travail de 10 mm et pour une pression de 270Pa. Le model illustre l'ampleur de la diffusion des électrons primaires au dessous de 5keV.*

Au-dessous de 1 kV, des images [66] ont été obtenues par divers instruments expérimentaux et jusqu'à 0.5 kV sous conditions VPSEM (voir Figure I.6). Généralement une énergie du faisceau

autour de 3-5 kV offre un équilibre acceptable entre le S/R de l'image et la qualité des images d'échantillons biologiques.

Il est important de noter que le courant du faisceau primaire chute avec l'énergie du faisceau sous condition constante de la taille de spot (lentille condenseur) dans la colonne du SEM conventionnel. Par exemple, à 5 kV, le courant du faisceau d'électron primaire est seulement 20% de celui à 20 kV. A basse énergie du faisceau, la taille de spot doit être augmentée pour maintenir un rapport signal / bruit acceptable. Une cage de Faraday, ou même le courant d'échantillon peut être utilisé pour contrôler cette variation. L'exception à ce comportement est la colonne du (HP) SEM, où les électrons du faisceau primaire sont extraits à un niveau constant d'énergie, puis ralentis à une valeur près de la pièce polaire de la colonne.

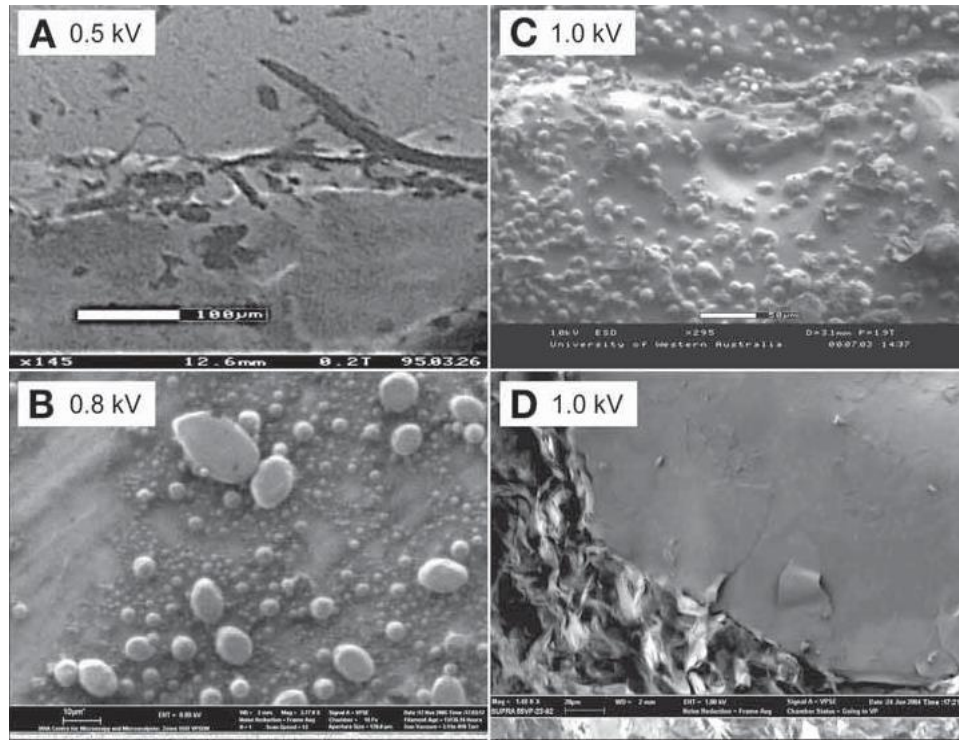


Figure I.6. Exemples d'images obtenues à très basse tension d'accélération (0,5-1,0 kV) dans un microscope électronique à balayage à pression variable et environnemental. Image (A) à 0,5 kV est une bande de carbone sur une canette d'aluminium. La distance de travail réelle a été de 2,0 mm avec une pression de 30 Pa (H₂O). Image (B) à 0,8 kV est de l'étain sphéroïdes à 10 Pa (air) et 2,0 mm; l'image (C) est de microsphères de fer sur une bande de carbone à 250 Pa (H₂O) et de 3,1 mm; image (D) est d'un mica (minéral) dans un flocon siltstone à 5 Pa (air) et 2,0 mm.

La qualité d'image obtenue dans un VPSEM est typiquement moins bonne que celle atteinte dans un MEB. Les causes sont la diffusion du faisceau primaire et la faible efficacité du GSED relative

à la génération du courant dans la lentille du détecteur SE. La résolution réelle de l'image est plus une fonction de l'échantillon et l'énergie du faisceau primaire. Sur certains échantillons, des résolutions de quelques nm à 5 kV ont été réalisés [16, 82].

IV.3. Optimisation des conditions d'imagerie

Certains travaux de recherche suggèrent l'utilisation d'une faible énergie du faisceau incident comme condition pour capturer tous les détails d'une surface d'échantillon biologique (faible numéro atomique) mais la pertinence de cette suggestion dépend, en réalité, de l'échelle d'observation souhaitée (du grossissement). A faible grossissement (environ $\times 400$ à l'écran) le volume d'interaction d'un faisceau d'énergie plus élevé (15 kV) est de l'ordre de grandeur du pixel (environ 1 μm), et ce protocole devient moins important [82] (voir Figure I.7).

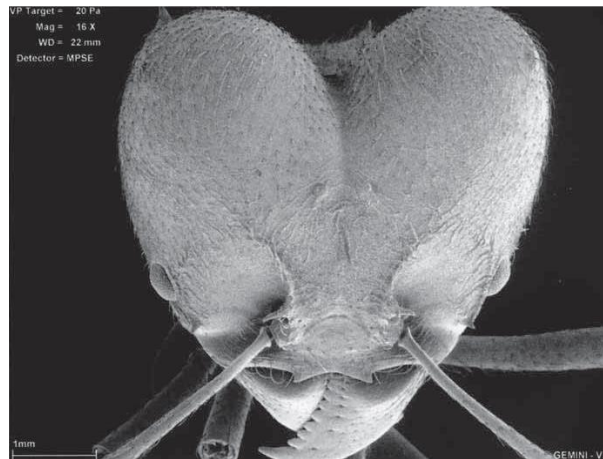


Figure I.7. Image mixte en mode SE et BSE à 20keV, 20Pa (air) et 22mm de distance de travail

Dans ces conditions, la détection en mode BSEI peut-être plus utile à l'observation de ces types d'échantillons [80] (voir Figure I.8).

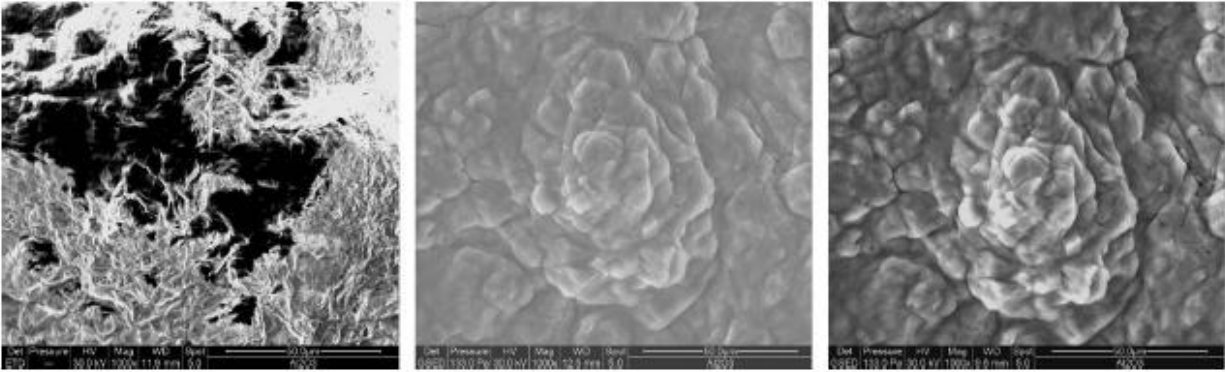


Figure I.9. Comparaison de trois images d'un échantillon d' AlO_2 obtenues [83] :
(a) : sous vide à 10^{-3} Pa (b) : sous pression de H_2O à 300 Pa (c) : sous pression de O_2 à 300 Pa

Pour les expériences à basse température, les gaz tels que l'hélium, l'azote et les oxyde nitreux peuvent être sélectionnés pour leurs hautes pressions de vapeur. Les gaz tels que l'éthanol ou le Difluorure de xénon peuvent être choisis pour des réactions spécifiques avec un substrat, ou peut-être un gaz inerte, tels que l'argon qui peut être nécessaire pour éviter certaines réactions, particulièrement à hautes températures. Autres gaz peuvent simplement servir à fournir des pressions de vapeurs nécessaires à un gaz approprié pour stabiliser l'échantillon (par exemple, la vapeur d'eau, le dioxyde de carbone). Le gaz a également un très grand effet sur la dispersion des électrons primaires avant la formation du signal. Les résultats présentés jusqu'à présent, indiquent que l'hélium (**Figure I.10**) est un bon candidat pour minimiser les interactions faisceau- gaz (Stowe et Robinson, 1998; Kadoun et al., 2003) [26,33] à l'inverse des autres gaz.

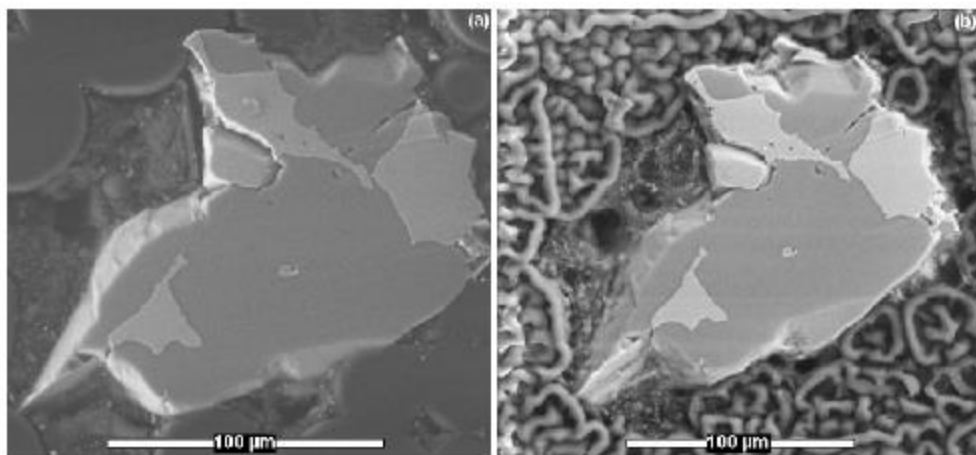


Figure I.10. Micrographies d'une particule de Si recouverte de particules de Fe
(a) sous pression de H_2O ; (b) sous pression de He

V. CONCLUSION

Dans ce chapitre, pour les besoins de la suite du manuscrit, nous avons décrit de manière non exhaustive, les grandes étapes historiques par lesquelles est passée la technologie de la microscopie électronique de ses débuts jusqu'à l'avènement des microscopes travaillant à pression variable, objet de notre intérêt. Dans le chapitre suivant, nous allons nous intéresser plus en détail à ce genre de microscope.

Chapitre II

**ETUDE DE L'INTERACTION ELECTRON-MATINIERE PAR LA
METHODE DE MONTE CARLO**

CHAPITRE II

ETUDE DE L'INTERACTION ELECTRON-GAZ-MATIERE PAR LA METHODE DE MONTE CARLO

I. SIMULATION MONTE CARLO DE L'INTERACTION ELECTRON-GAZ DANS LE VPSEM

I.1. Introduction

Ce chapitre se divise en deux principales sections, premièrement une description détaillée de l'interaction électron-gaz ainsi qu'une modélisation Monte Carlo dans le gaz sera présentée. La deuxième section décrit l'ensemble des équations nécessaires pour la simulation d'une trajectoire d'électrons dans un solide.

L'interaction du faisceau d'électrons avec un gaz dans un VPSEM produit plusieurs phénomènes tels que la diffusion d'électrons primaires et la génération (i) d'électrons secondaires, (ii) d'ions positifs et / ou négatifs, (iii) rayons X, (iv) atomes et / ou molécules excitées, (v) scintillation du gaz (vi) dissociation moléculaire. Ces phénomènes, généralement dégradent la qualité d'image par l'introduction d'une composante de bruit de fond qui s'ajoute au signal émis par l'échantillon. Les électrons primaires qui sont dispersés introduisent «directement» un bruit de fond par la génération d'électrons secondaires et de rayons X de l'échantillon à de très grandes distances, loin du point d'impact du faisceau d'électrons, réduisant ainsi le rapport signal / bruit dans les images et la microanalyse X, respectivement. Les électrons primaires dispersés contribuent à ce qui est appelé SKIRT qui entoure la fraction d'électrons non diffusées [94]. Les phénomènes additionnels cités ci-dessus (i à vi), qui sont produits en conjonction avec la diffusion du faisceau primaire, introduisent «indirectement», un bruit de fond au signal désiré. Cependant, ces signaux peuvent être amplifiés dans le gaz, et détectés avec les électrons émis par l'échantillon. Cette composante de bruit de fond ajoutée au signal, dépend du mode de détection utilisé.

La diffusion du faisceau d'électrons est de première importance, car le taux de diffusion des électrons primaires détermine les limites fondamentales de la résolution spatiale, rapport signal/bruit, et le contraste dans les images ainsi que la microanalyse X obtenues dans un VPSEM [38,84]. Plusieurs auteurs, comme Adamiak & Mathieu [85], Danilatos [13, 84,86], Farley & Shah [87], Gillen et al. [29], Kadoun et al. [33], Phillips et al. [30], Stowe & Robinson [26], Thiel et al. [31], Wight et al. [28, 88] et Wight & Zeissler [32] ont étudiés la diffusion électrons-gaz dans un VPSEM. Avant toute analyse théorique directe de la diffusion du faisceau d'électrons et la formation de skirt dans le VPSEM, il est essentiel de connaître les

sections efficaces associées à l'interaction électron-gaz, puis 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).

I.2. Sections efficaces de diffusions

Il est d'une importance fondamentale d'étudier la diffusion du faisceau d'électrons résultant de la collision des électrons avec les molécules ou les atomes du gaz. Lors du passage du faisceau d'électrons primaires issu de la colonne optique, à travers la masse gazeuse, un certain pourcentage d'entre eux est l'objet d'événements diffusants. La fraction des électrons diffusés dépend du type de gaz, de la pression de la chambre (P), de l'énergie du faisceau (E) et de la distance de travail (L).

Les collisions se produisent lorsque les électrons interagissent avec les particules de gaz dans une zone représentée par la section efficace totale, qui traduit la probabilité d'un événement diffusant. La section efficace totale de diffusion est une combinaison de la section efficace de diffusion élastique et inélastique.

Une des premières études de la diffusion des électrons sous faible pression de gaz dans un microscope a été réalisée par Moncrieff et al. [1]. Dans son papier, une analyse théorique de la diffusion d'électrons dans un microscope à faible vide contenant N_2 a été comparée aux résultats expérimentaux obtenus. Cependant, les études ont été réalisées avec un seul régime de diffusion. Ils utilisaient la section efficace différentielle théoriquement obtenues par Lenz [89] qui décrit la diffusion simple des électrons avec les atomes dans les solides. Ces auteurs ont suggéré que cette section efficace de diffusion atomique de Lenz peut être également applicable à la diffusion simple dans les gaz, avec une légère modification dans sa formulation mathématique afin de tenir compte de la diffusion par des gaz moléculaires. Cette hypothèse est fondée sur le fait que la probabilité pour que les électrons subissent plus d'une collision est faible. Les sections efficaces différentielles obtenues par Lenz ont été générées en utilisant la section efficace de Rutherford modifiée en utilisant le modèle théorique de Wentzel [90].

Les sections efficaces inélastiques différentielles atomiques de diffusion utilisées sont issues de la diffusion Compton des rayons X. Toutefois, les facteurs de diffusion incohérents nécessaires ont été obtenus uniquement pour les grands angles de diffusion. Pour les faibles angles de diffusion Moncrieff et al. [1] ont utilisé une expression analytique de la section efficace inélastique de Burge et Smith [91]. Puisque l'azote (N_2) a été utilisé dans des

expériences, les sections efficaces atomiques différentielles ont été modifiées pour tenir compte des molécules diatomiques.

Les sections efficaces élastiques différentielles moléculaires ont été obtenues en utilisant l'approximation indépendante du centre de diffusion de Massey et al. [92], qui donne simplement une section efficace élastique différentielle deux fois supérieure à celle de la section efficace différentielle atomique, multiplié par une expression basée sur des effets de diffraction entre les atomes de la molécule. Cependant de nombreuses hypothèses ont été formulées dans cette approche, tels que (i) les atomes dans la molécule peuvent être considérés séparément comme des centres de diffusion, (ii) les configurations de la liaison moléculaire n'ont pas d'incidence sur les trajectoires électroniques par rapport à ceux d'un atome, (iii) la diffusion multiple au sein d'une molécule est négligeable, (iv) aucune ionisation ne se produit dans le gaz [9]. Les sections efficaces différentielles moléculaires ont été obtenues en supposant que la diffusion moléculaire est incohérente, ce qui conduit à une section efficace différentielle moléculaire d'une valeur exactement double par rapport à celle de la section efficace différentielle inélastique atomique.

Farley et Shah [87] ont également examiné la diffusion d'un faisceau d'électrons sous pression de N_2 et H_2O . Les sections efficaces de diffusions théoriques de N_2 ont été obtenues en utilisant les mêmes méthodes et hypothèses de calcul que ceux de Moncreiff et al. [9]. Toutefois, les sections efficaces de diffusions théoriques obtenues par Farley et Shah [97] sont plus élevées d'environ 50% pour une même énergie du faisceau d'électrons. Cette différence est attribuée à l'utilisation de rayons atomiques différents et de l'absence d'une expression traduisant la diffraction dans la section efficace différentielle de diffusion élastique moléculaire utilisée.

Gauvin a étudié théoriquement la diffusion des électrons [38], pour obtenir de nouvelles procédures de correction afin de réduire les effets du skirt sur les résultats de la microanalyse X quantitative dans l'ESEM ou VPSEM. Sa théorie est basée sur la diffusion simple sous l'hypothèse que les collisions inélastiques sont négligeables, et donc la majorité des électrons diffusés sont provoqués par des collisions élastiques. Cependant, il est important de noter ici que cette hypothèse n'est valable que si l'on s'intéresse uniquement à la fraction d'électrons non diffusés. Pour une étude plus complète incluant les profils de diffusion, la distribution des électrons à l'intérieur du skirt, la taille du spot etc., la section efficace inélastique doit être prise en compte. Dans le cadre du présent travail, nous avons effectivement tenu compte des deux types de section efficace.

Danilatos a également étudié la diffusion des électrons sous pression de gaz [16,84]. Contrairement à Moncreiff et al. [9], Farley et Shah [87], et Gauvin [38], dont les travaux étaient basés sur des diffusions simples, Danilatos [84] a effectué des analyses théorique et expérimentale plus complètes, fondées sur la diffusion multiple.

Danilatos [84] a également utilisé l'équation de Lenz [89] pour calculer les sections efficaces de gaz monoatomiques, mais au lieu d'utiliser les modèles théoriques de Wentzel [90], il choisi d'utiliser des formules élaborées par Jost et Kessler [93] qui ont étudié la diffusion multiple des électrons.

Dans ce qui suit, nous allons expliciter plus en détail la présentation théorique des sections efficaces utilisées dans le cadre de cette thèse, qui sont largement inspirées des travaux de Danilatos, en séparant l'étude suivant la nature du gaz (atomique ou moléculaire).

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 [94, 95], 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 [94], nous avons décidé d'adopter les formules théoriques utilisées par Jost et Kesler [96, 97] pour $\frac{d\sigma}{d\Omega}$. Ces formules, basée sur les travaux de Lenz [89] sont les suivantes:

$$\frac{d\sigma_e}{d\Omega} = \frac{Az}{16 \left[\sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) + \sin^2\left(\frac{\theta_0}{2}\right) \right]^2} \quad (\text{Section efficace différentielle élastique}) \quad (\text{II. 1})$$

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

$$\text{avec } \theta_0 = \frac{\lambda}{2\pi R} \quad (\text{II. 3})$$

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

$$\text{et } A = \frac{\lambda^4 z \left(1 + \frac{E}{E_0}\right)^2}{4\pi^4 a_H^2} \quad (\text{II. 5})$$

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

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

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. 1) et (II. 2) :

▪ 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 [98] pour le potentiel:

$$U(r) = \frac{-e^2 Z}{4\pi\epsilon_0 r} \exp\left(-\frac{r}{R}\right) \quad (\text{II. 7})$$

Différentes expressions de R ont été proposées [99, 100], mais le modèle le plus adapté semble être celui proposé par Burge et Smith [91] qui s'écrit en fonction de l'amplitude de diffusion $f_e(0)$, du rayon de Bohr, et du numéro atomique Z :

$$R = \left[f_e(0) \frac{a_H}{2Z} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (\text{II. 8})$$

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 [101].

▪ Choix du potentiel d'ionisation

Une des possibilités est d'utiliser le potentiel de première ionisation. Reimer [77] propose cependant de prendre pour J , le potentiel moyen d'ionisation donné par la formule :

$$J = 9,76Z + 58,8Z^{-0.19} \quad (J \text{ en eV}) \quad (\text{II.9})$$

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 [103] :

$$J = 11,5 \cdot Z \quad (\text{II.10})$$

Dans ce travail nous faisons le choix d'utiliser les valeurs du potentiel moyen d'ionisation. Au chapitre IV (paragraphe III), nous verrons comment les résultats du calcul des sections

efficaces de diffusion, comparés aux résultats de la littérature nous conforte dans ce choix. Le tableau (II.1) regroupe les valeurs de $f_e(0)$ publiées par Vainshtein [101].

	Z	$f_e(0) \cdot 10^{10} m$
Ar	18	4,71
H	1	0,529
He	2	0,445
N	7	2,2
Ne	10	1,66
O	8	2,01

Table II.1. Valeurs du numéro atomique Z et de l'amplitude de diffusion $f_e(0)$ pour différents atomes

Il faut noter que l'expression (II. 2) pour la section différentielle inélastique est valable pour des angles inférieurs à 0.17 rad (10°), alors que l'équation (II. 1) donnant la section élastique est valable pour tous les angles. Ces deux sections sont tracées pour l'azote, sur la figure (II. 1), pour un choix de paramètres Z , E et indiqués sur la figure.

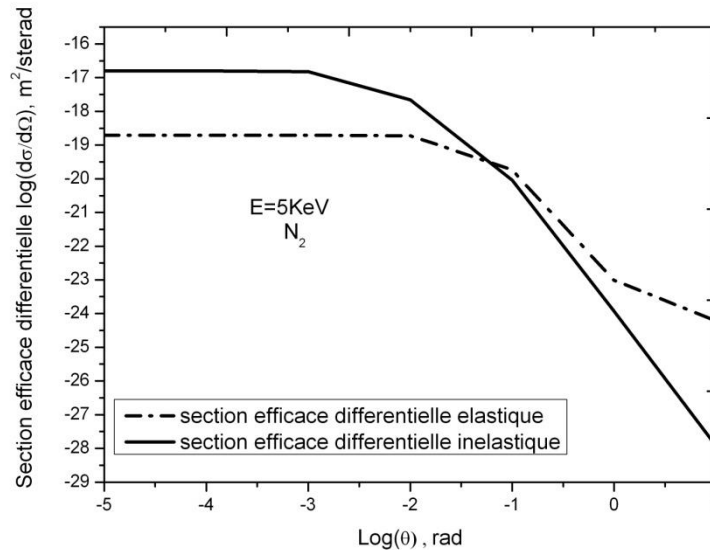


Figure II.1. Sections efficaces différentielles en fonction des angles de diffusion pour l'azote, et pour une énergie $E=5 \text{ keV}$

Les sections efficaces différentielles élastique et inélastique sont calculées à 5 kV pour le gaz N₂ la Figure II. 1. Nos résultats et les travaux précédents [84] montrent que les deux processus de diffusion se traduisent par des distributions angulaires différentes.

Les électrons élastiquement dispersés sont déviés selon des angles supérieurs à 10^{-2} rad. Pour les événements élastiques les angles les plus élevés déterminent la largeur et la grandeur de la région qui entoure le faisceau. Les électrons issus de collisions inélastiques sont dispersés dans de petits angles, aussi faible que 10^{-4} rad, et les événements inélastiques déterminent la forme du profil du faisceau tous près de l'axe.

Dans le graphe on voit que pour l'azote, les points d'inversions à partir desquelles la section efficace différentielle élastique est prédominante sur la section efficace différentielle inélastique est toujours inférieur à 0.17 rad pour l'énergie minimale ordinairement utilisée dans le VPSEM.

Il est particulièrement utile d'introduire la section efficace correspondant à la diffusion de l'électron avec des angles de diffusions supérieurs à θ :

$$\sigma(> \theta) = \int_0^\pi \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega \quad (\text{II. 11})$$

Cette équation est représentée sur la figure (II. 2) 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 [84].

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. 9)

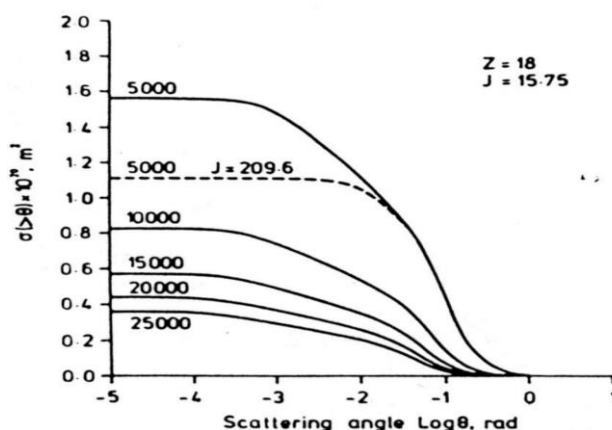


Figure II. 2. Variation de la section efficace de diffusion pour des angles supérieurs à θ en fonction de θ pour différentes énergies du faisceau pour l'argon. Le résultat obtenu en changeant seulement J est représenté par ligne en pointillés

Sur la figure (II. 3) on a présenté la variation de la section efficace totale en fonction du potentiel d'accélération pour différents gaz monoatomique (Ar, He) en fonction du potentiel d'accélération [84].

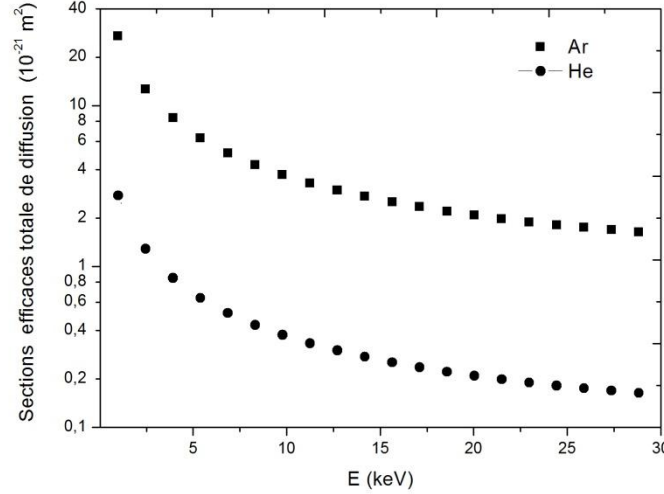


Figure II. 3. Sections efficaces totale de diffusion pour différents gaz mono-atomique en fonction de l'énergie du faisceau incident

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 que O₂, N₂ ou H₂O (vapeur d'eau). Nous reprenons dans ce qui suit, la démonstration faite par Danilatos [94], basée sur la théorie développée par Mott et Massey [103].

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 :

$$\frac{d\sigma_e}{d\Omega} = \sum_n \sum_j f_n(\theta) f_j(\theta) \frac{\sin(s \times r_{nj})}{s \times r_{nj}} \quad (\text{II. 12})$$

avec les conditions suivantes :

$$\frac{2\pi d_0}{\lambda} \gg 1 \quad (\text{II. 13})$$

$$\text{et } d_0 \gg r_m \quad (\text{II. 14})$$

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

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

$$\frac{d\sigma_e}{d\Omega} = |f_n(\theta)|^2 \quad (\text{pour le } n^{\text{ieme}} \text{ atome}) \quad (\text{II. 15})$$

On obtient, donc l'expression de $f(\theta)$ à partir de l'équation (II. 1)

Ces paramètres sont consignés dans le tableau (II. 2) pour les gaz usuels.

$r_{ij} \times 10^{10} (\text{m})$		$r_m \times 10^{10} (\text{m})$		$2\pi d_0/\lambda$	
		5keV	25keV	5keV	25keV
H₂	0.7461	0.039	0.018	27	61
N₂	1.0975	0.211	0.098	40	90
O₂	1.208	0.216	0.099	44	99
H₂O	$\begin{cases} 0.9584 \\ 0.9584 \\ 1.5151 \end{cases}$			35	78

TABLE II. 2. 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

Remarque :

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. 14) est satisfaisante tout le temps alors que la condition (II. 13) 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. 12) 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.

$$\frac{d\sigma_i}{d\Omega} = \sum_j \frac{d\sigma_{ij}}{d\Omega} \quad (\text{Somme sur les atomes d'indice } j). \quad (\text{II. 16})$$

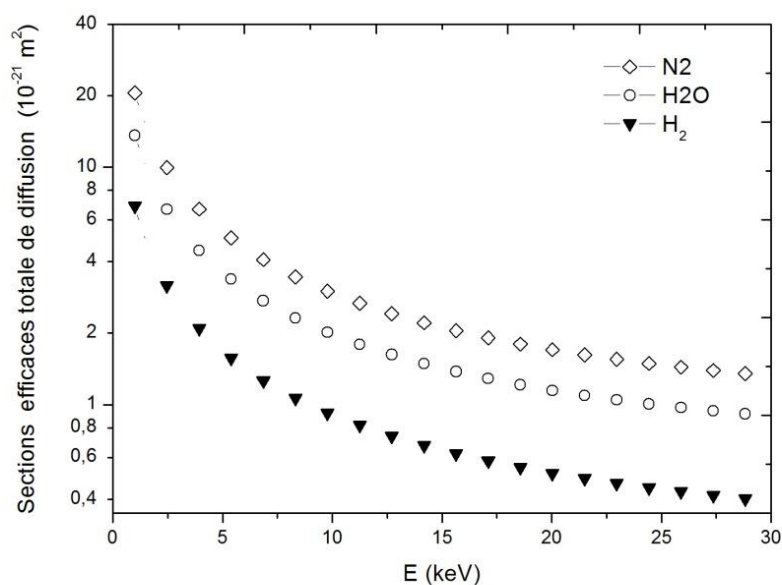


Figure II .4. La section efficace totale de diffusion de quelque gaz moléculaire en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons.

La figure II.4 montre trois sections efficaces de diffusion en fonction de l'énergie du faisceau primaire pour N₂, H₂O, H₂ obtenus en utilisant la théorie énoncée plus haut. Ils ont également été choisis parce qu'ils sont des gaz couramment employés dans VPSEM. Les courbes ont été générées par intégration numérique des équations (II.12) et (II.16), de θ_0 et θ_E respectivement radians à π . On peut voir que la section efficace de diffusion N₂ est la plus grande, suivis par H₂O, en dépit de la théorie classique montrant que H₂O a le plus grand diamètre suivie par N₂. Les diamètres de N₂ et H₂O sont de 3,75 Å° et de 4,60 Å°, respectivement [105]. Cela démontre que la probabilité de diffusion d'électrons par les gaz est inversement proportionnelle aux diamètres atomiques et moléculaires et révèle aussi les complexités à dériver des expressions mathématiques des sections efficaces de diffusion du fait que les énergies d'ionisation et les amplitudes de diffusion ne sont pas directement liées à la taille atomique ou moléculaire.

Avec ces plusieurs hypothèses indiquées ci-dessus, la théorie néglige les effets de l'ionisation, la dissociation, le transfert de charge et la recombinaison dans le gaz, ainsi que le champ électrique résultant entre les électrodes et l'accumulation de charge de l'échantillon.

I.3. Transfert du faisceau d'électron-équations 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). Cependant, pour un gaz qui peut se condenser tel que la vapeur d'eau, aucun gradient de température ne doit exister si on désire obtenir une densité stable et homogène du gaz.

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 (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.

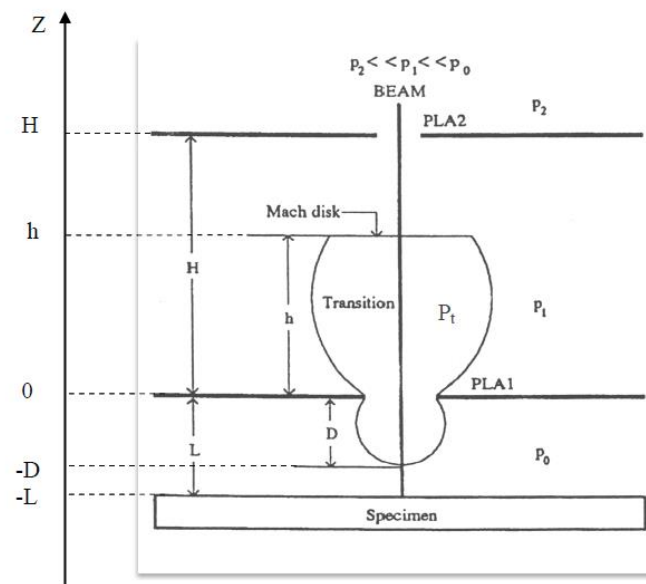


Figure II. 5. Les différentes zones de concentration de gaz entre l'échantillon et PLA2

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. 5. 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.

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 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 la distance de travail L est plus grande que le diamètre D de l'ouverture PLA1 on aura :

$$m = \frac{\sigma_T P_0 L}{kT} \quad \text{avec } L \gg D \quad (\text{II. 17})$$

Cette expression 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 limité 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.

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. 17), 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 $m_e > 25$ [84].

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 [84]

$$m < 0,355 \quad (\text{II. 18})$$

En résumé, notons que les applications liées au fonctionnement du VPSEM sont concernées par les deux régimes oligo-scattering et single scattering.

I.4. Profil du faisceau électronique

1.4.1. 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 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 :

$$m = \sigma_T nL \quad (\text{II. 19})$$

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 [106]:

$$\lambda_e = \frac{1}{\sigma_T n} = \frac{L}{m} = \frac{1.38.10^{-23} T}{\sigma_T P} \quad (\text{II. 20})$$

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 [106] 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 $2\pi r dr$ dans le plan situé à la distance L de PLA1 (fig. II. 6).

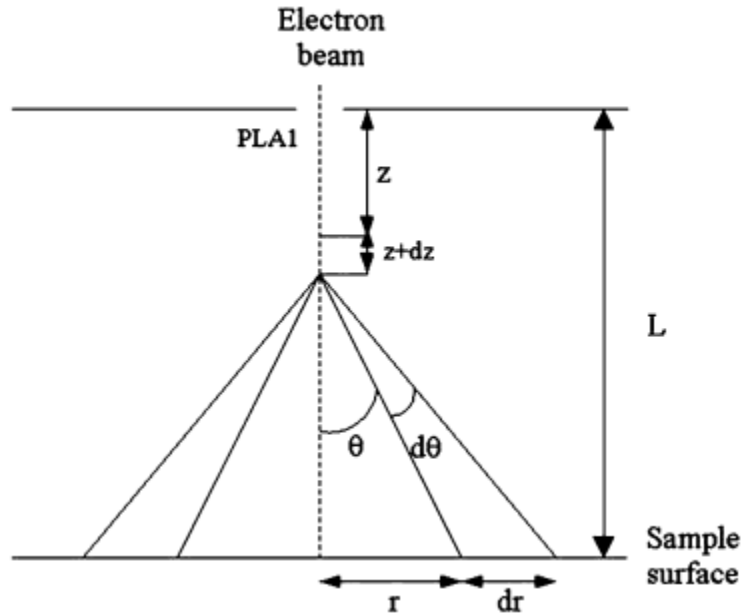


Figure II. 6 : Un électron se déplaçant le long de l'axe de PLA1 subit une collision entre z et $z+dz$ avec un angle entre θ et $d\theta$ et rencontre un plan situé à une distance L de PLA1 dans un anneau d'épaisseur dr

Deux cas sont à envisager :

1/ L'électron ne subit pas plus d'une collision : Dans ce cas, le calcul donne [12] :

$$V_1(r) = n \exp(-\sigma_T n L) \int_{\theta_r}^{\frac{\pi}{2}} \exp\left(\frac{r}{\tan \theta}\right) \frac{d\sigma}{d\Omega} \frac{\cos \theta}{r} d\theta \quad (\text{II. 21})$$

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 ci-dessus 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; 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. 21).

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) [93] qui se sont basés sur la théorie de la distribution angulaire des électrons diffusés dans un milieu [107]. Avec un nombre moyen de collision m quelconque, cette probabilité de distribution est :

$$V(r) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\infty} J_0(rt) \times \{ \exp[-m(1-h(t))] - \exp(-m) \} t dt \quad (\text{II. 22})$$

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. 22) 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 sont souvent défaut.
2. La seconde difficulté est la résolution de l'intégrale triple de l'équation (II. 22) 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 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.

I.4.2. Elargissement du faisceau d'électron (skirting):

Le profil d'un faisceau infiniment fin (Le diamètre de la sonde est négligé) peut être utilement décrit en introduisant le rayon réduit ρ défini par [105]:

$$\rho = \frac{2\pi Rr}{\lambda \cdot L} = \frac{\theta}{\theta_0} = \frac{r}{\theta_0 L} = \frac{r}{r_0} \quad (\text{II. 23})$$

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 [107] 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 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 $r_{1/2}$ (ou $\rho_{1/2}$ pour le rayon réduit) 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. 7).

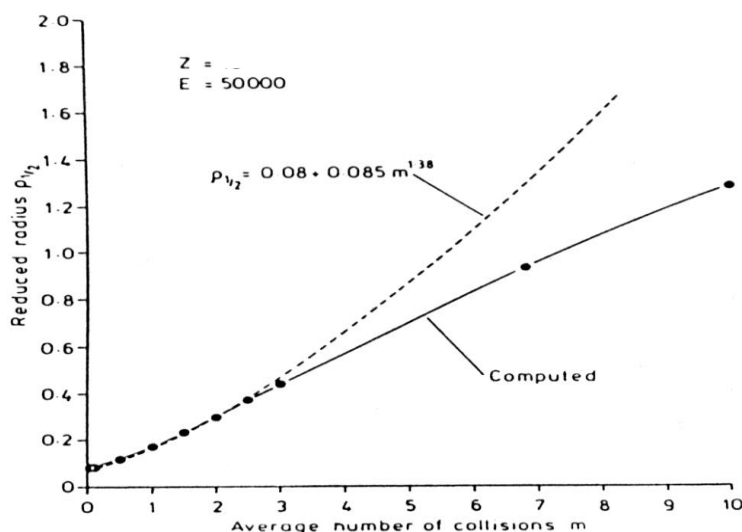


Figure II. 7. Variation du rayon du skirt pour différents nombres moyens de diffusion

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. 7).

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

$$\rho_{1/2} = 0.08 + 0.0848m^{1.38} \quad (\text{II. 24})$$

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 [108] donnent la relation :

$$r_{1/2} \approx L^2 \quad (\text{II. 25})$$

qui ne paraît pas correspondre à l'équation (II. 32). Cependant, si on utilise l'équation (II. 26) et en écrivant :

$$m = 7.243 \times 10^{22} \frac{\sigma_T}{T} PL \quad (\text{II. 27})$$

On obtient l'équation finale de $r_{0.5}$:

$$r_{1/2} = 0.0039L + 0.00155L(P.L)^{1.38} \quad (\text{II. 28})$$

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

Une relation semblable à celle (II.28) ont été obtenues pour Ar pour une tension d'accélération de 10 keV et à la température 293K [84]:

$$r_{1/2} = 0.0096.L + 0.0196L(P.L)^{1.78} \quad (\text{II. 29})$$

Smith et Schumacher [109] ont donné une formule pour calculer le skirt qui est la suivante :

$$r_{1/2} = \frac{793.19.Z}{\beta^2 (E + E_0)} \left[\frac{Z(Z+1)P}{T} \ln \frac{192\beta}{Z^{1/3}} \right]^{1/2} L^{3/2} \quad (\text{II. 30})$$

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

Concernant l'élargissement du faisceau d'électron après passage dans un gaz moléculaire, Danilatos [84] et le demi-rayon $r_{0.5}$ pour N_2 :

$$r_{0.5} = \frac{0.00354.L + 0.001239.P_0.L}{(E + 9.778 \times 10^{-7}.E^2)^{1/2}} \quad (\text{II. 31})$$

où E est en keV, avec la condition $P.L < 2$.

En général, et pour la majorité des gaz, le rayon de skirt $r_{0.5}$ peut être décrit analytiquement par l'expression suivante [84]:

$$r_{0.5} = (364Z / E)(P/T)^{1/2} L^{3/2} \quad (\text{II. 32})$$

$r_{0.5}$: rayon du skirt, (m)

Z : nombre atomique du gaz

E : énergie du faisceau, (eV)

P : pression, (Pa)

T: temperature, (K)

L: Distance parcourue par les électrons dans le gaz, (m)

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%. De plus ; une relation du type II.32 est difficilement exploitable quand il s'agit d'un mélange de gaz. Par conséquent, nous pensons que la meilleure estimation de l'étendue du skirt est représentée par le calcul de $r_{0.9}$ par un programme de simulation du type Monte Carlo, comme nous le verrons plus loin.

I.5. Monte-Carlo dans le gaz

Dans cette partie, une courte description est fournie du procédé de calcul de Monte Carlo utilisé pour simuler le comportement de l'électron dans la chambre d'analyse sous pression de gaz.

Parmi les méthodes statistiques, celles dites de Monte Carlo se basent sur une modélisation microscopique aboutissant à une simulation en trois dimensions : on ne parle plus de fonction de distribution mais de probabilité d'occurrence de chaque interaction (appelée aussi "événement"). Les trajectoires des particules sont simulées individuellement à partir d'une série de nombres aléatoires et de sections efficaces chargés de reproduire le phénomène physique. La solution est tirée de la moyenne statistique des grandeurs obtenues à partir de la simulation d'un grand nombre de particules primaires (appelées aussi "histoires").

Pour simuler les histoires des particules, il est nécessaire de posséder un modèle de diffusion constitué principalement d'un ensemble de sections efficaces différentielles qui déterminent les distributions de probabilité des variables aléatoires représentant une trajectoire :

- le libre parcours moyen entre deux événements,
- le type d'interaction,
- l'énergie perdue et la déflexion angulaire subie au cours de l'interaction.

Une fois que ces distributions de probabilité sont connues, les histoires peuvent être générées en utilisant des méthodes d'échantillonnage adaptées. Après la simulation d'un grand nombre d'histoires, l'information voulue est tirée de la moyenne statistique des grandeurs obtenues, affectées d'incertitudes statistiques.

I.5. 1 Description des collisions

Dans le microscope électronique à balayage à haute pression, 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 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 [110]:

$$p = 1 - \exp\left[-L_p \sum (n \sigma_t(E))\right] \quad (\text{II.33})$$

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. 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 [84] :

$$L_p = \frac{114.5 \left(\frac{T}{M}\right)^{\frac{1}{2}} \eta}{P} \quad (\text{II.34})$$

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

Dans le cas d'un mélange de gaz, et pour déterminer la nature de la molécule ou atome impliqué dans la collision, un choix peut être fait. Si f_1 et f_2 sont respectivement les deux fractions des deux gaz dans le mélange ($f_1 + f_2 = 1$) alors la probabilité du premier constituant d'être le centre de collision est :

$$p_1 = \frac{f_1 \sigma_{t1}(E)}{f_1 \sigma_{t1}(E) + f_2 \sigma_{t2}(E)}, \quad (\text{II.35})$$

où σ_{t1} et σ_{t2} sont respectivement les section efficaces totales des deux gaz. Un nombre aléatoire uniforme R entre [0,1] est généré. Si R est supérieur à p_1 alors il y a collision avec le deuxième constituant, si non se sera avec le premier.

La section efficace totale est divisée en deux composantes : section efficace élastique (σ_e) et inélastique (σ_i) telles que :

$$\sigma_t(E) = \sigma_i(E) + \sigma_e(E)$$

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

$$p_e = \frac{\sigma_e}{\sigma_t}, \quad p_i = \frac{\sigma_i}{\sigma_t}$$

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

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 qui tombe soit dans la partie élastique ou inélastique.

I.5. 2 Parcours électronique entre deux chocs

La distance entre deux chocs successifs est appelée "pas" (step) et varie aléatoirement et est donné par :

$$\text{Step} = -\lambda_e \cdot \text{Ln}(R_{n1}) \quad (\text{II. 36})$$

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

I.5. 3 Angles de diffusions

L'angle de déviation est donné par :

$$\sin^2 \frac{\theta}{2} = \frac{a \cdot R_{n2}}{1 + a - R_{n2}} \quad (\text{II. 37})$$

R_{n2} une variable aléatoire répartie d'une façon uniforme sur l'intervalle,] 0, 1]. Cette dernière équation peut être aussi donnée par la forme différentielle de la section efficace de Rutherford où, $F = 0.003Z^{0.67}/E$, est un facteur de diffusion.

Pour les angles de diffusion **inélastique** nous avons utilisé la relation d'Egerton 1996 [111]:

$$\theta_i = \Delta E / E \quad \text{II.38}$$

où ΔE est la perte d'énergie due aux collisions ionisantes et E, l'énergie de l'électron.

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

$$\varphi = 2\pi.R_{n3}. \quad (\text{II. 39})$$

I.5. 4 Pouvoir d'arrêt

La perte d'énergie est décrite par une expression introduite par Bethe [135] et modifiée par Joy et Luo [112] :

$$\frac{dE}{dS} = -78.500 \frac{\rho Z}{A_w E} \log\left(\frac{1.166E}{J} + 1\right) \text{keV/cm} \quad (\text{II. 40})$$

où E est l'énergie de l'électron (keV), Z et A sont, respectivement, le nombre atomique et la masse atomique de la cible (ici c'est le gaz), ρ est la densité du gaz, et S c'est la distance mesurée le long de la trajectoire de l'électron. J , est le potentiel moyen d'ionisation en keV. Finalement l'énergie perdue sera calculée par la relation suivante :

$$\Delta E = \text{step}(dE / dS) \quad (\text{II.41})$$

Donc après une collision inélastique, l'électron perd cette quantité d'énergie et l'étape suivante dépendra de la quantité de cette perte.

I.5. 5 Trajectoire de l'électron

Une fois que l'électron entre en interaction avec la cible, il change de direction et s'enfonce dans le volume du gaz tout en cédant une partie de son énergie. Les coordonnées de l'électron sont calculées par suivant les relations [113] :

$$\begin{cases} x_n = x_{n-1} + s_n \cdot C_n^x \\ y_n = y_{n-1} + s_n \cdot C_n^y \\ z_n = z_{n-1} + s_n \cdot C_n^z \end{cases} \quad (\text{II. 42})$$

Les facteurs C_n^x , C_n^y et C_n^z représentent les cosinus directeurs de l'électron.

II. Interaction électron-solide dans le VPSEM

II.1 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, 1949) et de Bethe (1933, 1949) s'intéressaient au domaine des hautes énergies [114].

Ces essais se basent sur la théorie de perte d'énergie de Bethe (1940) et la théorie des collisions élastiques 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 [114].

II. 2.1 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 [115] (Figure. II.8). 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.

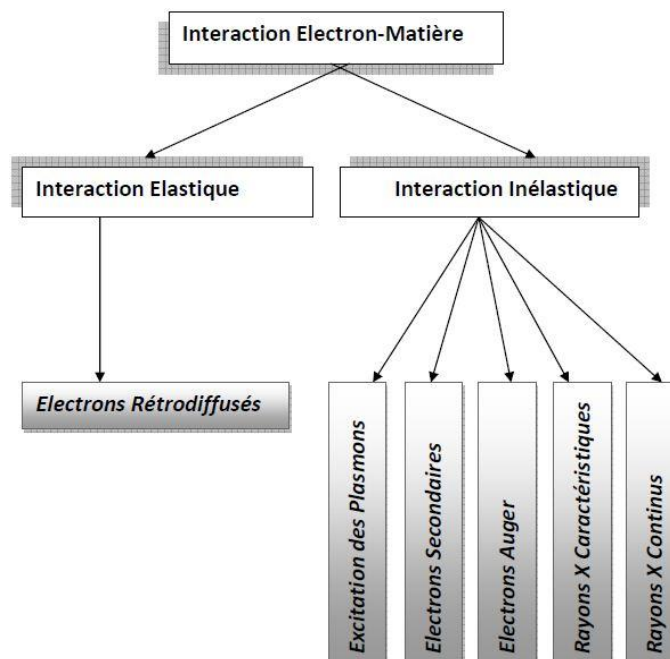


Figure II.8. Organigramme des différentes interactions possibles et des signaux émis lors de la pénétration d'un électron primaire dans la matière.

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.

II. 2.2 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 II.9). 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).

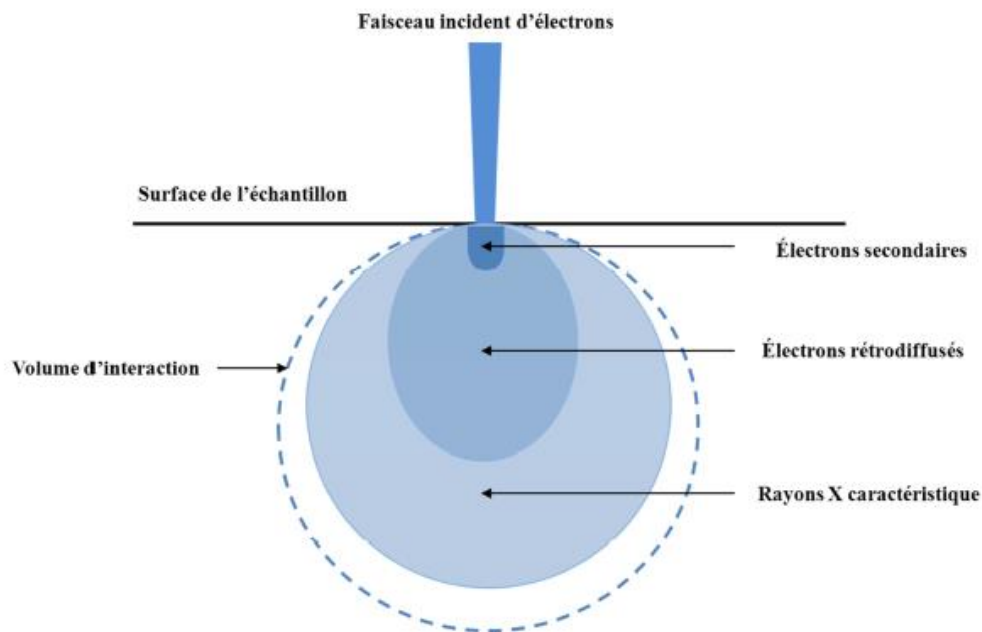


Figure II.9. Poire d'interaction électrons primaires / échantillon

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 [116]. Pour un faisceau d'électrons primaires d'énergie au-dessus de ~ 5 keV, on a l'expression approchée de Bethe (1930) pour dE/ds (keV / cm):

$$\frac{dE}{ds} = -78.500 \frac{\rho Z}{A_w E} \log\left(\frac{1.166E}{J}\right) \text{ keV/cm} \quad (\text{II.43})$$

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) [117] :

$J(\text{eV}) = 9.76Z + 58.8Z^{-0.19}$, pour les éléments dont Z 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 :

$$\frac{dE}{dS} = -78.500 \frac{\rho Z}{A_w E} \log \left(\frac{1.166E}{J} + 1 \right) \text{ keV/cm} \quad (\text{II.44})$$

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 :

$$R_B = \int_0^{E_0} \left[\frac{-1}{\frac{dE}{ds}} \right] dE \text{ (cm)} \quad (\text{II.45})$$

II.3. Modélisation des trajectoires électroniques dans les matériaux par la méthode Monte-Carlo

Cette partie traite la simulation Monte Carlo de l'interaction électron-solide via la diffusion plurielle (multiple scattering) [118]. Ce model a été utilisé dans plusieurs applications, mais dans notre cas, il est exploité essentiellement dans l'étude du comportement des électrons rétrodiffusés (BSE). La simulation prend en considération l'énergie du faisceau d'électron incident, le nombre atomique du solide, sa masse atomique et sa densité. Dans ce modèle, le chemin d'un électron par le biais de son énergie ou jusqu'à ce qu'il ait perdu toute son énergie ou qu'il ait laissé la matière comme un électron rétrodiffusé.

II.3.1. Principe de model de diffusion pluriel

A l'inverse de la diffusion singulière utilisé pour les gaz (élastique et inélastique), le model de diffusion pluriel est différent dans sa conception, en se basant particulièrement sur la diffusion élastique de Rutherford. Ici, la longueur de la trajectoire dans l'échantillon (matériau) est équivalente au range de Bethe [118] (Voir équation II.45). Dans cette étude R_B (Bethe range) est divisée en cinquante étapes. Le pouvoir d'arrêt est utilisé pour déterminer l'énergie de l'électron à chaque étape de la simulation:

$$E(n) = E(n-1) - \int \left(\frac{dE}{ds} \right) ds \quad (\text{II.46})$$

$E[n]$ est l'énergie de l'étape n .

L'angle de diffusion azimutal est donné par la même équation (II.39) qui est $\varphi = 2\pi R_n$.

Pour le calcul de l'angle de diffusion θ à chaque événement, nous utilisons la formule de diffusion suggérée par Love et al. (1977) :

$$\tan\left(\frac{\theta}{2}\right) = \tan\left(\frac{\theta_0}{2}\right) \left(\frac{E_0}{E}\right) \left[\frac{1}{\sqrt{Rn}} - 1\right], \quad \tan\left(\frac{\theta_0}{2}\right) = \frac{0.0144Z}{2pE_0} \quad (\text{II.47})$$

θ_0 représente l'angle de diffusion minimal correspondant à l'énergie E_0 et E est l'énergie instantanée de l'électron (en keV). R_n est un nombre aléatoire distribué dans l'intervalle $[0, 1]$ et P est un paramètre d'impact.

Dans chacune des 50 étapes constituant une trajectoire, un grand nombre d'événements de diffusion se produit.

II.3.2. Calcul de coefficient des électrons rétrodiffusés

Le but de notre travail est de mettre en œuvre un algorithme qui prédit de façon précise et efficace les distributions des électrons rétrodiffusés, leurs énergies et leurs taux de rétrodiffusion (η). Ce dernier peut être calculé par la formule de Hunger et Kuchler (1979) [119] en fonction de numéro atomique (Z) et l'énergie du faisceau incident.

$$\eta(Z, E) = E^m C \quad (\text{II.48})$$

où, $m = 0.1382 - 0.9211/\sqrt{Z}$ et $C = 0.1904 - 0.2235 (\ln Z) + 0.1292 (\ln Z)^2 - 0.01491 (\ln Z)^3$

III. Application de la simulation Monte Carlo

Nous présentons dans le paragraphe suivant une application directe de notre programme pour tracer les trajectoires électroniques dans le HPSEM. A énergie constante de 5keV, on a fait varier la pression du gaz, la distance de travail et la nature de l'élément chimique (hélium et air), afin de voir l'effet de ces paramètres sur le comportement du faisceau électronique lors de son passage dans la chambre d'analyse.

m : le nombre de collisions par électron.

R : pourcentage des électrons rétrodiffusés dans le gaz

Remarquons tout d'abord que le faisceau obtenu se compose d'une partie centrale comportant le plus grand nombre d'électrons et correspondant à des trajectoires issues de collisions à faibles angles de déviation (diffusion inélastique), et d'une partie extérieur plus large, constituant le skirt (diffusion élastique).

On voit bien dans tous les cas, l'effet de la présence du gaz qui se traduit par un élargissement du faisceau (skirting). Nous vérifions qu'en augmentant la distance de travail (figure (II.10) et (II.11)), l'élargissement du faisceau augmente, cette augmentation est due à l'augmentation du nombre de collisions.

Le pourcentage d'électrons rétrodiffusés augmente pour l'air. Pour l'hélium l'augmentation de la distance de travail donne un élargissement plus faible que l'élargissement pour l'azote (figures (II.11)).

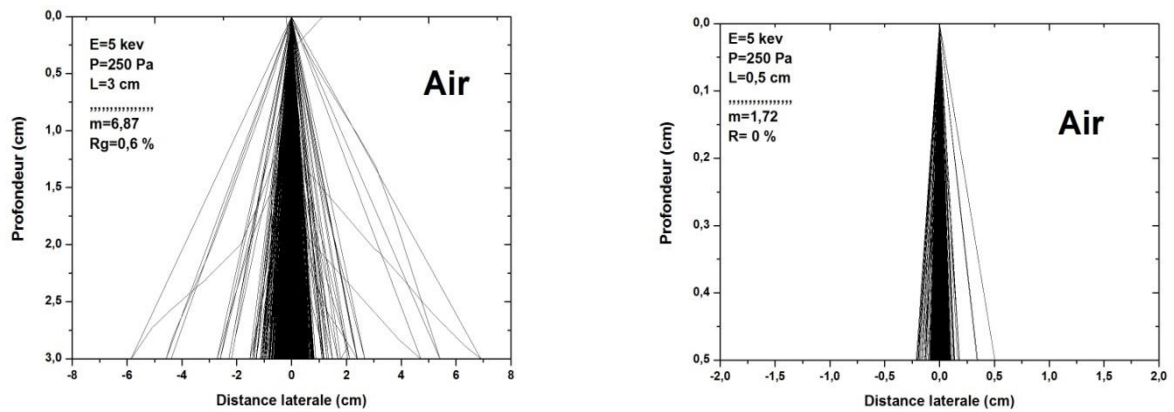


Figure. II.10. Trajectoires électroniques dans l'air à 5keV, 250Pa
et deux distance de travail 3cm (gauche) et 0.5 cm (à droite)

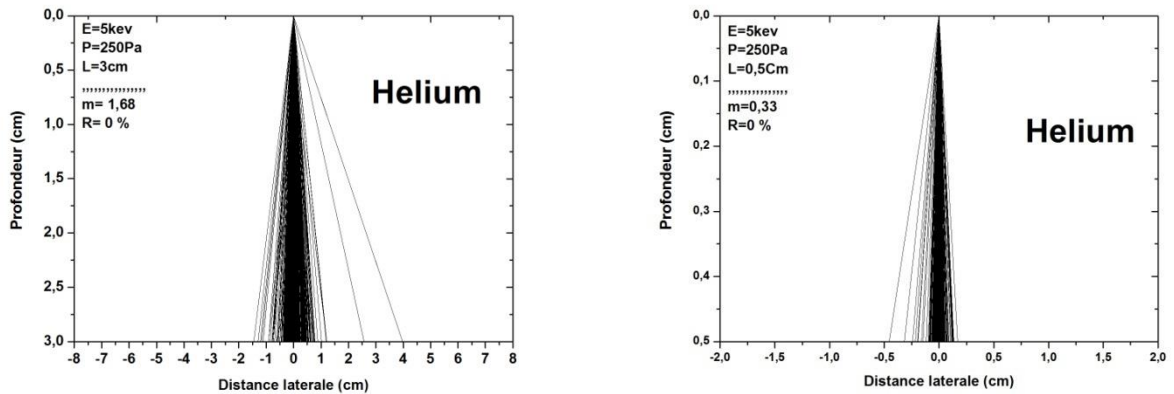


Figure. II.11. Trajectoires électroniques dans l'hélium à 5keV, 250Pa
et deux distance de travail 3cm (gauche) et 0.5 cm (à droite)

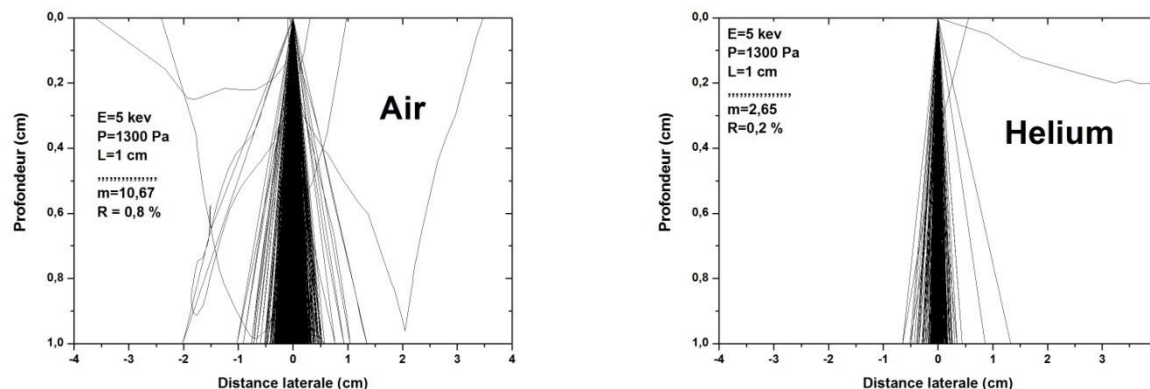


Figure. II.12. Trajectoires électroniques dans l'hélium et l'air à 5keV, $L=1\text{cm}$ et 1300Pa

Pour l'air on voit bien que l'augmentation de la pression du gaz entraîne une augmentation de l'élargissement du faisceau électronique, les électrons rétrodiffusés, ainsi que le nombre moyen de collision par électron (figures II.12). Cet effet de la pression est moins visible dans l'Hélium, ceci est dû à la section efficace de l'Hélium qui est plus petite que celle de l'air.

Maintenant, pour ce qui est de la simulation Monte Carlo de l'interaction électron-matière dans le vide, on présente dans la figure II.13, une comparaison dans le vide, entre la poire d'interaction dans carbone et le SiO_2 à 5 keV. Les dimensions du volume d'interaction diminuent pour le nombre atomique le plus élevé. Le taux de perte d'énergie du faisceau d'électrons augmente avec le nombre atomique et ainsi les électrons ne pénètrent pas assez profondément dans l'échantillon.

Les trajectoires électroniques à l'interface Al/Cu, décrit bien ce comportement vis-à-vis la différence des numéros atomiques (figure II.14).

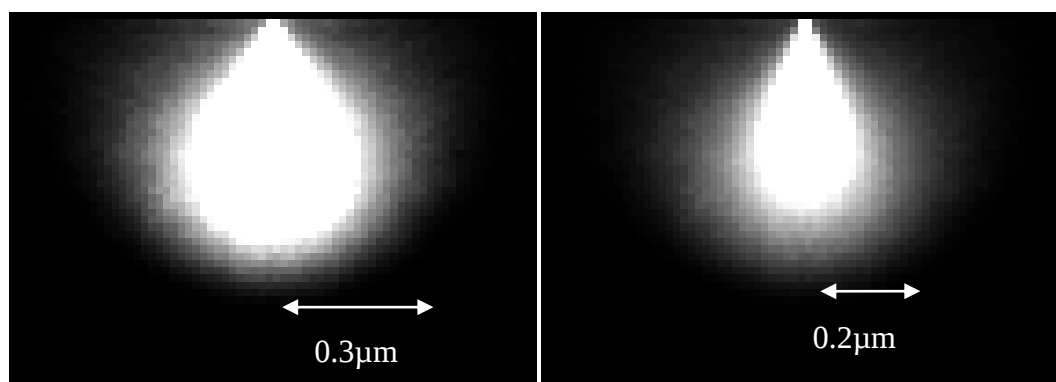


Figure. II.13. Poire d'interaction dans le carbone (Gauche) et le SiO_2 (à droite)
à 5keV, sous vide

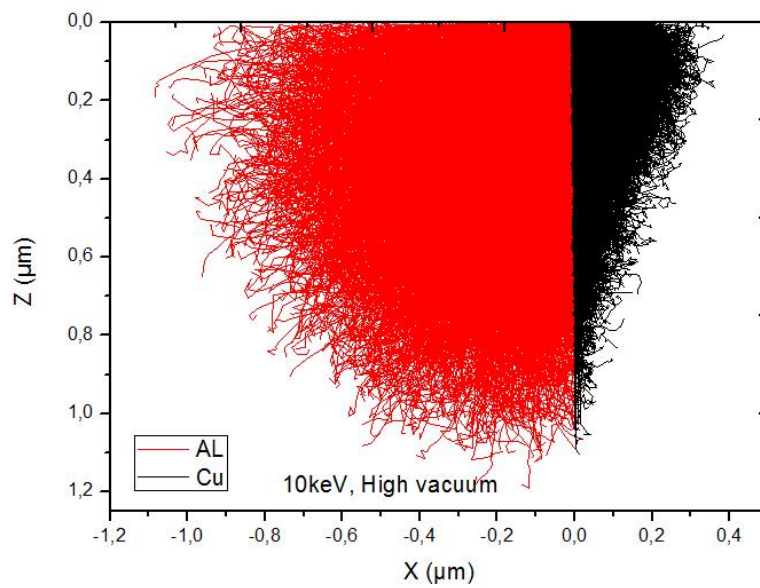


Figure. II.14. *Poire d'interaction dans l'interface Al/Cu à 10keV, sous vide*

Dans le cas de la présence d'un environnement gazeux dans le VP-SEM, la simulation Monte Carlo (Figure II.15), montre que le profil du faisceau d'électrons primaires peut être divisé en deux fractions:

1. Un faisceau non-diffusé, qui conserve le même profil de distribution et a priori le même diamètre d'origine.
2. Un faisceau diffusé distribué autour du faisceau d'électrons primaire pour former ce qui est connu sous le nom de "skirt".

Il semble qu'après la diffusion multiple, des électrons primaires par le gaz, le rayon de skirt du faisceau d'électrons peut être plus grand que le volume d'interaction. Dans cette situation, la taille du volume dans le matériau créé à la fois par le faisceau diffusé et la fraction non diffusé sera modifiée. Ce nouveau volume d'interaction a une forme plus plate, surtout quand le rayon de skirt dépasse largement le volume d'interaction créé par la fraction non diffusé.

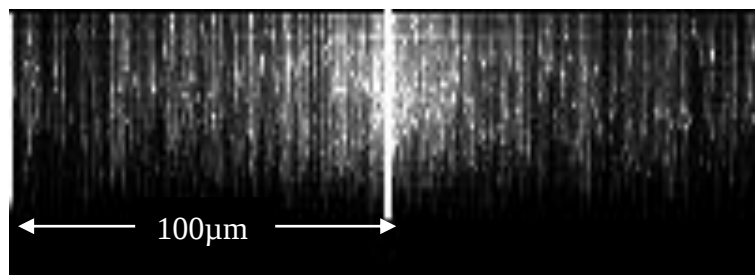


Figure. II.15. *Poire d'interaction sous l'effet du skirt*

III. CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons d'abord présenté une synthèse bibliographique des travaux ayant trait au calcul des sections efficaces de diffusion, paramètre essentiel et central dans la théorie de l'interaction électron-gaz et électron solide. Cette synthèse nous a ensuite conduit à présenter les remarquables travaux de Danilatos que nous estimons les plus complets dans ce domaine et desquels nous nous sommes largement inspiré pour construire notre algorithme de calcul Monte Carlo afin de traquer les électrons rétrodiffusés (BSE). Dans le chapitre suivant, nous nous intéressons essentiellement sur ce type de signal (BSE), et qui sera étudié en détail. Nous verrons comment les paramètres d'observation du microscope et les propriétés du matériau peuvent influencer sur le signal des électrons rétrodiffusés.

Chapitre III

LES ELECTRONS RETRODIFFUSES

Chapitre III

LES ELECTRONS RETRODIFFUSES

I. INTRODUCTION

Les signaux principaux d'électrons rétrodiffusés utilisés pour former des images en microscopie électronique à balayage, sont générés dans le volume d'interaction. Ces signaux sont capables de transporter des informations sur la composition, la forme (topographie) de l'échantillon et la texture locale de la surface fine. Les informations présentées dans ce chapitre comprennent également les concepts théoriques de rétrodiffusion et constituent une base de données critique pour effectuer l'interprétation des images MEB.

II. ASPECTS PHENOMENOLOGIQUES

II.1. Coefficient de rétrodiffusion

Une fraction des électrons primaires est diffusée en dehors de la surface de l'échantillon après avoir ou non subi un certain nombre d'interactions inélastiques (pertes d'énergie). Ces électrons sont appelés les électrons rétrodiffusés, leur distribution spectrale à la sortie de la cible s'étend de 50 eV à l'énergie des électrons primaires. Le rapport du nombre d'électrons rétrodiffusés émis par unité de temps, I_η , et du courant primaire I_p définit le coefficient de rétrodiffusion, η :

$$\eta = I_\eta / I_p \quad \text{(III. 1)}$$

Le MEB n'est pas conçu pour mesurer précisément le coefficient η en raison des différences dans l'efficacité de la collecte des systèmes de détection utilisés. Une connaissance des valeurs exactes de η ne signifie pas que les signaux observés sont proportionnels à ces quantités. Néanmoins, ces valeurs sont importantes vis à vis l'amplitude du signal et sa dépendance à l'égard des différents paramètres du MEB du point de vue quantitative.

II.1.1 Variation du coefficient de rétrodiffusion η avec le numéro atomique Z pour divers matériaux

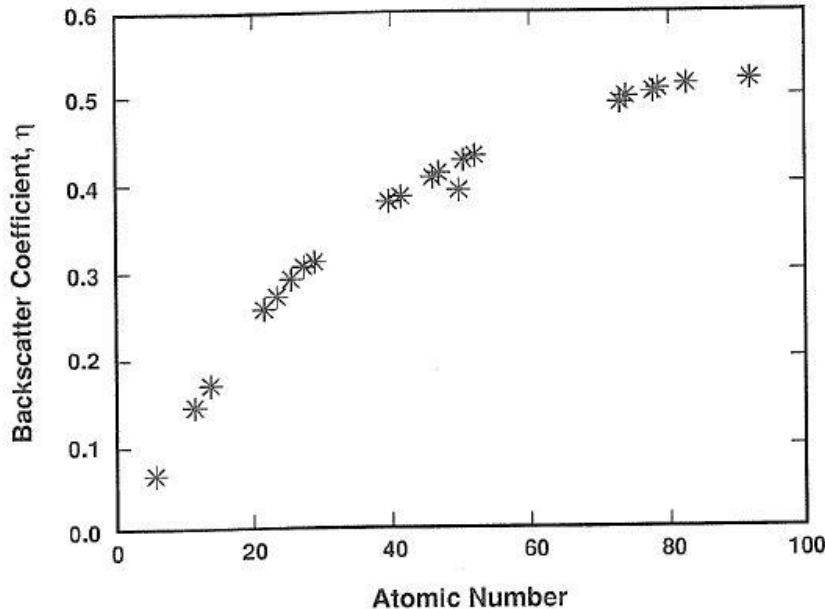


Figure III.1. Variation du coefficient d'électrons rétrodiffusé η_r en fonction du nombre atomique à $E_0 = 20$ keV. (Données de Heinrich, 1966[120]).

Des points importants concernant la variation du coefficient d'électrons rétrodiffusé η en fonction du nombre atomique doivent être notés. La figure III.1 montre en générale une augmentation monotone du coefficient des électrons rétrodiffusés avec le numéro atomique. Chaque fois qu'une relation intime se trouve entre les propriétés du spécimen (composition) et le signal mesurable dans le MEB, tel que le BSE, l'augmentation monotone de η par rapport à Z constitue la base du contraste du nombre atomique (appelé contraste de composition ou contraste de Z).

La pente de η par rapport à Z est initialement raide, mais diminue avec l'augmentation de Z , devenant très peu profonde au-dessus de $Z = 50$. L'effet pratique de ce comportement est que le contraste atomique entre les paires d'éléments adjacentes est très prononcé au faible nombre atomique et faible pour les Z élevés ce qui fait que les électrons rétrodiffusés sont sensibles au changement de composition chimique.

II.1.2 Variation du coefficient de rétrodiffusion η avec l'énergie incidente

Comme déjà souligné au chapitre 2 partie II.2.b, la taille du volume d'interaction dépend fortement de l'énergie du faisceau d'électrons. Nous pourrions raisonnablement s'attendre à ce que le coefficient de rétrodiffusion dépendrait fortement de l'énergie du faisceau. Cependant, les mesures expérimentales révèlent que ce n'est pas le cas.

Comme le montre la figure III.2, il n'y a qu'un petit changement, généralement inférieur à 10%, dans le coefficient de rétrodiffusion en fonction de l'énergie dans la gamme 5-50 keV. Couvrant la gamme conventionnelle du MEB. Quand les données sont examinées pour des éléments spécifiques, la légère dépendance de l'énergie au coefficient de rétrodiffusion s'avère se comporter de manière complexe, en augmentant, diminuant ou restant presque constante, selon l'élément à étudier [120]. Cette insensibilité inattendue à l'énergie du faisceau peut être comprise à partir des arguments qualitatifs suivants. Bien que le range augmente approximativement comme la puissance de 1,67 de l'énergie du faisceau, l'expression de la perte d'énergie de Bethe montre que le taux de perte d'énergie diminue avec l'accroissement de l'énergie. La comparaison d'un électron d'énergie incidente de 10 keV se trouvant à la limite de l'enveloppe du volume d'interaction avec un autre électron à la même profondeur mais d'énergie incidente de 20 keV, montre que le premier perd presque toute son énergie et sera capturé par le matériau à l'inverse du deuxième qui a encore au moins 10 keV d'énergie incidente. L'électron a donc la possibilité de continuer sa circulation dans le matériau et peut éventuellement atteindre la surface et s'échapper sous forme d'électrons rétrodiffusés. Le coefficient rétrodiffusion est donc relativement insensible à l'énergie du faisceau.

Aux énergies du faisceau inférieures à 5 keV, le comportement du coefficient de rétrodiffusion est plus compliqué. Apparemment, si l'énergie du faisceau est réduite à 1 keV le coefficient des électrons rétrodiffusés des éléments légers augmente, alors que celui des éléments lourds diminue.

Pratiquement dans les MEBs conventionnels, il y a une difficulté considérable à faire des mesures expérimentaux du coefficient de rétrodiffusion à faibles énergies. L'accumulation de contamination pendant la mesure sous vide, peut effectivement modifier le coefficient de rétrodiffusion. Une contamination peut résulter à la surface de l'échantillon par les gaz résiduels du système de pompage. Si une couche de quelques nanomètres de carbone s'accumule sur la surface, lors d'une mesure à faible énergie, alors elle aura une grande influence sur le coefficient de rétrodiffusion. De tels effets de contamination peuvent

effectivement dominer les images surtout à faible énergie du faisceau dans les instruments à systèmes de vide conventionnels lorsqu'aucun nettoyage spécial de surface n'est utilisé. La présence de carbone réduira le coefficient de rétrodiffusion. Si une telle couche de contamination s'étend sur des régions de différents numéros atomiques on s'attend à ce qu'il se produise un contraste de Z dans les images MEB. Le carbone donc peut réduire ou même éliminer le contraste.

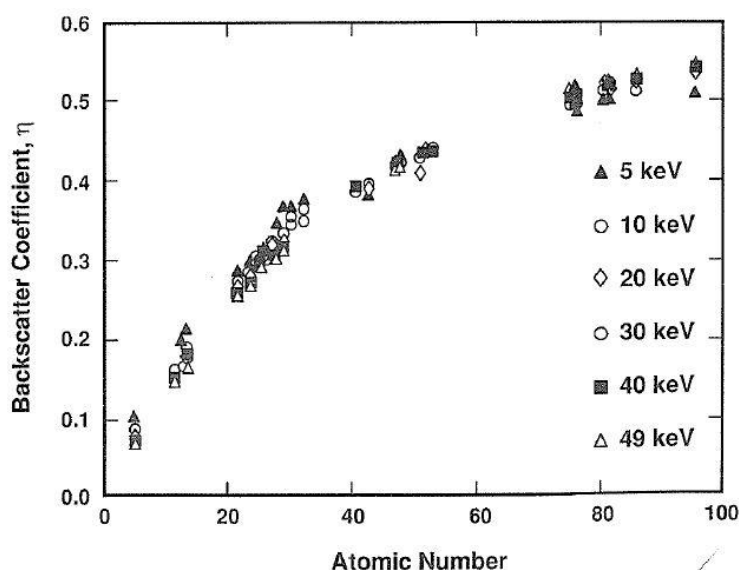


Figure III.2. Coefficient des électrons rétrodiffusés en fonction du nombre atomique tracé pour une gamme d'énergies de faisceau de 5 à 49 keV. [121,122].

II.1.3 Variation du coefficient de rétrodiffusion avec la densité

La question suivante: "Comment le coefficient de rétrodiffusion d'un échantillon varie avec la densité?" Cette question est particulièrement intéressante en raison des tentatives d'utilisation du signal rétrodiffusé comme moyen d'effectuer une analyse de composition chimique.

La simulation Monte Carlo [123]. pour le cuivre Cu à 15 keV, en laissant tous les paramètres physiques inchangés, à l'exception de la densité, produit les données de la figure III.3, où on peut voir que la variation de la densité ne change pas le coefficient de rétrodiffusion pour un matériau homogène ainsi que l'énergie moyenne des électrons rétrodiffusés, bien que non tracée, reste indépendante de la densité.

Par conséquent, la variation de la densité entraîne juste le changement du Bethe range, ce qui ne devrait pas avoir d'effet sur η . En outre, une plus grande profondeur de pénétration et un

volume d'interaction accrue entraîneront une faible résolution spatiale en raison de la propagation latérale des électrons primaires et émis.

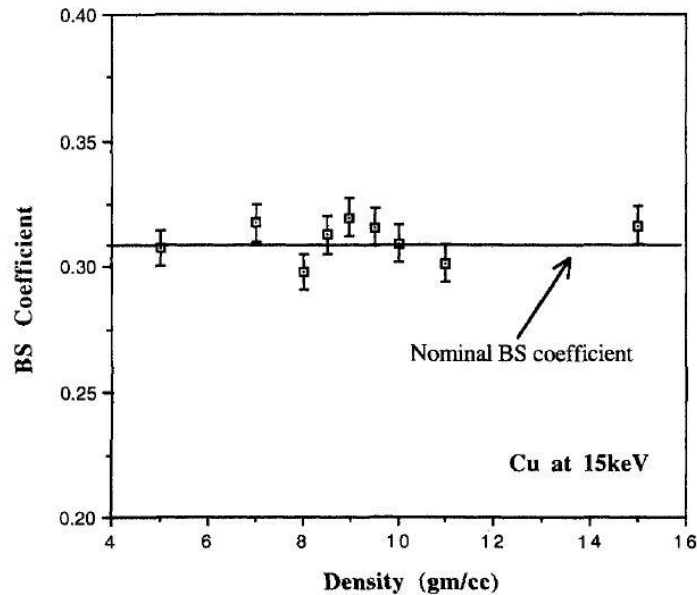


Figure III.3. Variation de coefficient des électrons rétrodiffusés avec la densité d'échantillon [123].

II.1.4. Variation avec l'angle d'incidence du faisceau primaire

Nous nous intéressons ici au coefficient de rétrodiffusion d'un faisceau d'électrons pénétrant dans le matériau sous une incidence oblique par rapport à la normale de la surface de l'échantillon (figure III.4)

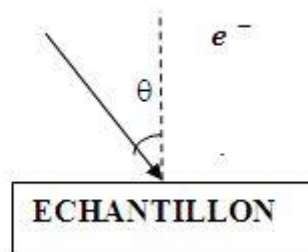


Figure III.4. Impact d'un faisceau d'électrons sous une incidence θ par rapport à la normale de la surface.

Si le coefficient de rétrodiffusion est mesuré en fonction de l'angle d'inclinaison θ , une augmentation monotone du coefficient de rétrodiffusion sera observé (Figure III.5). La pente de η en fonction de θ est initialement peu profond, mais augmente avec l'inclinaison. À des

angles d'inclinaison très élevés, la valeur de η tend vers l'unité.

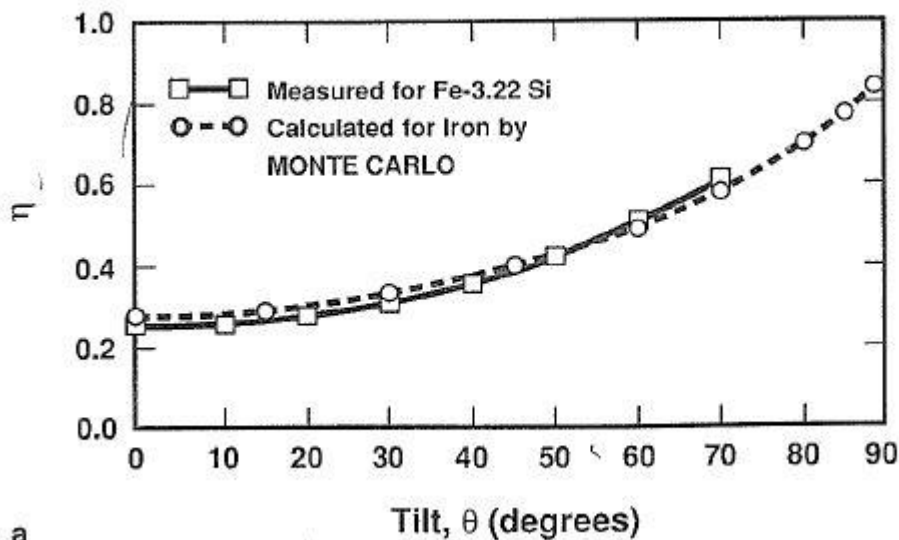


Figure III.5. Coefficient d'électrons rétrodiffusé en fonction de l'angle d'inclinaison θ mesurée pour le fer Fe et calculée par Monte Carlo [122].

Si η est tracé en fonction de θ pour différents éléments, alors, pour les grandes valeurs de θ , les coefficients de rétrodiffusion pour tous les éléments ont tendance à converger, comme le montre la figure III. 6, Une expression suggérée par Arnal et al. (1969) [124] donne le coefficient de rétrodiffusion comme une fonction générale de Z et θ :

$$\eta(\theta) = 1 / (1 + \cos\theta)^p \quad (\text{III.2})$$

avec $p = 9/\sqrt{Z}$

Ce comportement de η avec θ est dû à la domination de la diffusion élastique vers l'avant. C'est-à-dire que la plupart des phénomènes de diffusion élastique entraînent des angles d'écart relativement faibles, de l'ordre de 5° , de sorte que les trajectoires d'électrons ont tendance à se poursuivre, à peu près à la même direction après la diffusion. Lorsque le faisceau est normal à la surface de l'échantillon, le comportement de la diffusion vers l'avant signifie que les électrons du faisceau ont tendance à pénétrer dans la cible. Seulement par les effets cumulatifs de nombreux petits événements de diffusion, et les événements aux grands angles qui sont rares, certains trajectoires d'électrons inversent la direction et se déplacent vers la surface pour s'échapper sous forme d'électrons rétrodiffusés.

Toutefois, si l'angle d'inclinaison de la surface de l'échantillon augmente suffisamment, et malgré que la situation de la géométrie fasse en sorte que la tendance à la diffusion vers l'avant prédomine les trajectoires d'électrons à se déplacer près de la surface, les électrons peuvent sortir avec moins d'écart angulaire total, de sorte que le coefficient d'échappement augmente. L'augmentation monotone de η avec θ constitue la base du mécanisme du contraste topographique dans le MEB.

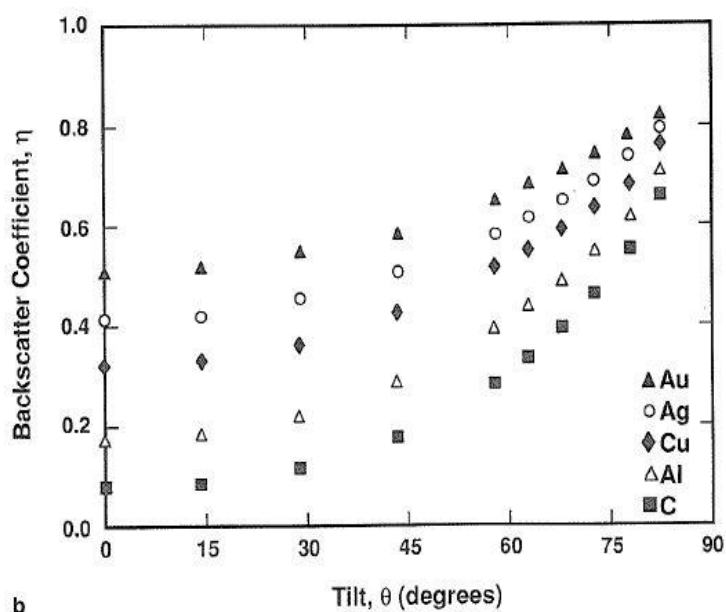


Figure III.6. Coefficient des électrons rétrodiffusés en fonction de l'angle d'inclinaison θ pour plusieurs éléments par simulation Monte Carlo.

II.2 Distributions des électrons rétrodiffusés

II.2.1 Distribution angulaire des électrons rétrodiffusés

Une autre considération importante est la direction de la rétrodiffusion des électrons. Beaucoup de travaux ont été menés dans ce domaine [124-130]. La dépendance entre η et θ donne le nombre total d'électrons rétrodiffusés qui émergent à un angle d'inclinaison particulier de la surface sans tenir compte des trajectoires que les électrons rétrodiffusés suivent dans le spécimen. En considérant la performance d'un détecteur d'électrons rétrodiffusé et afin d'interpréter les images obtenues par le signal BSE, il est nécessaire de comprendre la relation entre la position du détecteur par rapport à l'échantillon.

A incidence normale, la distribution angulaire des BSE est définie par rapport à la normale de la surface où les BSE émergent.

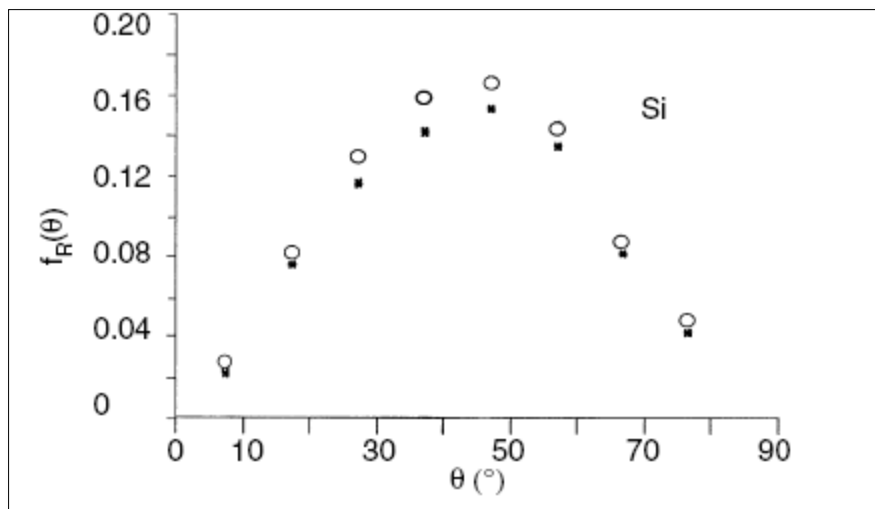


Figure III.7. La distribution angulaire des électrons rétrodiffusés pour le Si à 30keV (cercles) et 40keV (points) [130]

L'inspection de la distribution de la figure III.7, montre que le nombre maximum d'électrons rétrodiffusés est émis par le Silicium à 30 et 40keV, est le long de la surface normale à un angle $\theta = 50^\circ$, qui est l'angle le plus probable. Si le détecteur est placé à des valeurs plus grandes de cette valeur ou inférieures, les électrons rétrodiffusés diminuent. Aux angles les plus éloignés, juste au-dessus de la surface, il n'y a pratiquement pas de trajectoires d'électrons rétrodiffusés. Ainsi, l'emplacement d'un détecteur BSE par rapport à une surface d'échantillon aura une forte influence sur son efficacité de collection.

II.2.2 Distribution spatiale latérale des électrons rétrodiffusés

Les électrons du faisceau incident peuvent parcourir des distances latérales importantes à partir de leurs points d'impact, avant de s'échapper sous forme d'électrons rétrodiffusés. Comme le montrent la Figure III.8, la distribution spatiale des électrons rétrodiffusés pour une incidence normale du faisceau ressemble à un sombrero [127,128].

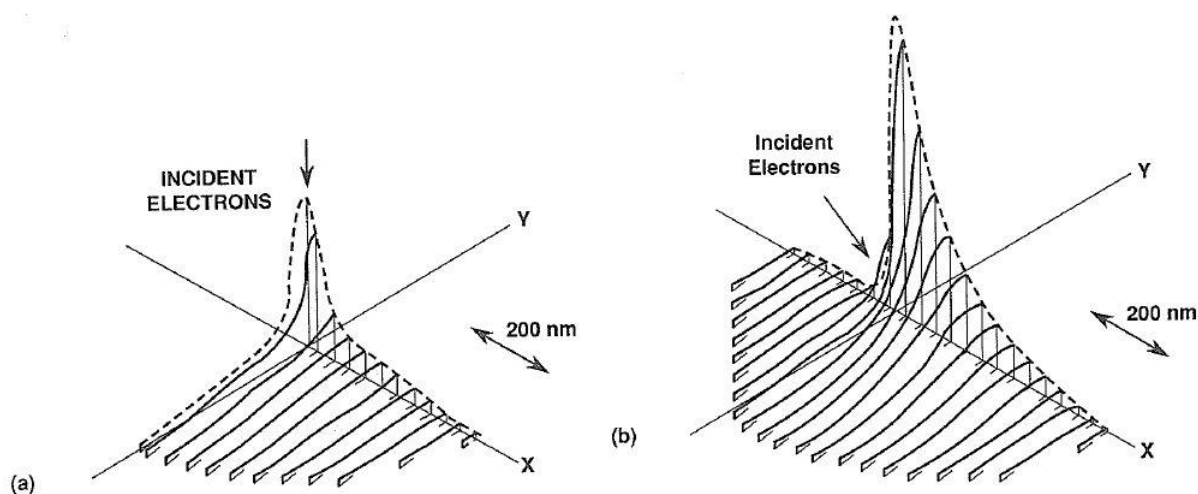


Figure III.8. Distribution spatiale des électrons rétrodiffusés à partir du cuivre pour 20 keV, (a) Cuivre, inclinaison de 0°; (b) inclinaison de 45°. [127]

Le principe de base de l'imagerie MEB est la mesure de l'information localisée par focalisation du faisceau pour former une sonde. Une conséquence directe de l'élargissement latéral des électrons rétrodiffusés, est la diminution de la capacité du MEB pour détecter les fines caractéristiques de l'échantillon au point d'impact du faisceau. En examinant la répartition spatiale en forme de sombrero, on voit que les électrons rétrodiffusés dans le sommet de la distribution représentent la «bonne» partie du signal électronique rétrodiffusé, qui est raisonnablement associé au faisceau incident. Ces électrons sont sensibles aux fines caractéristiques à l'échelle de l'échantillon. Les électrons rétrodiffusés dans le large bord du sombrero sont insensibles aux caractéristiques fines à proximité immédiate du point d'impact du faisceau et contribuent en fait à la détérioration du signal électronique rétrodiffusé sous forme de bruit. Pour les cibles à faible nombre atomique, le bord domine le signal, tandis que pour les cibles de nombre atomique élevé, le pic constitue une plus grande fraction du signal électronique rétrodiffusé.

II.2.3 Distribution énergétique et angulaire des électrons rétrodiffusés

Les calculs Monte Carlo de la distribution énergétique des électrons rétrodiffusés, donnés à la figure III.9, présentent plusieurs caractéristiques distinctes:

1. La distribution d'énergie est un continuum s'étendant à partir de l'énergie du faisceau incident (diffusion élastique avec de large angle sans perte d'énergie significative) à une énergie quasi nulle.

2. La distribution d'énergie présente deux régions distinctives: la région la plus haute, désignée I, représente les électrons rétrodiffusés de haute énergie qui ont perdu moins de 50% de leur énergie initiale. Pour la plupart des cibles avec un nombre atomique intermédiaire ou grand, la majorité des électrons rétrodiffusés se trouveront dans la région I. La région II représentant les électrons du faisceau qui parcourent plusieurs distances, perdant ainsi plus d'énergie dans le spécimen avant la rétrodiffusion.

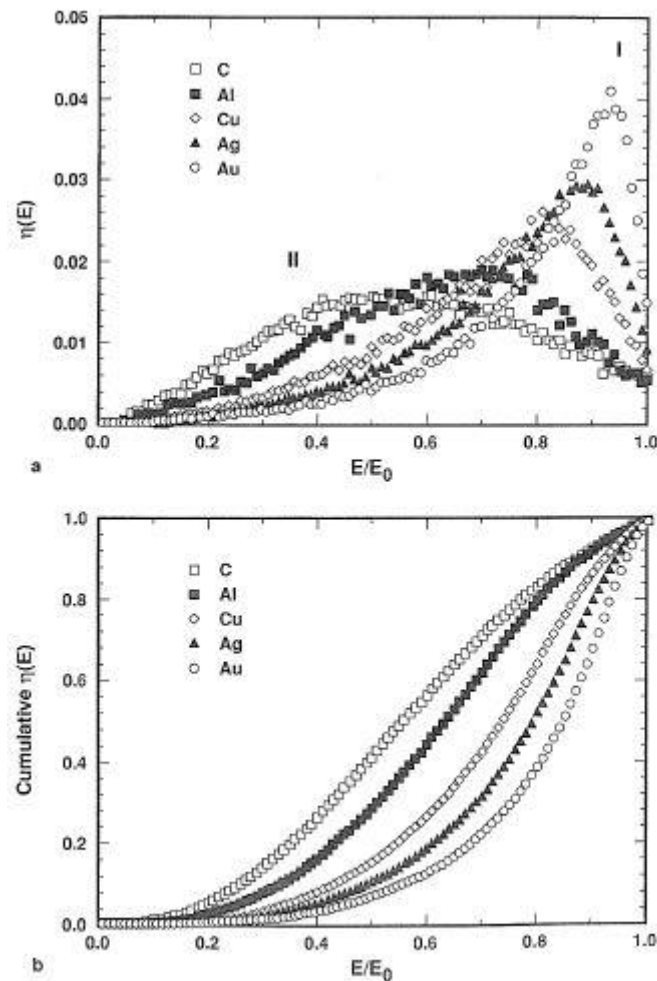


Figure III.9. La distribution d'énergie des électrons rétrodiffusés pour différents matériaux (a) $d\eta(E)/dE$. (b) distribution cumulative de $\eta(E)$. [129]

3. La distribution d'énergie montre un pic, qui devient très distinct pour les cibles de nombre atomiques les plus élevées. L'énergie relative du pic E/E_0 augmente de 0,8 pour le cuivre à 0,95 pour l'or (figure III.9). La distribution pour un élément léger tel que le carbone est extrêmement large, avec seulement un large maximum et aucun pic distinct.

La plupart des électrons rétrodiffusés conservent au moins 50% de l'énergie du faisceau incident, et la fraction augmentant fortement pour les cibles à nombre atomique très élevé. Les matériaux à nombres atomiques faibles produisent beaucoup moins d'électrons rétrodiffusés à haute énergie.

III. IMAGE RIE EN ÉLECTRONS RÉTRODIFFUSÉES ET RESOLUTION SPACIALE

III.1. Dans un MEB Conventionnel

Ce mode offre un contraste d'image en fonction de la composition élémentaire, ainsi qu'une topographie de la surface balayée. Les électrons rétrodiffusés sont des électrons de hautes énergies qui peuvent s'échapper d'une distance plus profonde par rapport aux électrons secondaires. La résolution de la topographie de surface est moins bonne que celle en imagerie d'électrons secondaires. En raison de la diffusion élastique, la résolution en imagerie d'électrons rétrodiffusés dépend de la tension d'accélération et de la nature de la cible. La génération des BSEs est proportionnelle au numéro atomique de l'échantillon bombardé, cela se traduit par un contraste de l'image en fonction de la composition. Dans une image d'électrons rétrodiffusés, un matériau avec un nombre atomique plus élevé est plus lumineux qu'un matériau avec un nombre atomique faible.

La résolution spatiale dans un MEB conventionnel dépend de divers paramètres expérimentaux ; par exemple le diamètre du faisceau d'électrons, l'énergie des électrons incidents et la nature de la matière ou plutôt le volume d'interaction résultant. Pour définir la résolution spatiale en mode « électrons rétrodiffusés », deux approches principales ont été proposées. Ces approches sont basées sur la simulation de l'interaction électron-matière de type Monte Carlo. La première approche consiste à considérer que la résolution spatiale est gouvernée par l'élargissement du faisceau d'électrons dans la matière ou par la distribution spatiale des BSEs de Murata et al. et Yasuda et al. [131,132]. Dans ce cas le profil d'émission des BSEs est le résultat de la convolution entre la distribution d'intensité dans la sonde primaire d'électrons avec la distribution des BSEs à la sortie de l'échantillon. Cela permet de définir la résolution latérale en mode BSEs en utilisant la largeur à mi-hauteur (FWHM) de cette distribution gaussienne. De ce fait, les images BSEs de haute résolution sont obtenues de deux manières: en sondant l'échantillon par un faisceau d'électron à faible énergie, ou en utilisant la méthode de « low-loss electron » qui définit le pic de Murata [131] permet de ne

collecter que les BSEs qui ont une énergie égale « approximativement » à E_0 et dont les points de sortie seront proches du point d'impact du faisceau primaire. La deuxième méthode ne prend en compte que le nombre total des BSEs collectés par le détecteur lorsque le faisceau est positionné dans deux points différents. Suite à cette approche, il est possible de déduire les valeurs de contraste, les courants de seuil et par conséquent la résolution. Par contre, la résolution en mode électrons secondaires » est limitée à la dimension de la sonde électronique avec un élargissement plus ou moins important dû aux électrons secondaires générés par les électrons rétrodiffusés. Le diamètre du faisceau final dépend de la luminosité de la source d'électrons, les coefficients d'aberration des lentilles et l'énergie d'accélération des électrons.

III.2. MEB à pression variable :

Le signal des électrons rétrodiffusés (BSEs) peut être détecté par les mêmes moyens que dans les conditions de high-vacuum mode. Des améliorations ont été apportées au détecteur des BSEs la première fois par Robinson [5]. Puis, l'imagerie en électrons rétrodiffusés atteint l'apogée de son développement à la suite de l'utilisation des détecteurs de type scintillateur (Danilatos, 1985). Malheureusement, jusqu'à maintenant cela est resté uniquement comme un prototype de laboratoire (Danilatos) [133]. D'une manière générale, les détecteurs des électrons rétrodiffusés sont basés sur:

- le matériau utilisé pour la détection
- l'état du matériau caractérisé
- le type de gaz utilisé pour l'imagerie et sa pression
- la polarisation de détecteur et la distance de travail

Dans le MEB à pression variable, l'imagerie en électrons secondaires est prédominante par rapport à l'imagerie en électrons rétrodiffusés et cela peut être attribué à l'idée que la première offre une meilleure résolution que la seconde. La forme de la sonde électronique primaire est importante pour déterminer la résolution de l'image et le niveau de bruit de fond. La diffusion des électrons primaires par l'effet du gaz peut affecter le rapport signal-bruit et par conséquent la qualité des images obtenues. Mais la résolution ne subira qu'une légère dégradation et les images peuvent être corrigées même à haute pression. Dans un environnement gazeux, l'imagerie des échantillons non conducteurs montre un nouveau type de contraste appelé contraste de charge (CCI). Ceci est un cas particulier lié au piégeage de

charges à la surface d'un échantillon isolant dans un environnement d'interaction électrons-ions -échantillon. Des informations structurales de l'échantillon et autres peuvent être révélées par ce type de contraste qui ne sont pas normalement facile à observer dans le mode conventionnel (Griffin, 2000; Robertson et al. 2005).

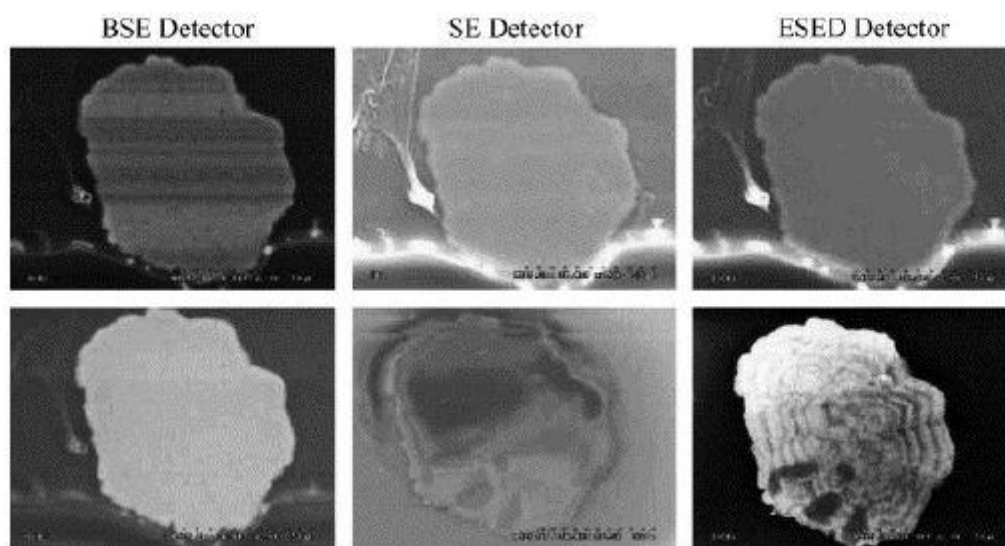


Figure III.10. Comparaison entre différentes images d'une particule de gibbsite obtenues par le détecteur d'électrons rétrodiffusés, le détecteur d'électrons secondaires et le détecteur d'électrons secondaires environnementaux (ESED). La gibbsite de la rangée supérieure est revêtue d'une couche conductrice. La microstructure sous forme d'anneaux de croissance est observée seulement dans la particule de gibbsite non revêtue en utilisant le détecteur d'électrons secondaires environnementaux [134].

Le profil du faisceau d'électrons et sa distribution sur la surface de l'échantillon sont modifiés « dû à la diffusion des électrons par les atomes du gaz » avec une incidence directe sur la résolution et la formation du contraste de l'image dans le MEB à pression variable. Il est donc nécessaire d'évaluer l'effet du profil du faisceau modifié sur le contraste des images secondaires ou rétrodiffusés. Pour évaluer la qualité des images obtenues dans un MEP-PV, le rapport signal sur bruit (SNR) qui définit le contraste est un critère de choix plutôt que la résolution [135]. En effet, le SNR d'une image sera amélioré quand le signal produit par le faisceau primaire non dévié augmente. En plus, il faut prendre en considération qu'il n'y a pas de différence entre le diamètre du faisceau primaire non dévié dans le cas d'une pression élevée et le diamètre du faisceau primaire dans le cas d'un vide poussé. Afin de montrer l'influence du Skirt sur la qualité d'image obtenue en MEB-PV, Khouchaf et Verstraete [136]

montrent deux images d'une particule de silicium dont le diamètre le plus long est de 160 μm contenant des particules de fer sur sa surface. Ces deux images sont obtenues dans les mêmes conditions expérimentales, sauf le type de gaz. L'amélioration substantielle de la qualité de l'image avec de l'hélium "en comparaison avec la vapeur d'eau" est due à une meilleure focalisation du faisceau d'électrons qui nécessite la présence d'une fraction non diffusée importante. Ce phénomène engendre une augmentation du rapport signal-bruit qui mène par la suite par une amélioration de la qualité de l'image. La présence du gaz et la formation du Skirt dans le MEB à pression variable a vraiment prouvé son effet de détérioration de l'imagerie et de la résolution mais aussi de la microanalyse X [18,137]

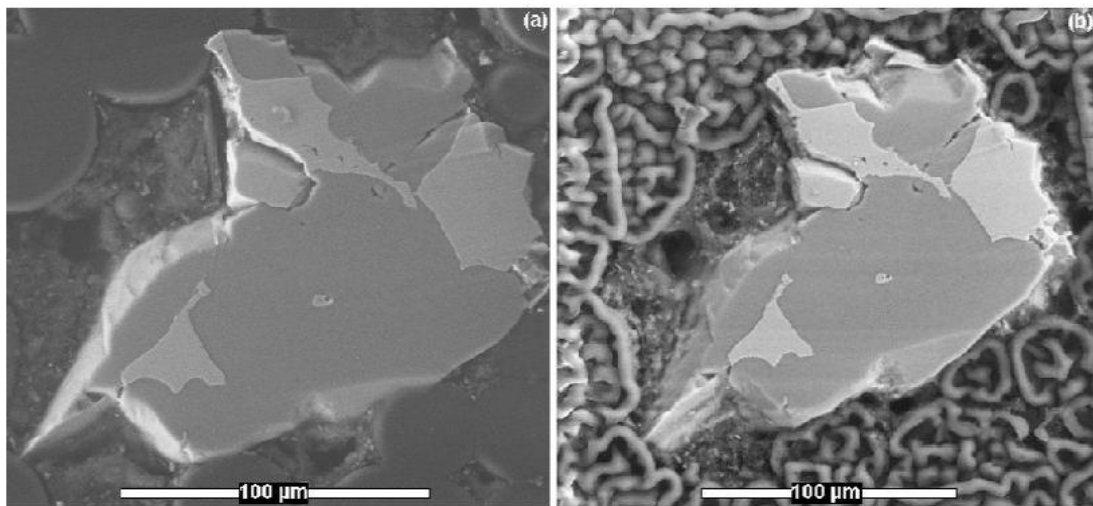


Figure III.11. *Micrographies d'une particule de Si recouverte de particules de Fe avec un détecteur GSED à 2 Torr (266 Pa) et 20 kV, (a) Vapeur d'eau, (b) Hélium [136].*

VI. CONCLUSION

Dans ce chapitre nous nous sommes concentré sur les différents aspects et paramètres expérimentaux influençant les électrons rétrodiffusés tel que l'énergie, l'incidence des électrons incidents, la nature de la matière ou plutôt le volume d'interaction résultant, et l'effet du gaz qui sont des paramètres essentiels pour l'optimisation de l'imagerie en mode BSE. Nous verrons par la suite comment ces paramètres et les propriétés du matériau peuvent influencer sur le signal des électrons rétrodiffusés à travers la simulation Monte Carlo.

Chapitre IV

EFFETS DU GAZ SUR LE FAISCEAU PRIMAIRE D'ELECTRONS – RESULTATS DES CALCULS MONTE CARLO

Chapitre IV

EFFETS DU GAZ SUR LE FAISCEAU PRIMAIRE D'ELECTRONS – RESULTATS DES CALCULS MONTE CARLO

I. INTROUCTION

Dans ce chapitre, nous avons tout d'abord utilisé notre programme Monte Carlo pour calculer les profils du faisceau d'électrons dans trois gaz différents: vapeur d'eau, hélium, air. Ainsi, nous avons calculé en fonction de la pression et de la tension d'accélération les profils du faisceau, les rayons de skirt, les pourcentages d'électrons non diffusés ainsi que le nombre moyen de collision, le libre parcours moyen. Chaque calcul a été effectué pour 10^6 trajectoires électroniques.

Pour analyser l'effet de la variation de la pression de la chambre d'analyse, la tension d'accélération et le GPL, supposé égal à la distance de travail (L), sont respectivement de 5-20 kV et 2 et 5 mm. Le détecteur est supposé annulaire avec un rayon extérieur de 5 mm. Un schéma descriptif est représenté sur la figure IV.1 où l'axe vertical Δ indique la direction du faisceau d'électrons incident dans le vide, et le point I est l'intersection de cet axe avec la surface de l'échantillon. Toutes les distances sur cette surface sont calculées à partir de ce point I. θ_m est l'angle de détection maximum dans le plan de la figure IV.1.

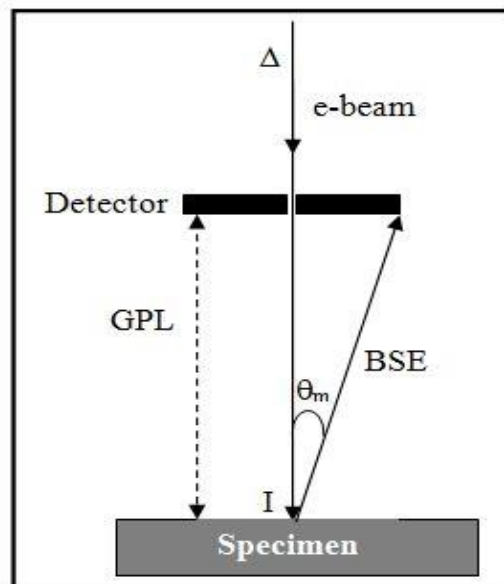


Figure IV.1. Diagramme schématique du système de détection des électrons rétrodiffusés dans un MEB-PV.

II. ETUDE DU PROFIL DU FAISCEAU D'ELECTRONS

Afin de déterminer le profil total du faisceau d'électrons, nous avons calculé pour chaque énergie et différentes pressions les rayons qui contiennent différentes fractions des électrons diffusés. A chaque fois, la fraction d'électrons non diffusés est d'abord soustraite du flux initial, en accord avec la définition donnée pour $r_{0.9}$.

Remarques : Tous les résultats de cette thèse ont été obtenus à la température ambiante. La distance parcourue dans le gaz par le faisceau d'électrons (GPL) est prise égale à la distance de travail L .

II.1 Variation des rayons de skirt

Nous présentons dans ce paragraphe les résultats de la variation du rayon du skirt en fonction de la pression pour différentes énergies pour les trois gaz (Air, Vapeur d'eau, Hélium).

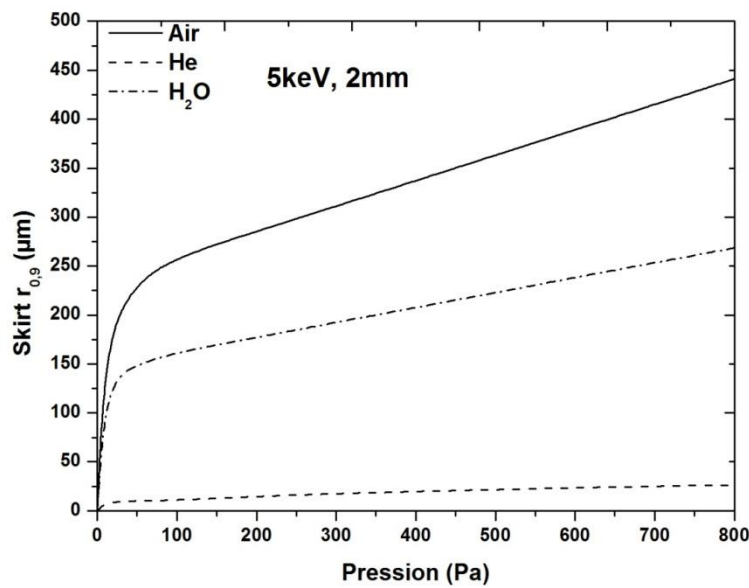


Figure IV.2. Variation du rayon du skirt en fonction de la pression pour les trois gaz, pour une énergie de 5 keV et une distance de travail de 2 mm.

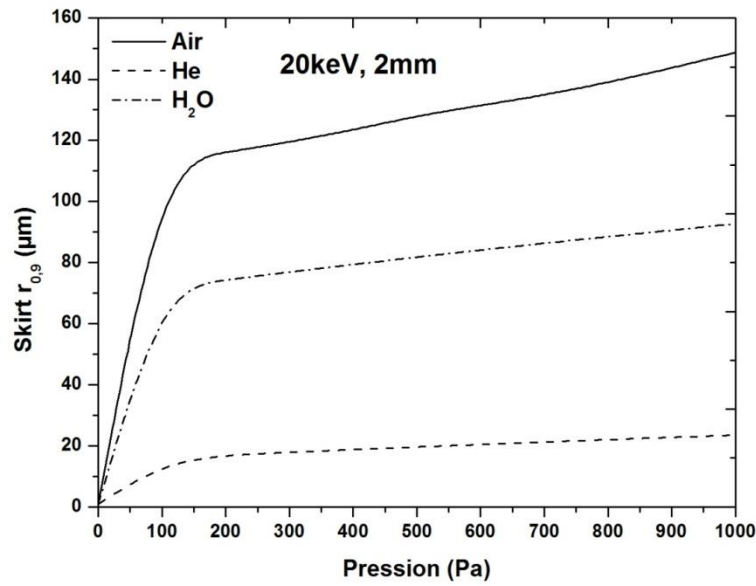


Figure IV.3. Variation du rayon Skirt en fonction de la pression pour les trois gaz, pour une énergie de 20 keV et une distance de travail de 2 mm.

Nous pouvons voir qu'en effet, le skirt s'élargi assez nettement avec l'augmentation du numéro atomique, et diminue avec l'augmentation de l'énergie du faisceau primaire. Comme on peut le constater, le rayon diffusé est directement lié au numéro atomique et la figure IV.3, comparée à la figure IV.2 montre que l'augmentation de l'énergie du faisceau primaire réduit considérablement la distance à laquelle les électrons primaires sont dispersés. A 5 keV, la figure IV.2 montre que les valeurs du skirt pour l'hélium et la vapeur d'eau sont d'environ 17 μm et 150 μm respectivement à 100 Pa et environ 19 μm et 260 μm à 800 Pa, tandis que pour l'air, le skirt est de 250 μm à 100 Pa et s'approche de 450 μm à 800 Pa. A 2mm et 20keV le skirt pour l'air diminue d'un facteur de 3 par rapport à 5 keV et se multiplie par un facteur de 2.5 quand la distance de travail est augmentée à 5mm (Fig.IV.4). Les résultats montrent clairement que l'augmentation est faible pour l'hélium (skirt quasi constant) même pour des grandes pressions. Le faible changement du rayon de skirt est en accord avec l'effet bénéfique de l'utilisation de gaz d'hélium dans la détection BSE qui a été montré par Oho et al [135] et Kadoun et al [47]. Dans ces documents, les auteurs ont montré que le rapport signal sur bruit reste élevé pour l'utilisation de l'hélium, même lorsque la pression dans la chambre est importante.

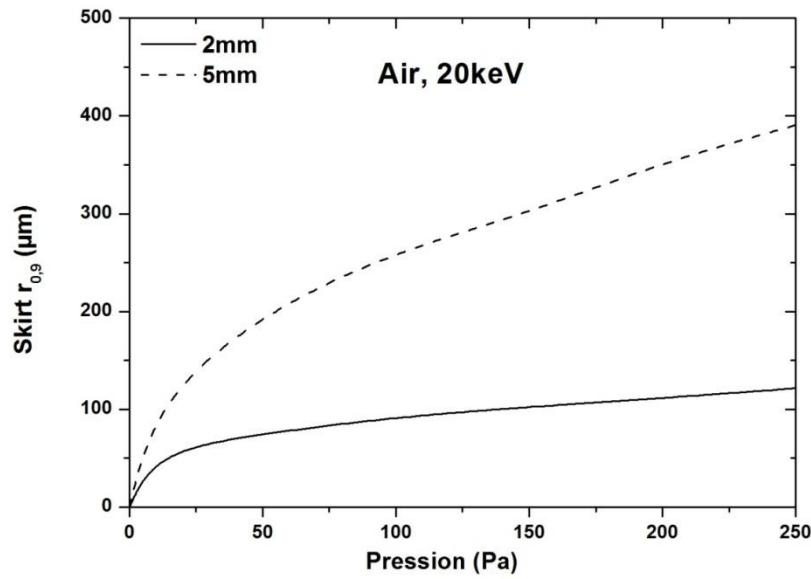


Figure IV.4. Variation du rayon du skirt en fonction de la pression d'air à 20 keV pour différentes distances de travail.

L'écart par rapport à la linéarité correspond à un changement de régime qui passe de « single scattering » à un régime plus élevé « plural scattering ». Nous l'avons vérifié pour l'air à 5 keV où m passe de 0.25 pour 100 Pa à une valeur de 2 à 1000 Pa (figure IV.5). Pour la vapeur d'eau m passe de 0.16 à 1.3 mais pour l'hélium m passe de 0.029 à 0.3, et qui correspond toujours au régime diffusion simple «single-scattering».

Il est très important de noter que la valeur de m qui est le nombre moyen de diffusion par électron, a été calculée directement par notre programme et non à partir de la relation théorique II.17 du chapitre II ($m = \sigma.P.L/k.T$).

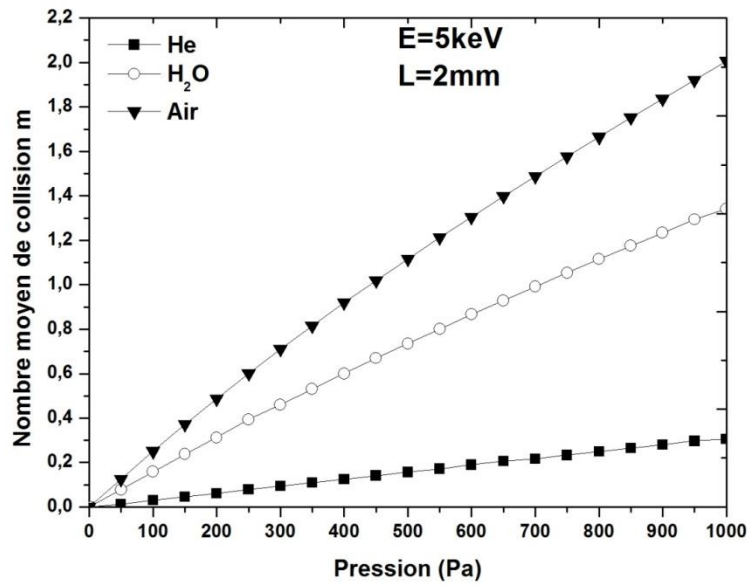


Figure IV.5. Variation de m en fonction de la pression pour $E=5$ keV et une distance de travail de 2mm pour les trois gaz

La probabilité pour qu'un électron subisse x collisions ($x = 0, 1, 2, \dots$) est donnée par la relation de Poisson :

$$P(x) = \frac{m^x e^{-m}}{x!} \quad (\text{IV.1})$$

D'après cette équation, la probabilité pour qu'il n'y ait aucune collision est :

$$P(0) = e^{-m} \quad (\text{IV.2})$$

Pour m très petit ($m \ll 1$), cette dernière relation peut être linéarisée par développement. Pour les faibles pressions, m augmente tout en restant faible (régime diffusion simple), et $P(0)$ évolue linéairement avec m , ce qui explique la variation linéaire de $r_{0,9}$ pour l'hélium. A cause de sa faible section efficace, le domaine de pression où m reste faible (skirt quasi constant) est plus étendu pour l'hélium, où les résultats suggèrent que les pressions de quelques centaines de pascal donnent encore un très bon courant primaire utile, en particulier inférieur à environ 500 Pa ($m < 0,2$). Le comportement particulier de l'hélium dans le MEB-PV a été décrit par Fletcher et al. qui ont montré qu'il est possible d'obtenir une image avec une pression significative dans la chambre d'analyse du microscope (Oho et al 2000 et Robinson). À la pression de 1000 Pa, le facteur m , ne dépasse pas 0,35 en comparaison avec les autres gaz étudiés. Au point d'impact, la quantité d'électrons rétrodiffusés en raison de l'interaction entre la partie dispersée du faisceau d'électrons et l'échantillon est réduite. Une

amélioration substantielle de la résolution et de la qualité de l'image peuvent être obtenue avec de l'hélium en raison d'une meilleure focalisation du faisceau d'électrons, tandis que pour l'air et la vapeur d'eau, la haute pression est plutôt restrictive dans ces conditions.

II.2 Calcul de la fraction des électrons non diffusés :

Nous présentons dans ce paragraphe les résultats de la variation de la fraction des électrons non diffusés (f_p), en fonction de la pression et de l'énergie, pour l'air, la vapeur d'eau et l'hélium, ces résultats sont tracés dans les graphes suivants :

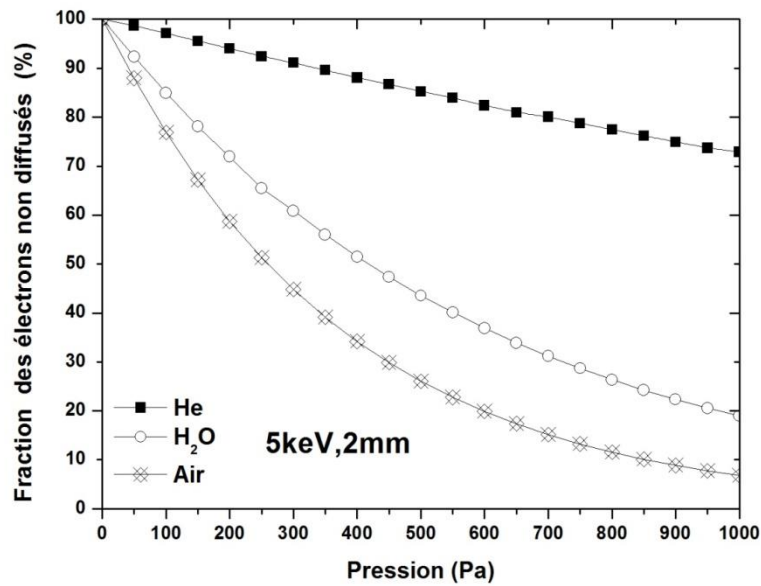


Figure IV.6. Variation de la fraction des électrons non diffusés en fonction de la pression pour les trois gaz à 5 keV

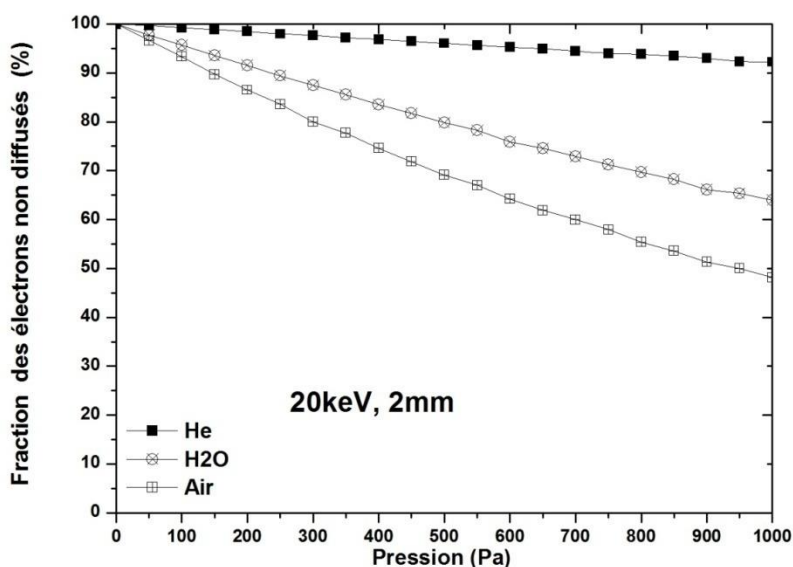


Figure IV.7. Variation de la fraction des électrons non diffusés en fonction de la pression pour les trois gaz à 20ke V

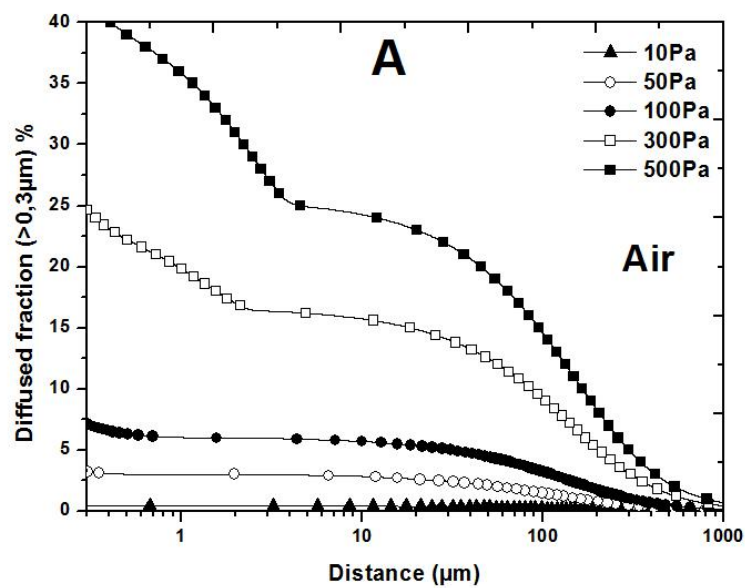
Les électrons du skirt ne contribuent pas au courant du faisceau d'électrons primaires. La figure (IV.6) montre une rapide réduction du courant primaire sous l'effet de la pression, lorsque l'énergie du faisceau d'électrons est très basse (sauf pour He), ce qui peut se comprendre aisément car les sections efficaces de diffusion augmentent avec la diminution de l'énergie des électrons. Comme indiqué précédemment, la diffusion du faisceau d'électrons primaires entraîne une perte de l'intensité du courant utile. Généralement ceci n'affecte pas la résolution, et ne fait que diminuer le rapport signal-bruit, ce qui entraîne que les images apparaissent de moins bonne qualité et le contraste diminue, rendant plus difficile la distinction des éléments adjacents ayant des caractéristiques d'émission électronique similaire. Une façon d'améliorer la situation, surtout si l'imagerie est à basse tension, est de réduire la pression. Pour l'instant, nous allons essayer de quantifier l'effet du gaz sur le courant utile du faisceau primaire.

En considérant simultanément les figures IV.2, 3, 6 et 7, on peut immédiatement en déduire qu'il existe effectivement une corrélation directe: plus le rayon du skirt est petit, plus la probabilité que les électrons restent dans la sonde pour former un bon courant est grande. Par exemple, nous avons vu dans la figure IV.2 que la dispersion des électrons primaires dans l'air donne un important skirt, de sorte que nous nous attendons à ce qu'une grande partie des électrons primaires se perd. A partir de la figure IV.6, nous remarquons qu'à 5 keV et 300Pa

pour l'air, seuls 45% des électrons du faisceau primaire restent dans la sonde, pour former le courant utile. Ceci n'est pas le cas pour l'hélium, où le rayon de skirt est estimé beaucoup plus faible avec une fraction d'électrons non diffusées de 90% pour cette même énergie et pression. En théorie l'exigence minimale de la fraction d'électrons non diffusés pour la formation d'une image est de 5%. La fraction des électrons non diffusés calculée pour toutes les pressions (50Pa, jusqu'à 1000Pa) et pour les deux énergies (5 keV et 20 keV), ne s'annule pas pour tous les gaz.

II.3 La fraction diffusée

La figure IV.8 montre la fraction diffusée des électrons primaires simulée, en fonction de la pression d'air, d'hélium et de la vapeur d'eau pour une énergie de 5keV (cas le plus défavorable). Nous avons choisi de prendre les fractions diffusées **au-delà de 0,3 μm** , en prévision des résultats qui seront présentés au chapitre suivant concernant l'effet du gaz sur les électrons rétrodiffusés, puisque cette distance de 0,3 μm correspond au rayon de sortie des électrons rétrodiffusés dans le vide à la surface du carbone.



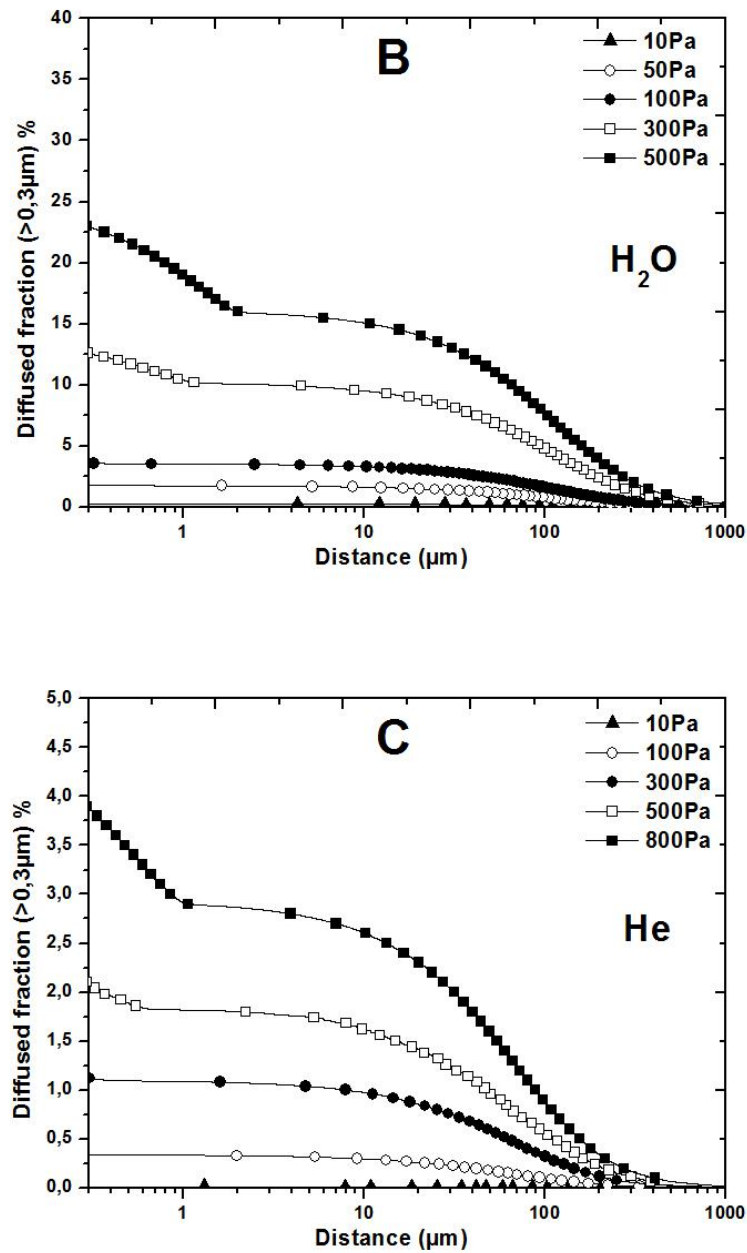


Figure IV.8. Variation de la fraction des électrons diffusés en fonction de la pression pour les trois gaz (A):Air, (B): Vapeur d'eau et (C): hélium:

A première vue, lorsque la pression augmente, la fraction du faisceau augmente pour chaque gaz, et l'augmentation est la plus faible pour l'hélium. La forme des courbes IV.8.A, B et C sont composées de deux régions intérieures et extérieures qui correspondent respectivement à la diffusion inélastique et élastique, en accord avec le résultat de Tang et Joy [34] où le profil du faisceau incident est constitué de deux parties, proches de la forme gaussienne. Pour l'hélium (Fig. IV.8.C), la faible valeur de la fraction diffusée suggère que les pressions de

quelques centaines de pascal donneront toujours un bon courant utile, en particulier en dessous d'environ 500 Pa, ce qui est en accord avec les résultats expérimentaux de Khouchaf et al. [136].

Le comportement particulier de l'hélium dans le VP-SEM a été expérimentalement décrit par ces auteurs qui ont montré qu'il est possible d'obtenir une image avec une pression significative dans la chambre. Comme on peut le constater, la quantité d'électrons rétrodiffusés due à l'interaction entre la partie diffusée du faisceau d'électrons et l'échantillon sera réduite en utilisant le gaz d'hélium.

II.4 Libre parcours moyen

Si nous supposons que la longueur du chemin de gaz est associé, soit avec la distance de travail ou la distance entre l'axe d'ouverture de limitation de pression (différentiel) et de l'échantillon, alors la conclusion logique serait qu'il est préférable de maintenir une courte distance de travail afin de réduire au minimum la dispersion des électrons primaires et les pertes d'énergies dues aux collisions des électrons rétrodiffusés de faibles énergies avec le gaz afin de faciliter leur capture avec le maximum d'énergie.

II.4.1 Effet de l'énergie

La Figure IV.9 montre le calcul du libre parcours moyen total λ_e en fonction du numéro atomique pour différentes énergies du faisceau d'électrons primaire : $1 \text{ keV} < E < 20 \text{ keV}$, et pour une pression constante de gaz : $p = 266 \text{ Pa}$ (2 torr). Dans le chapitre 2 (Fig. II.3 et 4), nous avons vu que la section efficace de diffusion augmente avec le numéro atomique Z et augmente quand l'énergie de faisceau diminue. Figure IV.9 confirme cette situation, indiquant que les gaz ayant un faible numéro atomique produisent une faible diffusion et donc un libre parcours moyen, λ_e plus élevé surtout à grandes énergies de faisceau. Plus précisément, pour un faisceau primaire d'énergie $E = 20 \text{ keV}$, nous voyons que λ_e est d'environ 76 mm dans le cas de l'hélium, tandis que pour la vapeur d'eau, et l'air, λ_e diminue à environ 13.7 mm et 8.5 mm, respectivement. Pour $E = 5 \text{ keV}$, les valeurs sont à 23.2 mm pour l'hélium, 4.6 mm pour la vapeur d'eau, et 2.8 mm pour l'air. Si nous prenons des longueurs typiques de gaz dans le MEB-PV, qui se situent entre 2 mm et 5 mm, immédiatement ceci nous donne une idée de la façon dont il est probable que les électrons primaires seront dispersés.

Par exemple, pour l'air à une pression $p = 266 \text{ Pa}$, un faisceau primaire d'énergie $E = 5 \text{ keV}$ et une distance de travail $L = 2 \text{ mm}$, le faisceau d'électrons primaire, avec des libres parcours

moyens de $\lambda_e \sim 2.8$ mm, subit relativement peu d'événements de diffusion par rapport à une distance de travail de 5mm.

Nous savons que les électrons rétrodiffusés (BSE) ont des énergies allant de 50 eV jusqu'à l'énergie du faisceau primaire. Des BSE avec 1keV dont le libre parcours moyen d'environ $\lambda_e \sim 0.7$ mm, subiront beaucoup d'événements de diffusion par rapport à une distance de travail de 5mm. Ceci entrainera la perte de leur énergies, de sorte que certain BSE n'atteindront jamais le détecteur.

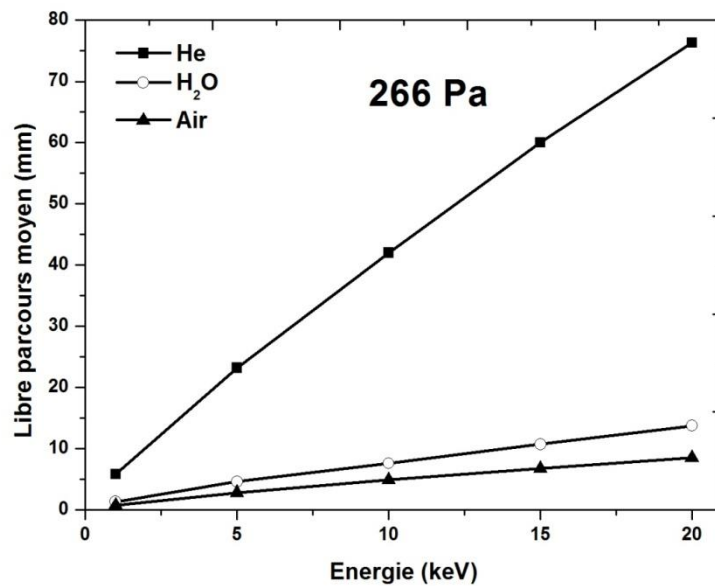


Figure IV.9. Variation de libre parcours moyen total λ_e en fonction de l'énergie pour les trois gas Air, Vapeur d'eau et hélium $P=266Pa$

L'observation pour de grande distance de travail (par exemple 10-15 mm) est tout à fait possible, mais beaucoup plus difficile pour les plus basses énergies, où le libre parcours moyen des électrons primaire devient un peu plus court que la distance de travail. En outre, lorsque la pression de gaz est plus élevée que celui montré ici, la diffusion peut devenir excessive et la détection des électrons rétrodiffusés sera réduite.

II.4.2 Effet de la pression

Dans cette section, nous allons utiliser l'air comme gaz dans la chambre d'analyse. Comme avant, il faut d'abord qu'on considère le libre parcours moyen des électrons primaires ou rétrodiffusés λ_e , mais cette fois pour plusieurs énergies du faisceau primaire en fonction de la pression.

En conséquence, la figure IV.10 est un schéma log-log montrant les valeurs du libre parcours moyen de l'air λ_e à des pressions allant jusqu'à 1 kPa (7,5 torr). Nous voyons que, pour la pression $p = 10$ Pa, le libre parcours moyen pour les électrons ayant $E = 5$ keV est de l'ordre de 7.3 mm, passant par un ordre de grandeur pour chaque augmentation de la pression. Si l'énergie du faisceau primaire passe à 20 keV, les valeurs de λ_e augmentent d'environ 23 mm à $p = 10$ Pa, 2.3 mcm à $p = 100$ Pa et 2.3 mm à $p = 1$ kPa.

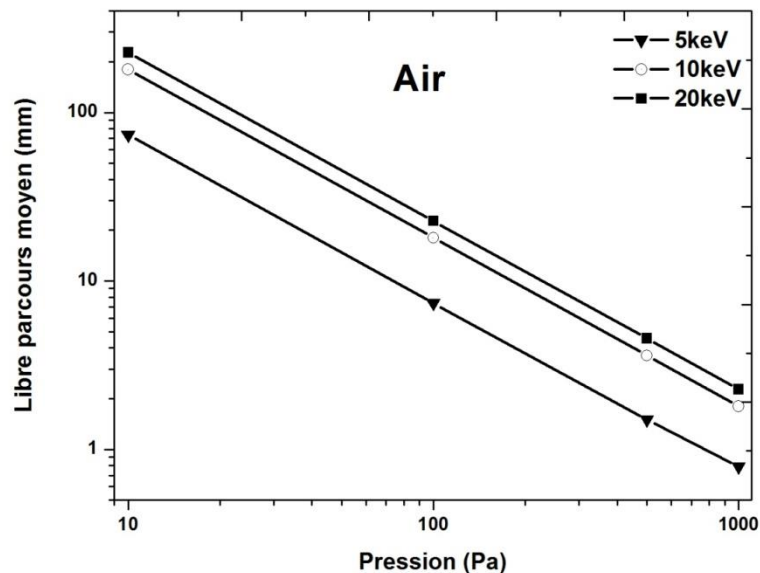


Figure IV.10. Variation de libre parcours moyen total λ_e pour l'air en fonction de la pression pour différentes énergie

En fin de compte, l'examen du libre parcours moyen, en liaison avec une faible distance de travail (1-5 mm) donne à penser que, pour l'air, à une pression de $p = 100$ Pa doit donner une bonne qualité du profil de faisceau, même plusieurs centaines de pascal, permettent de donner un profil approprié, en particulier pour les énergies supérieures à 10 keV. Pour des basses énergies de 5keV, le degré de diffusion ne commencera à avoir un fort effet sur la fraction des électrons non diffusés que pour $p \sim 100$ -200 Pa.

III. CONCLUSIONS

Ce chapitre rassemble les résultats de nos calculs Monte Carlo sur les effets des trois gaz que nous avons choisis (He, H₂O et Air) sur le comportement du faisceau électronique du MEB-VP, tel que le skirt, la fraction non diffusée et diffusée ainsi que le libre parcours moyen. Comme prévu, nous avons constaté un élargissement du faisceau incident (skirt), et une augmentation du libre parcours moyen ainsi que le nombre moyen de collisions qui augmente avec la pression et diminuent avec l'augmentation de l'énergie du faisceau d'électrons primaires. Cet effet est le moins important dans le cas de l'hélium par rapport à l'air et la vapeur d'eau.

Chapitre V

EFFETS DU GAZ SUR L'EMISSION ET LA DETECTION DES ELECTRONS RETRODIFFUSES – RESULTATS DES CALCULS MONTE CARLO

CHAPITRE V

EFFETS DU GAZ SUR L'EMISSION ET LA DETECTION DES ELECTRONS RETRODIFFUSES – RESULTATS DES CALCULS MONTE CARLO

I. INTRODUCTION

Dans ce chapitre, nous avons également utilisé notre programme Monte Carlo pour suivre les trajectoires des électrons rétrodiffusés issus de l'interaction électron-matière, après passage de l'électron à travers la masse gazeuse. Pour cela, nous avons choisi comme matériaux le Carbone (C), l'Oxyde de silicium (SiO_2), et nous nous intéresserons à l'interface C/ SiO_2 . On présentera les résultats de calcul concernant : le coefficient de rétrodiffusion (η) des BSE, les intensités des BSE, leurs rayons de sortie (R_{BSE}), ainsi que leurs distributions spatiale, énergétique et angulaire, en fonction des paramètres du VPSEM. Chaque calcul a été effectué pour 10^6 trajectoires électroniques.

II. INFLUENCE DU GAZ SUR LES ELECTRONS RETRODIFFUSES DANS UN MEB-PV

II.1 Distribution spatiale des électrons rétrodiffusés

La distribution spatiale des composants ou des phases dans les échantillons de matériaux hétérogène est un problème important dans un certain nombre de domaines de recherche. Des images d'électrons rétrodiffusés (BSE) sont utiles pour déterminer le nombre et la distribution des phases, puisque le niveau de gris de chaque pixel est lié au nombre atomique Z au niveau de la position correspondante sur la surface de l'échantillon, bien qu'ils ne puissent pas être utilisés seuls pour déterminer la composition chimique.

Dans le MEB le faisceau d'électrons balaye la surface de l'échantillon, tandis que les intensités des BSE sont enregistrés pixel par pixel. La résolution spatiale des BSE est limitée par le volume d'interaction et est fonction de l'énergie du faisceau d'électrons, et de la composition de l'échantillon ce qui limite la sensibilité à détecter les variations de composition dans les images BSE.

II.1.1 Effet du gaz sur la poire d'interaction

Dans cette partie, nous verrons l'influence du gaz sur la distribution des électrons dans la poire d'interaction sous pression d'air.

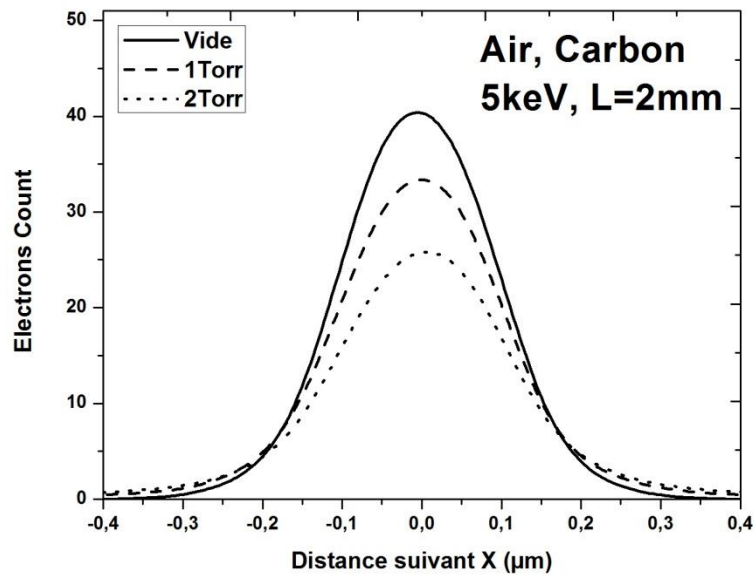


Figure V.1. La distribution des électrons suivant X pour différentes pressions d'air pour le Carbone à 5keV et $L=2\text{mm}$

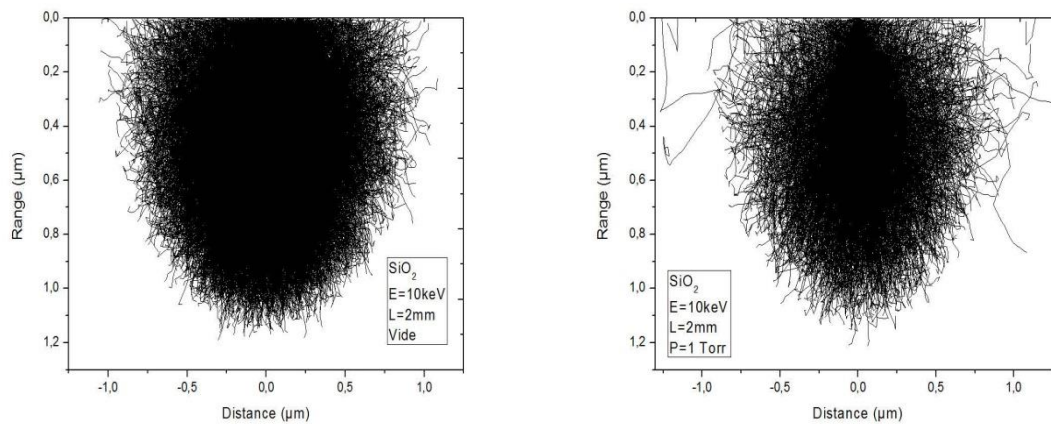


Figure V.2. Trajectoires électroniques dans SiO_2 dans le vide (Gauche) et sous pression d'air à 133Pa (à droite, sans skirt), $E=10\text{keV}$, $L=2\text{mm}$

La figure V.1 montre que l'amplitude de distribution des électrons dans la poire diminue en fonction de la pression du gaz par rapport au vide; ceci est dû à la diminution de la fraction des électrons non diffusés au point d'impact. Ceci est clairement visible dans la figure V.2, où la densité des électrons dans la poire d'interaction (poire sans skirt) est visiblement réduite, malgré la forte énergie de 10 keV. La figure V. 3, représente la poire d'interaction de la figure V.2 (à droite), mais en incluant le skirt. Il semble qu'après la diffusion multiple des électrons

primaires par le gaz, le rayon de skirt du faisceau d'électrons est plus grand que le volume d'interaction. Dans cette situation, la taille du volume dans le matériau créé à la fois par le faisceau diffusé et la fraction non diffusé est modifiée.

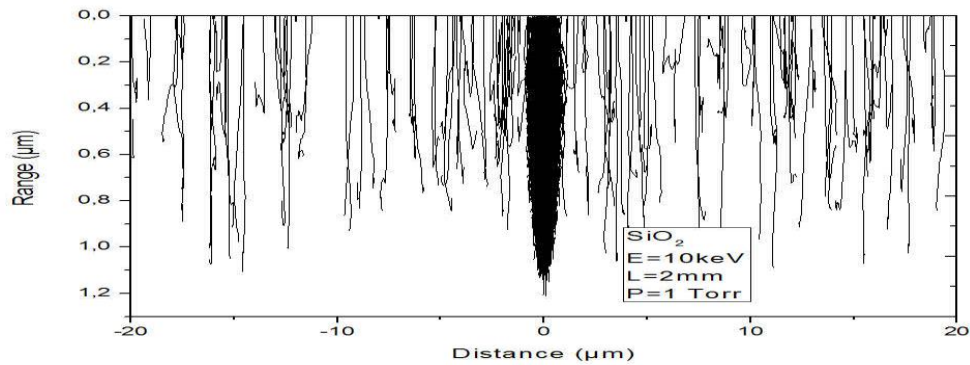


Figure V.3. Trajectoires électroniques de SiO_2 pour une pression $P=133\text{Pa}$, $E=10\text{keV}$

On note aussi que la profondeur d'interaction n'est pas modifiée par la variation de la pression (Fig. V.4), toutefois, il y a une augmentation de la densité des électrons près de la surface, et qui sont les électrons du skirt entrant avec une incidence oblique.

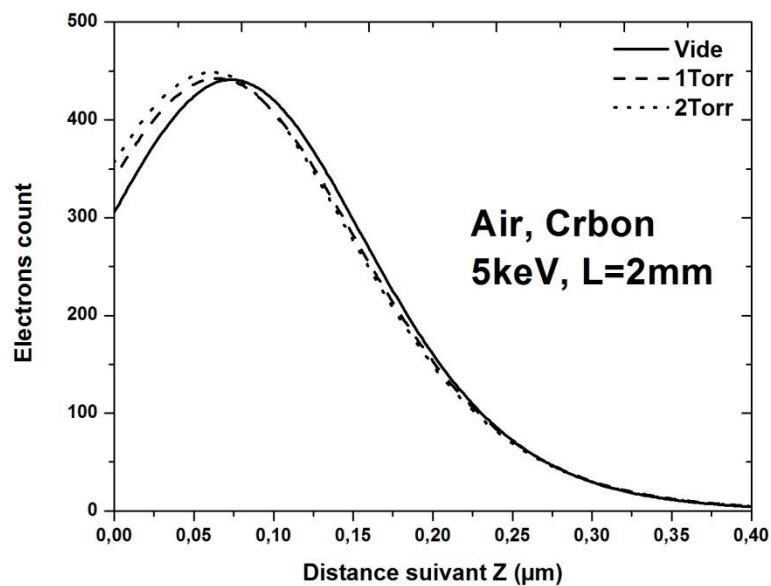


Figure V.4. Distribution des électrons primaire suivant l'axe Z pour différentes pressions en présence de l'air pour le Carbone et pour $E=5\text{keV}$

II.1.2 Effet du gaz sur la distribution spatiale des BSE

Afin d'étudier le volume d'émission des BSE et leurs signaux en fonction de l'énergie des électrons incidents, de la composition du matériau, et ensuite sous pression de gaz, une série de simulations Monte Carlo ont été réalisées. Une modification supplémentaire du programme diffusion multiple de Joy [118] a été introduite afin d'enregistrer les coordonnées radiales et spatiales des électrons rétrodiffusés lorsqu'ils émergent de l'échantillon, ainsi que leur profondeur d'échappement. Comme on le verra plus loin, ces coordonnées radiales sont utiles pour déterminer la résolution spatiale du signal BSE. Dans le cas de l'interface C/SiO₂ où la symétrie radiale est brisée, un profil cumulatif des BSE issu d'un scan sur l'échantillon ou d'un bombardement ciblé à l'interface est proposé.

Premièrement nous avons utilisé la simulation de Monte Carlo pour des matériaux purs, tels que le carbone et le SiO₂ dans le vide et à différentes pressions des gaz utilisés (parfois l'air est utilisé seul, car c'est le cas le plus défavorable en matière de dispersion des électrons) pour les énergies d'électrons incidents de 5 et 20 keV, afin d'obtenir la distribution spatiale latérale et en profondeur des BSE. Comme mentionné ci-dessus, la simulation de Monte Carlo a été aussi effectuée pour un échantillon avec une interface séparant les deux matériaux C|SiO₂.

Les distributions des BSE en profondeur (Dbse) et latérale (Lbse) sont illustrées dans la figure V.5 sous vide.

A première vue, les dimensions latérales et en profondeur augmentent avec la tension d'accélération et diminuent avec le numéro atomique et ressemble à un sombrero avec un pic central et une taille larges en particulier pour le SiO₂. Ceci se traduit par une grande fraction du signal dérivé du pic et une bonne résolution du signal BSE, potentiellement plus élevée pour le SiO₂ que pour le carbone.

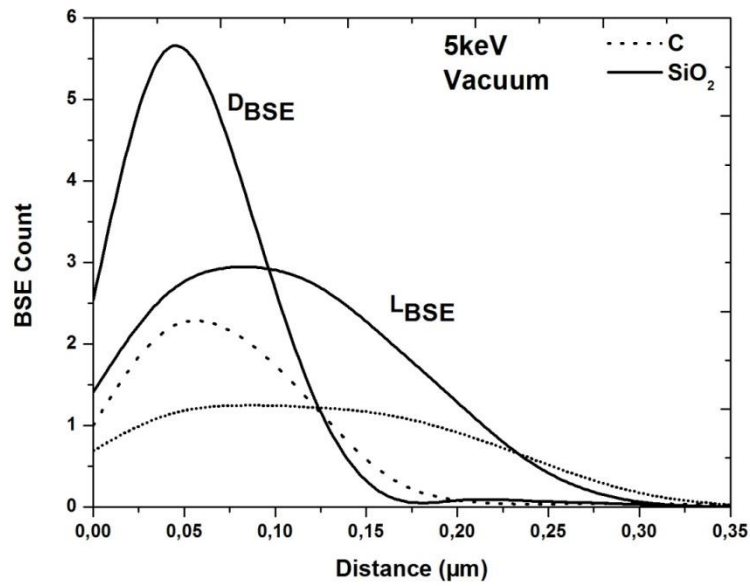


Figure V.5. Distributions des BSE en profondeur (DBSE) et latérale (LBSE) sous vide pour le carbone et SiO_2 , $E=5\text{keV}$

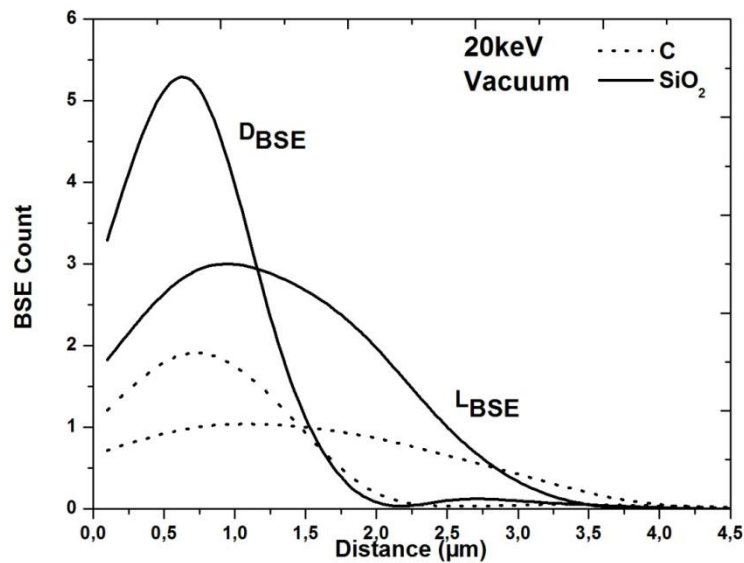


Figure V.6. Les distributions des BSE en profondeur (Dbse) et latérale (Lbse) sous vide pour le carbone et SiO_2 , $E=20\text{keV}$

D'après la figure V.5, à 5 keV, la dimension latérale des BSE issue de SiO_2 (Lbse) est de 0,3 μm en comparaison avec celle du carbone qui est de 0,35 μm . Pour une énergie de 20keV (figure V.6) les dimensions augmentent à 4 μm pour le carbone et à 3.5 μm pour le SiO_2 . Le

même comportement est visualisé pour la profondeur d'échappement des BSE (Dbse), où elle est plus grande pour le carbone. A 5 keV (20keV), la profondeur est seulement de 0,17 μm (2.2 μm) pour le SiO_2 contrairement au carbone où 0,2 μm (2.5 μm) est enregistré. Cette variations et du à la différence des numéros atomiques.

L'explication, est que dans un MEB conventionnel, lorsqu'un faisceau d'électrons pénètre dans un échantillon, les électrons peuvent être dispersés de manière élastique ou inélastique. La diffusion élastique fait dévier le faisceau d'électrons de sa direction initiale, ce qui entraîne une diffusion des électrons à travers le matériau. Les trajectoires des électrons dans un matériau ayant un nombre atomique élevé tel que le SiO_2 , tendent à s'écarter plus rapidement de leur direction de déplacement initiale, la profondeur de pénétration étant réduite. Dans les matériaux à faible nombre atomique, comme le carbone, les trajectoires s'écartent légèrement de la trajectoire initiale et permettent une pénétration plus profonde. Ceci est généralement valable pour tous les matériaux ayant un faible nombre atomique, et a également des implications importantes pour l'échappement du signal d'électrons rétrodiffusés. La perte d'énergie due aux interactions inélastiques et la rétrodiffusion des électrons par des interactions élastiques sont les principaux facteurs qui déterminent la taille et la forme du volume d'interaction. En outre, une plus grande profondeur de pénétration et un volume d'interaction accru, conduiront à une résolution spatiale plus faible en raison de la propagation latérale des électrons primaires et émis.

En introduisant du gaz dans la chambre d'analyse, la diffusion du faisceau d'électrons incident peut affecter plus cette résolution, ainsi que l'émission des électrons rétrodiffusés. Dans les figures V.7 et V.8, nous ne présentons que la variation latérale des BSE, en fonction de la pression d'air et d'hélium, pour une énergie de 5 keV. Notons que la variation de la pression n'affecte pas la profondeur d'échappement des BSE a relativisé.

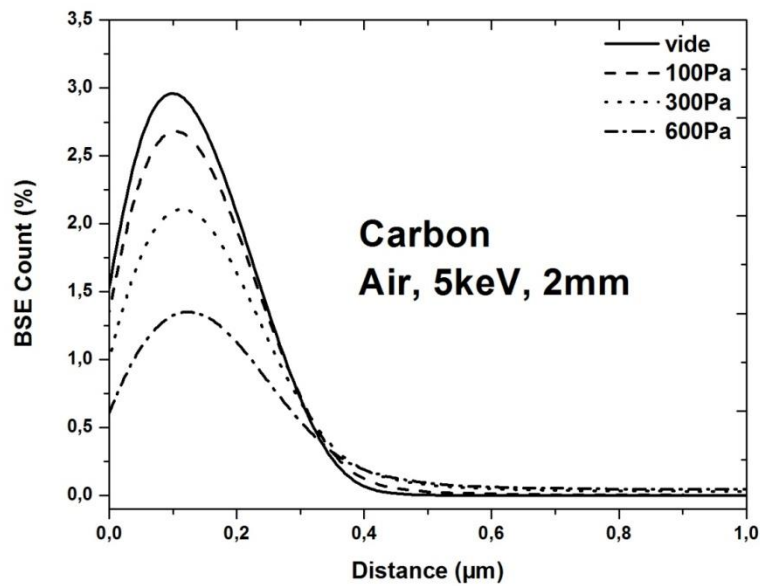


Figure V.7. Distribution latérale des BSE pour le Carbone à différentes pressions d'air, $E=5\text{keV}$

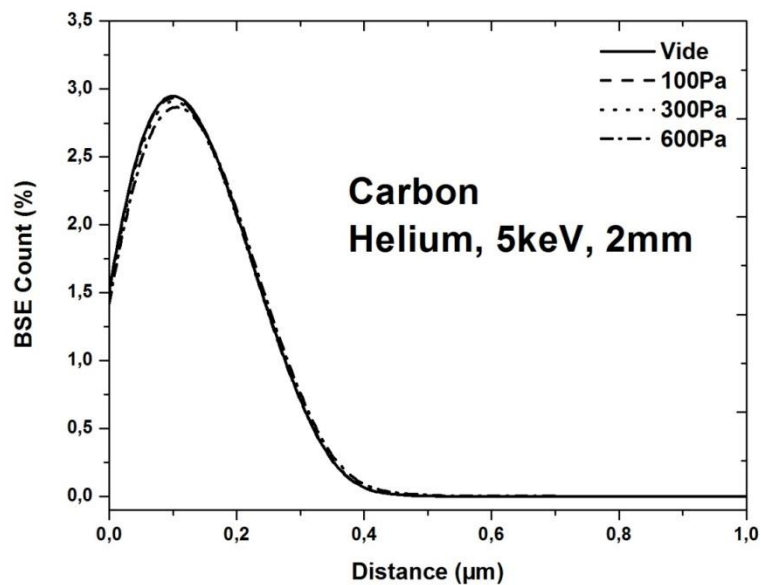


Figure V.8. Distribution latérale des BSE pour le Carbone à différentes pressions d'hélium, $E=5\text{keV}$

D'après la figure V.7, on remarque une grande réduction de l'amplitude du signal BSE près du point d'impact du faisceau d'électrons, et une large expansion latérale des BSE jusqu'à plusieurs micromètres (n'est pas montré dans la figure) lorsque la pression d'air augmente dans la chambre d'analyse. Comme indiqué précédemment, la diffusion du faisceau

d'électrons primaires entraîne une perte de l'intensité du courant utile. Généralement ceci fait diminuer le rapport signal/bruit, ce qui entraîne une perte en qualité des images et le contraste diminue, rendant plus difficile la distinction des éléments adjacents ayant des des numéros atomiques voisins.

Une façon d'améliorer la situation, surtout à basse tension, est de réduire la pression. Ceci n'est pas le cas pour l'hélium, pour lequel on voit clairement que les courbes se confondent même à grande pression. Ceci est confirmé par plusieurs travaux montrant qu'une amélioration substantielle du rapport signal/bruit (signal to noise ratio SNR) et de la qualité d'image peuvent être obtenues avec l'hélium en raison de la meilleure focalisation du faisceau d'électrons induit par une faible diffusion tandis que pour l'air, l'intervalle de pression est plutôt restrictif dans ces conditions, ceci ajoute une composante de bruit à l'image.

Dans la figure V.9 nous présentons les profils cumulés des BSE à l'interface C/SiO₂, en fonction de la pression d'air, H₂O et d'hélium, à faible tension de 5 keV et des pressions de 100 Pa et 800Pa. Notons que ces profils cumulés peuvent également être appliqués aux matériaux homogènes. Le programme développé permet de discriminer la coordonnée latérale x du point où l'électron rétrodiffusé a été produit. Une courbe peut donc être construite, laquelle permet de visualiser le profil cumulé des électrons rétrodiffusés autour du point d'impact du faisceau (à l'interface). Si le faisceau d'électrons est placé à une distance X d'un point test de l'interface, et quand X est très grand et négatif (dans le carbone), aucun BSE ne sera produit au point de test, mais le nombre augmentera lorsque X est réduit ou quand le skirt augmente, et atteindra un maximum lorsque $X = 0$, puis aucun BSE ne sera produit encore une fois quand X devient grand et positif (dans le SiO₂) et la courbe traduit une saturation.

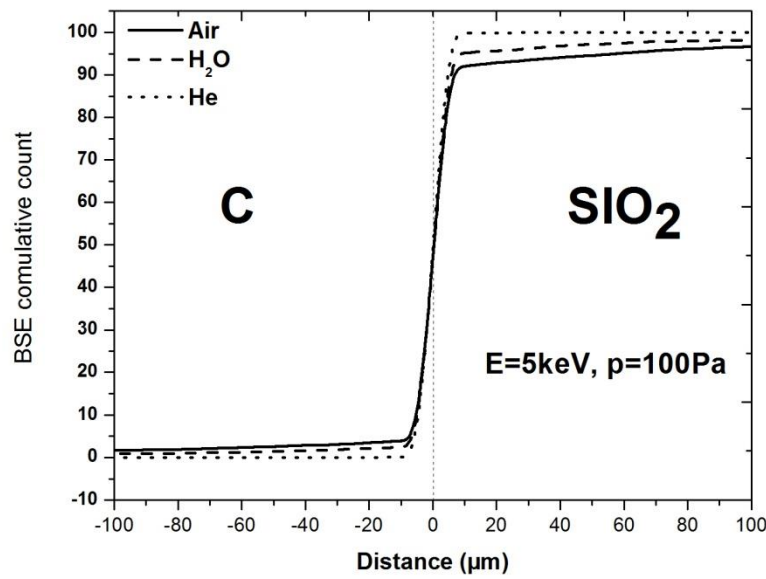


Figure V.9. Profil cumulé des BSE à l'interface C/SiO₂, pour les trois gaz, P=100Pa, E= 5 keV

Dans la figure V.10 (Air avec E = 5 keV et p = 800 Pa), le profil apparaît beaucoup plus étalé (au-delà de 600 μm) que celui observé sous basse pression de la figure V.9 (p=100 Pa). Ces résultats démontrent comment le skirt modifie la forme du profil et la résolution spatiale des BSE. Comme conséquence de l'élargissement du faisceau d'électrons, les BSE peuvent émerger à une distance significative du point d'impact du faisceau d'électrons.

La distance sur laquelle le profil augmente de la plus faible intensité ($I_{\min}$) à la plus haute intensité ($I_{\max}$) pourra présenter une mesure adéquate de la résolution latérale des BSE en fonction de l'énergie et du nombre atomique. Le degré de dégradation de la résolution spatiale des BSE peut être évalué en mesurant la distance inter-axiale du profil entre ($I_{\min}$) 12% et 88% ($I_{\max}$) [full-width at half-maximum (FWHM)]. En outre, le gaz avec un numéro atomique plus élevé comme l'air a le plus grand impact sur le profil comparé au gaz d'hélium avec numéro atomique faible. Avec un type de gaz donné et une énergie fixée, un changement majeur du profil est observé à pression élevée.

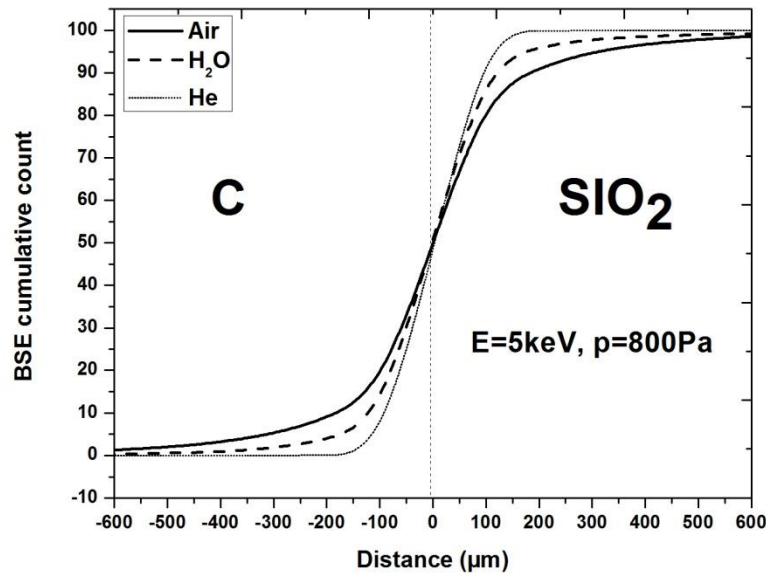


Figure V.10. Profil cumulé des BSE à l'interface C/SiO₂, pour les trois gaz,
P=800Pa, E= 5 keV

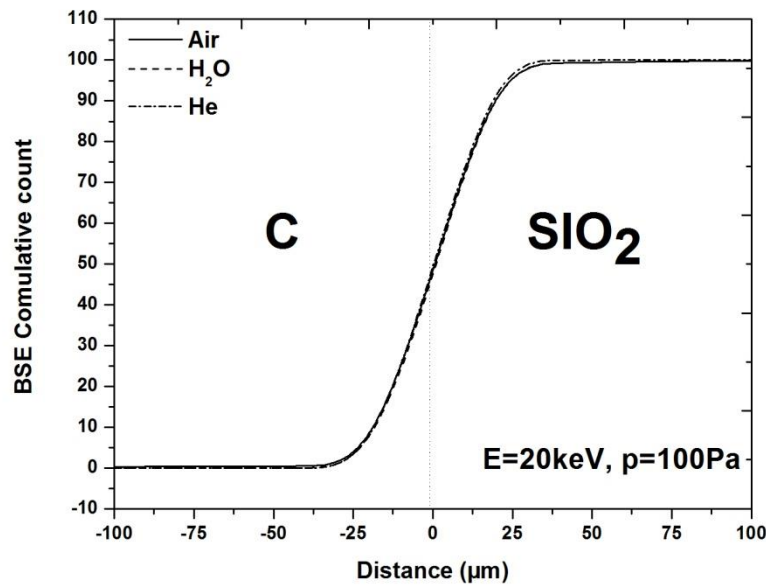


Figure V.11. Profil cumulé des BSE à l'interface C/SiO₂, pour les trois gaz,
P=100Pa, E= 20 keV

Nous avons vu précédemment que dans cette gamme d'énergie, le régime prédominant est la diffusion simple, ainsi la majorité des BSE émis sont issus juste près du point d'impact du faisceau d'électrons (poire d'interaction sous vide). En général, la combinaison des énergies

les plus élevées, des pressions les plus basses et des nombres atomiques des gaz les plus bas donne les profils proches de ceux sous vide. Les résultats ci-dessus, concernant les profils cumulés sont tous générés en sondant l'échantillon C/SiO₂ à l'interface.

Dans ce qui suit, nous présentons les résultats, en faisant un scan à la surface de l'échantillon, entre $-X$ et $+X$. Les figures (V.12, V.13, V.14) montrent la distribution latérale des électrons rétrodiffusés à différentes positions (-0.25 , 0 , $0.25\mu\text{m}$) par rapport à l'interface C/SiO₂. La ligne pointillée représente la distribution des électrons rétrodiffusés à l'interface sous une pression d'air de 100 Pa, en comparaison avec ceux du vide poussé.

Les simulations Monte Carlo effectuées pour les interfaces séparant les matériaux avec différents numéros atomiques Z sont utiles pour expliquer la variation du signal BSE.

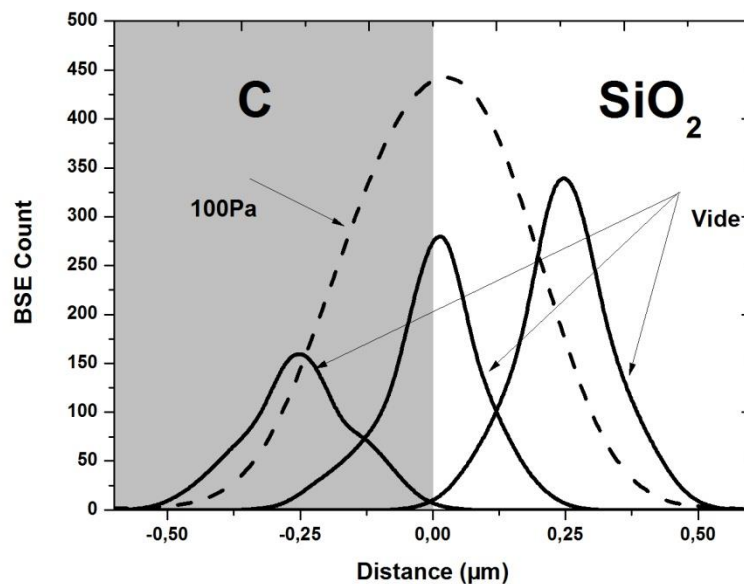


Figure V.12 . Distribution latérale des BSE à différentes positions (-0.25 , 0 , $0.25\mu\text{m}$) par rapport à l'interface de C/SiO₂, $E=5\text{keV}$

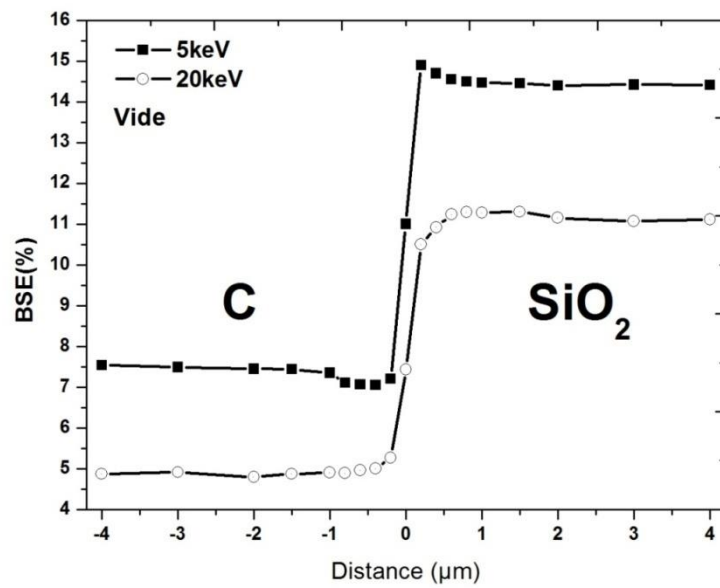


Figure V.13. Profil des BSE à différentes positions par rapport à l'interface C/SiO₂, dans le vide, en fonction de l'énergie

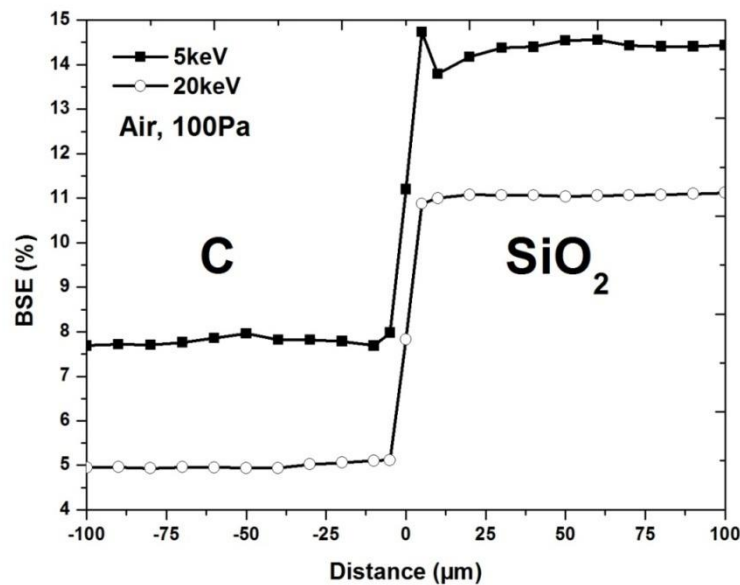


Figure V.14. Profil des BSE à différentes positions par rapport à l'interface C/SiO₂, sous pression d'air, en fonction de l'énergie

Premièrement nos résultats de simulations indiquent un bon accord qualitatif avec les prédictions expérimentales, en montrant l'existence d'une bosse et d'une fossette autour de l'interface [149], qui diminuent en largeur, en diminuant l'énergie. Cet effet entraîne une amélioration du contraste de composition près de la frontière des deux matériaux. Ce résultat

est en bon accord avec les travaux théoriques publiés, concernant le calcul du contraste du nombre atomique d'Al/Cu, Si/Cu et Al/Si Contact [150].

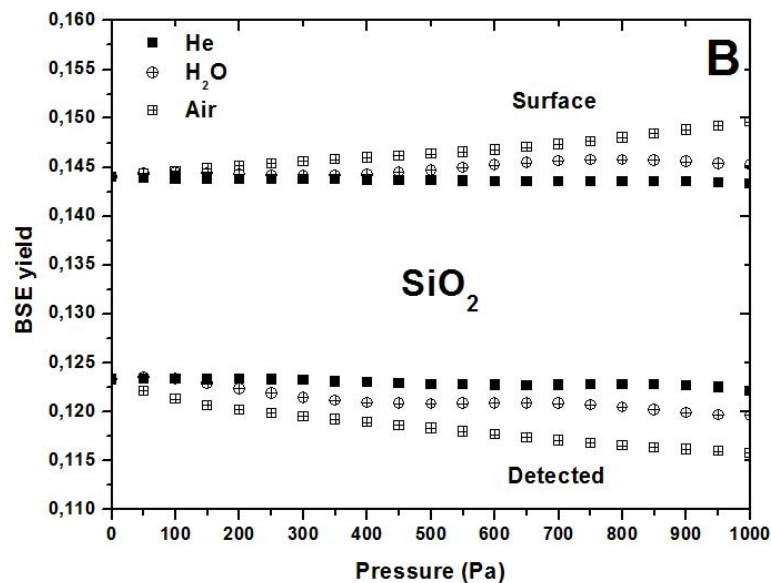
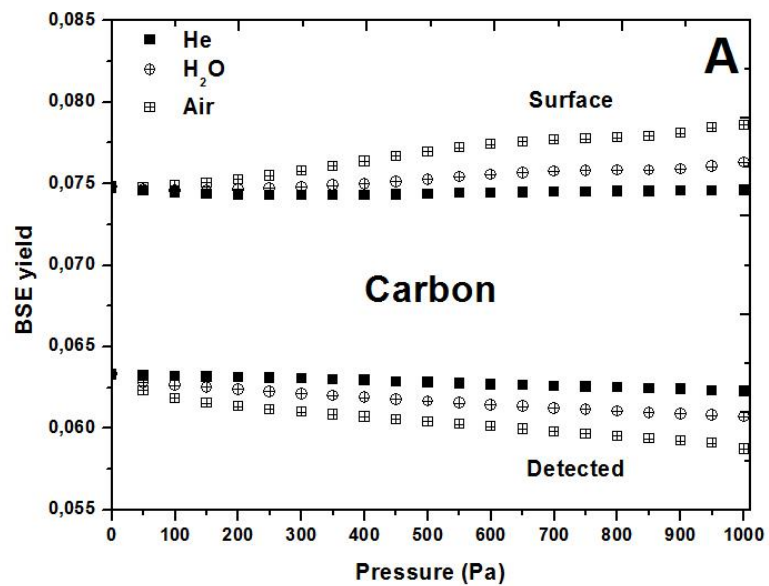
Lorsque le faisceau d'électrons sous vide bombarde le matériau de faible Z, le matériau avec le plus grand Z absorbe fortement une partie des électrons rétrodiffusés, et par conséquent, le signal BSE diminue. De manière analogue, lorsque le point d'impact se situe au niveau du matériau de grand Z, le matériau le plus léger permet à un plus grand nombre d'électrons rétrodiffusés de quitter l'interface en augmentant le signal. La figure V.13, représente un balayage du faisceau d'électrons de $-4\mu\text{m}$ à $4\mu\text{m}$ dans le vide. Les profils à 5keV (20keV), montrent que le signal BSE reste constant jusqu'à une distance de $1\mu\text{m}$ ($3\mu\text{m}$) de l'interface dans C et et au-delà de $0,8\mu\text{m}$ ($2\mu\text{m}$) dans le SiO_2 . À des distances plus proches de l'interface, le signal diminue du côté carbone et augmente pour le SiO_2 . Cette variation dans le signal BSE est due à la différence des propriétés physiques des deux matériaux (numéro atomique, densité) et les énergies utilisées entraînant des variations dans la poire d'interaction. À une pression d'air de 100 Pa et 5 keV (20 keV), le signal BSE reste constant jusqu'à une distance de $80\mu\text{m}$ ($40\mu\text{m}$) de l'interface dans C et de $60\mu\text{m}$ ($30\mu\text{m}$) dans SiO_2 (Fig. V14). Cette variation du profil des BSE, et surtout loin du point d'impact avec de la pression est essentiellement due au rayon de skirt qui s'étend jusqu'à $100\mu\text{m}$. (voir figure IV.3 Chapitre IV). Une étude plus détaillée de ce comportement en fonction des trois gaz, sera illustré dans la partie suivante.

II.2 Coefficient de rétrodiffusion (BSE)

Dans cette partie, nous avons concentré nos efforts sur la prédiction du comportement des électrons rétrodiffusés à faible tension de 5keV, qui est le cas le plus défavorable. Les coefficients de rétrodiffusion ont été calculés dans l'intervalle de pression [0-1000 Pa] pour le carbone, le SiO_2 et à l'interface du C/ SiO_2 à incidence normale (figure V.15). Le coefficient de rétrodiffusion (BSE ou η), également appelé taux des électrons rétrodiffusés est classiquement défini comme le rapport du nombre d'électrons rétrodiffusés hors de la surface de l'échantillon, avec une énergie supérieure à 50 eV, au nombre total d'électrons incidents. Dans le vide poussé, nos calculs du coefficient d'électrons rétrodiffusés par la simulation Monte Carlo révèle un bon accord avec les résultats expérimentaux de Bongeler et al. [145] avec une précision d'environ 2% pour le carbone. Notre résultat est cependant supérieur de 23% par rapport au résultat expérimental d'Assa'd et El Gomati [146] et 12% inférieur à celui de Bishop [121] et Hunger et K  chler [119]. A l'interface on note un taux de 10,9,

malheureusement, les résultats expérimentaux ou théoriques sont quasiment inexistants pour une éventuelle comparaison.

L'écart entre les mesures expérimentales peut être attribué au phénomène de contamination de la surface de l'échantillon de carbone [138]. En effet, il est bien connu que lorsqu'ils sont exposés aux conditions atmosphériques, la plupart des surfaces solides développent une couche naturelle de contamination, qui pourrait avoir plusieurs nanomètres d'épaisseur et se compose principalement d'oxygène, de carbone et de composés hydrogène [139, 140].



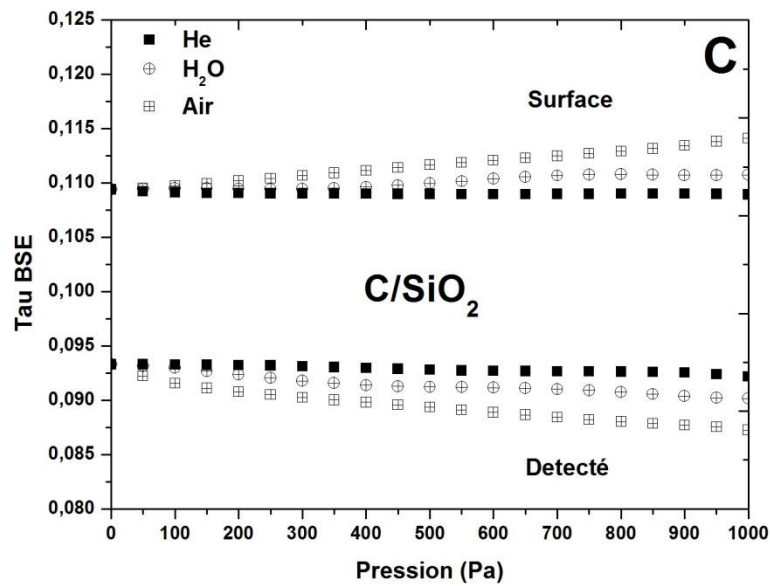


Figure V.15 . Variation des électrons rétrodiffusés en fonction de la pression pour les trois gaz. A : Carbone, B : SiO₂, C : C/SiO₂,

Comme on peut le voir dans le tableau 1, des divergences sont également constatées dans les résultats de la simulation MC dans des conditions du vide, en raison des différents modèles choisis par les auteurs concernant la section efficace élastique et le pouvoir d'arrêt qui constitue la base des programmes de simulation. Les écarts apparaissent clairement dans le cas du carbone à l'inverse du SiO₂ où les résultats sont rarement disponibles, comme l'illustrent El Gomati et al. [146] qui ont obtenus deux valeurs différentes du coefficient des électrons rétrodiffusés (BSE). Pour le SiO₂, un très bon accord (différence inférieure à 1%) a été trouvé en comparant nos calculs avec ceux de Dapor et Miotello [141] et Dapor 2006 [142].

C	SiO ₂
0.075 [Présent travail]	0.144 [Présent travail]
0.060 [145]	0.143 [141]
0.087 [146] 0.120 [146]	0.145 [142]
0.083 [147]	

Tableau V.1 Le taux BSE pour 5keV –vide C et SiO₂

À la surface de l'échantillon, et avec de l'hélium, le rendement des BSE conserve une valeur moyenne constante quel que soit la gamme de pression (0-1000 Pa), ce qui s'explique facilement par le fait que sous pression d'He, le faisceau d'électrons primaire n'est presque pas affecté. Lorsque la pression de vapeur d'eau ou d'air augmente, le coefficient BSE augmente. Cette augmentation est plus importante pour l'air que pour l'H₂O, ceci est dû à l'expansion latérale du faisceau incident formant le skirt (diffusion élastique).

Les électrons incidents qui appartiennent au skirt sont légèrement inclinés par rapport à l'axe Δ , donnant lieu à une situation similaire à celle où l'échantillon est légèrement incliné. Généralement, le coefficient de BSE augmente à une incidence oblique [143]. Ce fait semble expliquer l'augmentation du rendement des BSE avec l'augmentation de la pression qui est plus prononcé sous pression d'air que pour H₂O. À 1000 Pa, cette augmentation est d'environ 5% pour l'air-carbone (Figure V.15.A), 3.75 % pour l'air-SiO₂ (Figure. V.15.B). et de 4.2 % pour le C/SiO₂ (Figure. V.15.C).

Maintenant, il est intéressant de calculer l'angle d'inclinaison qui serait appliqué à la surface de l'échantillon sous vide, afin d'obtenir le même taux d'augmentation du rendement en BSE à 1000 Pa sous pression d'air.

Pour cela, nous avons utilisé l'équation empirique (V.1) [124] qui donne la variation du coefficient de rétrodiffusion (η) en fonction de l'angle d'inclinaison Φ et du numéro atomique Z ($\Phi = 0$ représente une incidence normale).

$$\eta(Z, \Phi) = (1 + \cos \Phi)^{-9/\sqrt{Z}} \quad (V.1)$$

En utilisant cette équation, et lorsque on augmente l'angle d'inclinaison à partir de 0, une augmentation de η de 5% pour le carbone ($Z = 6$) et de 4% pour SiO₂ ($Z = 10,2$), donne une valeur de $\Phi \approx 13^\circ$ pour les deux matériaux.

On s'attend à ce que cette valeur soit comparable à celle de l'angle correspondant au maximum de la distribution angulaire de l'intensité des électrons diffusés du faisceau primaire. Une évaluation approximative mais plus pratique peut être effectuée en considérant l'angle d'inclinaison maximum du faisceau primaire, qui délimite la surface de skirt. Cet angle est simplement calculé, dans le plan de la figure IV.1 (Chapitre IV), par $\arctan(R_{0,9}/GPL)$.

Pour l'air, à 1000 Pa, $R_{0,9}$ d'environ 0,5 mm. Avec un GPL de 2 mm, on trouve une inclinaison d'environ 14° , ce qui est plutôt proche de la valeur de 13° obtenue pour l'angle d'inclinaison à partir de l'équation V.1. Toutefois, il convient de noter que cette quantification de l'effet de l'élargissement du faisceau primaire n'est qu'approximative. En effet, l'Eq. (V.1) peut ne pas être très précise pour les faibles énergies (5keV utilisée dans nos calculs MC), car

cette valeur est la limite inférieure de son domaine de validité. Néanmoins, ce résultat a au moins le mérite d'illustrer des effets similaires sur les BSE lorsque la pression est augmentée dans un environnement gazeux, donnant lieu à une plus grande diffusion du faisceau primaire et lorsque l'échantillon est incliné dans des conditions de vide poussé.

Par rapport au rendement à la surface de l'échantillon, le signal de BSE détecté est inférieur approximativement de 15% dans le vide pour le carbone ou le SiO₂. Cette baisse attendue dans le vide est simplement due à la taille limitée du détecteur (rayon Rd= 5 mm) résultant en un angle solide de détection (qui s'appuie sur le périmètre externe du détecteur) limité. Sur la figure IV.1 (Chapitre IV), cet angle solide est représenté par l'angle plan θ_m . Une augmentation du rayon de détecteur à 10 mm augmentera considérablement le rendement des BSE à 13% (figure V.16), ce qui donne une perte du signal de 2%. Cependant cette augmentation du rayon favorise les BSE des régions étendues (skirt) d'atteindre le détecteur en maximisant leur angle critique d'acceptation.

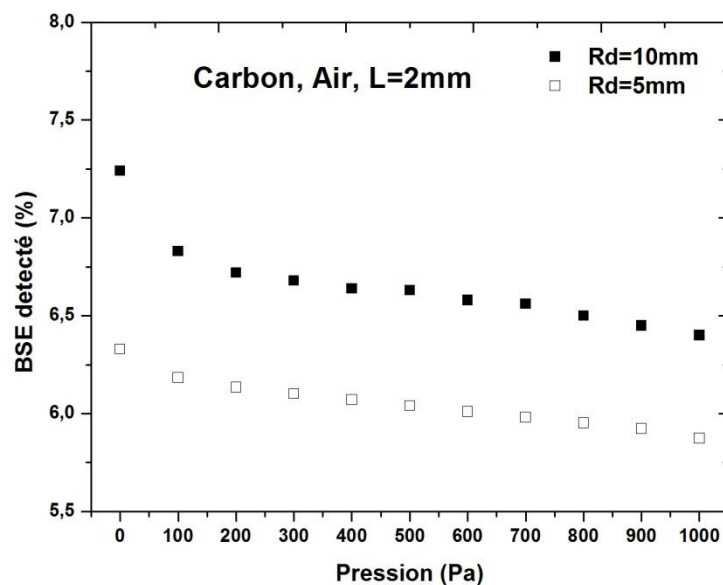


Figure V.16. Variation des BSE détectées pour le carbone en fonction de la pression d'air à 5keV en fonction du rayon de détecteur

Il convient de noter que les BSE dits ici « détectés » sont en fait des électrons qui ne font qu'atteindre le détecteur et qui sont donc potentiellement détectés, puisque la détection effective dépend de la sensibilité du détecteur et de l'énergie des électrons rétrodiffusés. Sauf pour He, lorsque la pression augmente, le signal de BSE détecté diminue, surtout lorsque l'air est utilisé, comme illustré dans la figure V.16. La figure V.17 représente la distribution des

BSE détectés sur le plan contenant le détecteur, pour les deux matériaux, SiO₂ et le carbone. Les paramètres d'imagerie sont choisis pour être dans des conditions défavorables (air gazeux à 500 Pa). Les BSE détectés s'étendent sur plusieurs millimètres, avec un maximum dans les premiers 5 mm, ce qui a guidé notre choix de la taille du détecteur de 5 mm. De plus, ce choix peut empêcher les BSE des régions étendues (skirt) d'atteindre le détecteur en limitant leur angle critique d'acceptation.

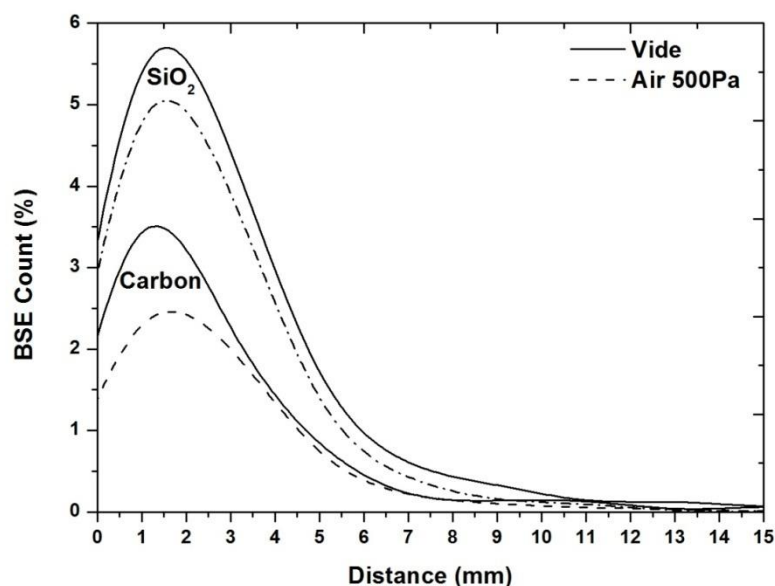


Figure V.17. Distribution des BSE détectés du carbone et de SiO₂ dans le vide et à une pression d'air de 500 Pa

Le tableau V.2 montre l'écart entre les valeurs de rendement des BSE à différentes pressions d'air, pour le carbone et le SiO₂. À 1000 Pa, la baisse est d'environ 25% pour l'air-carbone et de 23% pour l'air-SiO₂. Le rendement à l'interface C/SiO₂ suit presque le même comportement du SiO₂. Si l'hélium ou la vapeur d'eau sont utilisés, on peut prévoir que la baisse du rendement des BSE sera plus légère.

Pression (Pa)	Perte produit (%)		Perte nette détectée (%)	
	C	SiO ₂	C	SiO ₂
Vacuum	15.4	14.4		
50	16.7	15.3	1.3	0.9
100	17.4	16.1	2.0	1.7
150	18.0	16.7	2.6	2.3
200	18.5	17.2	3.1	2.8
500	21.5	19.2	6.1	4.8
1000	25.3	22.6	9.9	8.2

Tableau V.2 Ecart entre le rendement des BSE produit à la surface de l'échantillon et détecté pour différentes pressions d'air à 5 keV. La perte nette n'est due qu'à l'effet de gaz.

Compte tenu de la perte de 15% due à limitation de l'angle de détection, la diminution nette résultant de la diffusion du faisceau primaire par le gaz est d'environ 10% pour l'air-carbone, de 8% pour l'air-SiO₂ et de 8.7% à l'interface C/SiO₂. Cette diminution des BSE détectés provient, elle aussi, de l'élargissement du faisceau d'électrons primaire. En effet, ces électrons rétrodiffusés créés par le skirt sont caractérisés par un grand angle solide d'émergence et sont par ailleurs susceptibles d'être inélastiquement et élastiquement dispersés par les molécules du gaz et par conséquent la plupart d'entre eux n'atteignent pas le détecteur. Ainsi, en présence de gaz, en plus des effets géométriques, l'interaction BSE-gaz est responsable de la perte du rendement des BSE détectés. On s'attend à ce que, pour les grandes pressions, le SNR (signal sur bruit) soit limité. Ce résultat est en accord avec le travail d'Oho et al. [135] et Neděla et al. [144], où les signaux BSE détectés baissent rapidement avec l'augmentation de la pression de l'air et de la vapeur d'eau respectivement. Pour l'hélium, le rayon de skirt reste très faible et les BSE sont principalement régis par la fraction non diffusée du faisceau primaire comme le montrera paragraphe suivant.

II.3 Profil des BSE

Dans cette partie, on présente, les distributions d'intensités radiales relatives des électrons rétrodiffusés de 5% à 100% à la surface d'échantillon pour le carbone et le SiO₂ à différentes pressions d'air, H₂O et d'hélium, et deux énergies 5keV et 20keV (figures V.18 à V.21). La distance correspondante à 5% est prise comme rayon (R_{BSE}) de la zone de sortie (centrée au point I, fig. IV.1 chapitre IV) des électrons rétrodiffusés. Nous pourrions choisir de prendre une échelle de 0% à 100% pour l'intensité des BSE, mais il ressort des calculs Monte Carlo répétés que, en raison de la nature statistique des processus de diffusion, pour prendre en compte les 5% restants, nous devrions repousser excessivement la frontière de la région de sortie des BSE, incluant des espaces vides où très peu de BSE sont enregistrées, ce qui élargirait de manière excessive et inutile le rayon R_{BSE} .

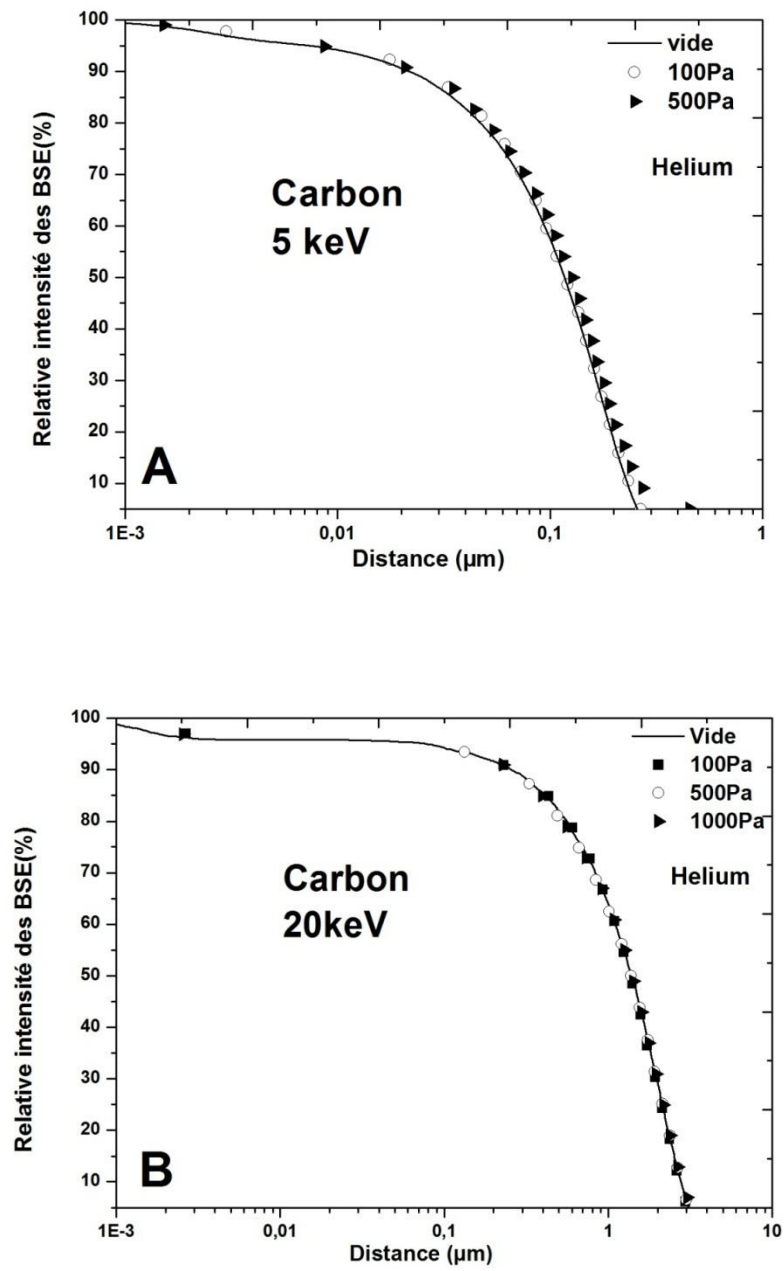


Figure V.18. Intensité relative des BSE pour le carbone en fonction de la pression d'hélium à : (A): 5keV, (B): 20keV

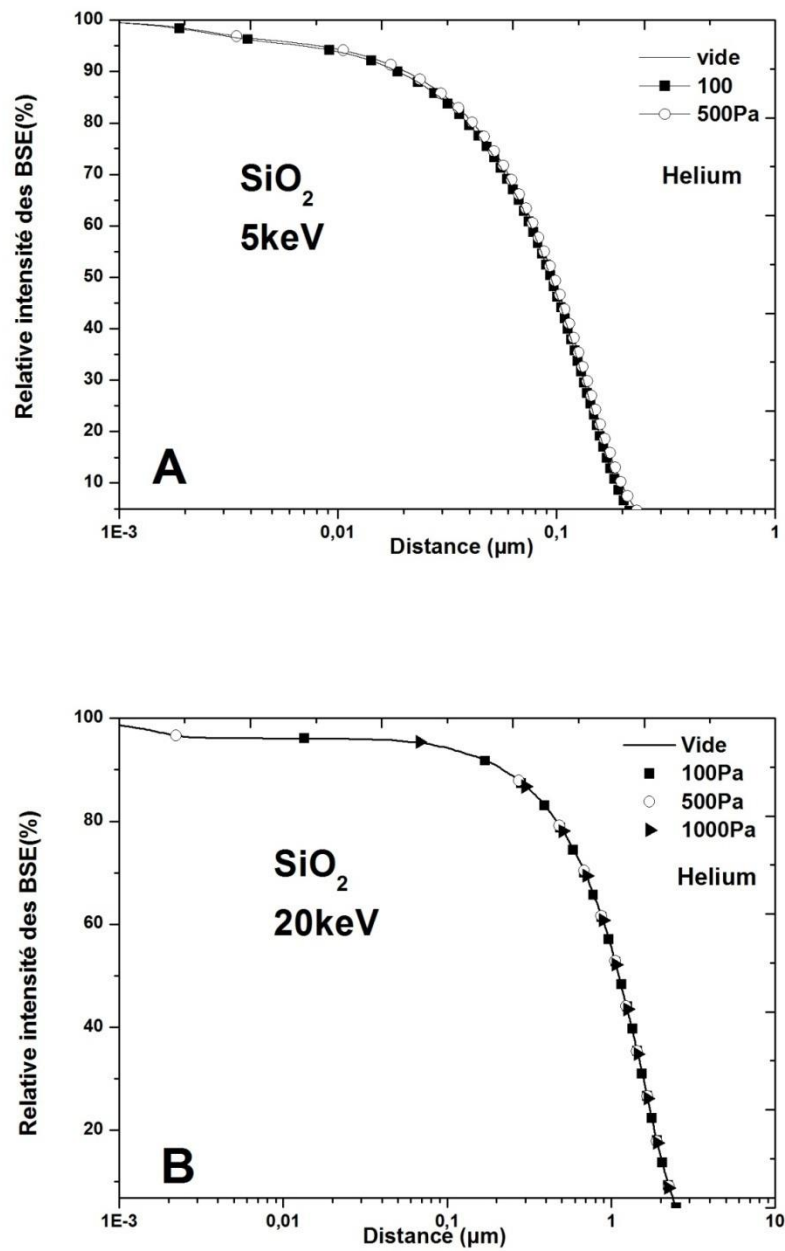


Figure V.19. Intensité relative des BSE pour le SiO_2 en fonction de la pression d'hélium à :
(A): 5keV, (B): 20keV

Comme on peut le constater sur les figures (V.18, V.19), il n'y a pas de différence significative dans les profils d'intensité pour le cas de l'hélium- SiO_2 , où 95% des BSE se situent dans la région intérieure à $0,3 \mu\text{m}$ à 5keV et $3 \mu\text{m}$ à 20keV, même pour des pressions allant jusqu'à 1000 Pa. Le même comportement est constaté pour l'hélium-carbone, sauf qu'à 1000Pa et 5keV, la région s'étale à $0.5 \mu\text{m}$. Sous vide, nos calculs ont révélés que 95% des

BSE se situent dans un rayon d'environ $0,3 \mu\text{m}$ à 5keV et $3\mu\text{m}$ à 20keV . Du à sa faible section efficace, entraînant une faible probabilité de collision avec les électrons (diffusion simple), l'hélium, est susceptible d'entraîner une perte mineure du SNR et une bonne image en mode BSE est attendue, similaire à celle dans le vide, en accord avec les résultats expérimentaux de Khouchaf et al. [136].

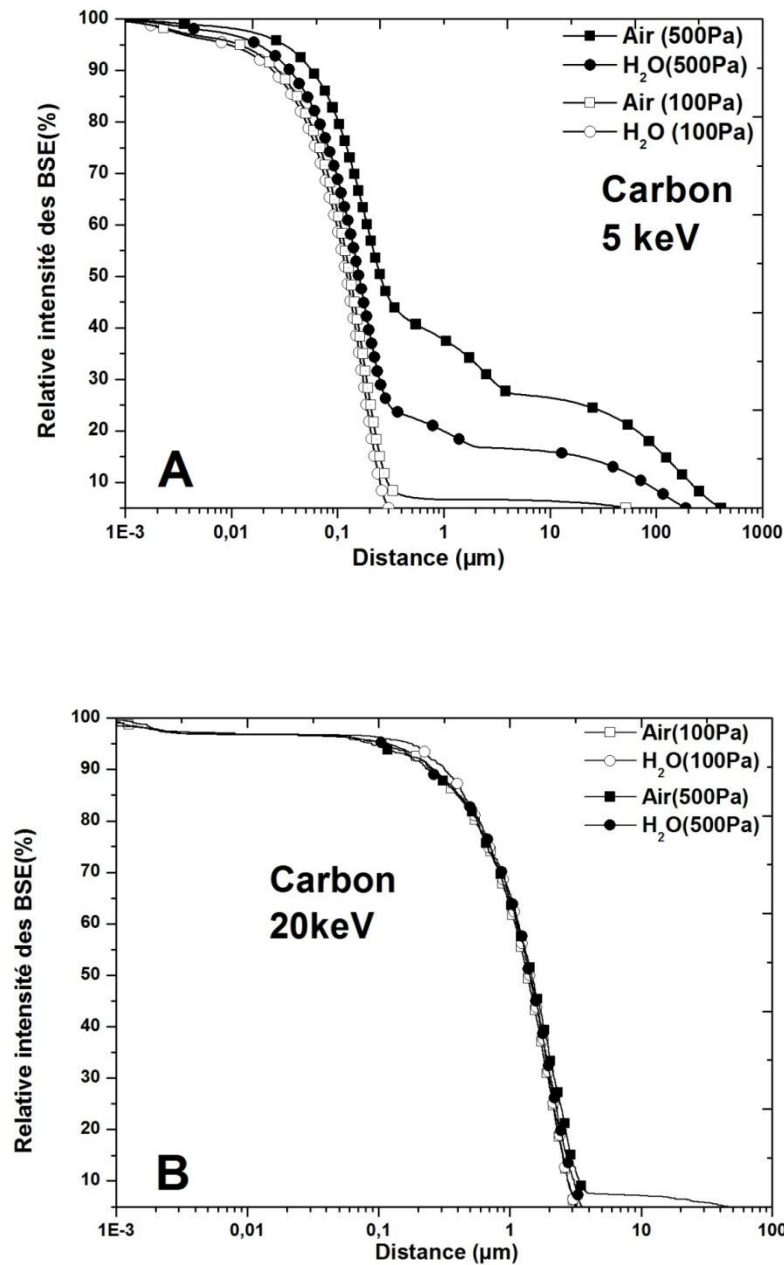


Figure V.20. Intensité relative des BSE pour le carbone en fonction de la pression d'air et d' H_2O à : (A): 5keV , (B): 20keV

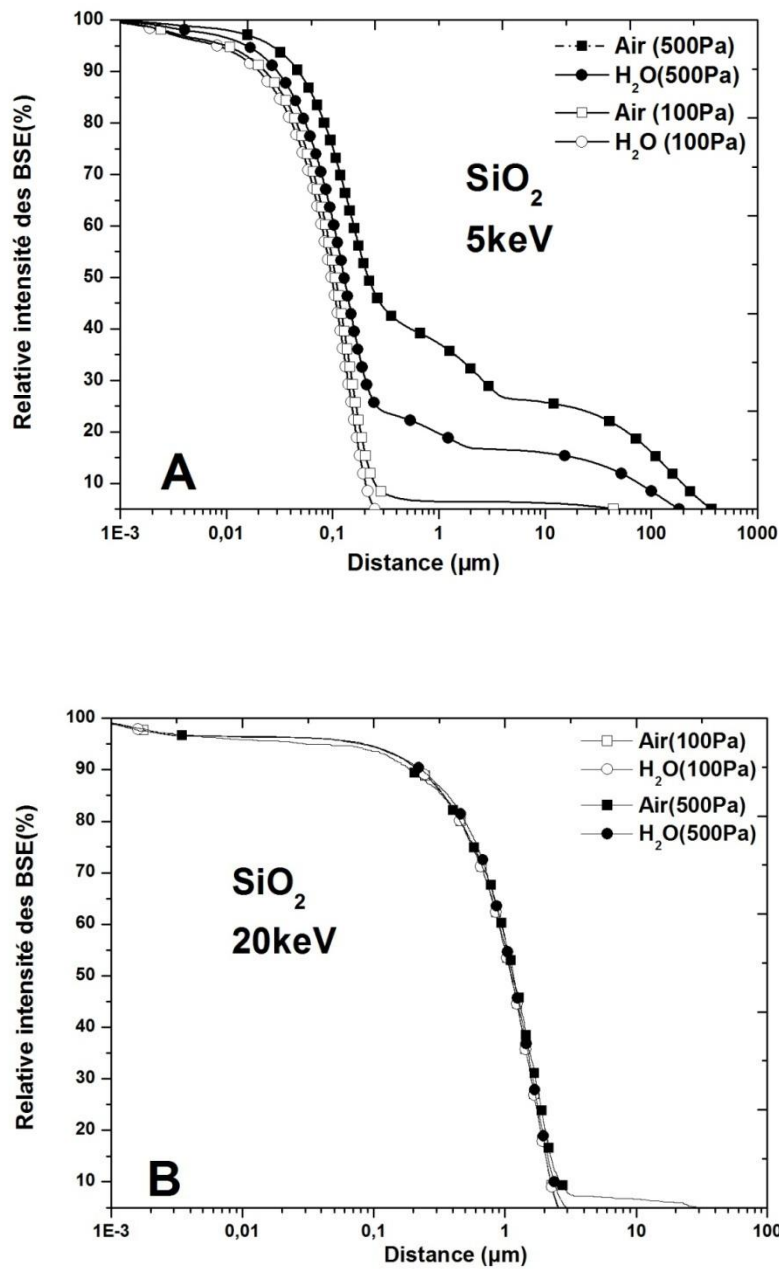


Figure V.21. Intensité relative des BSE pour le SiO₂ en fonction de la pression d'air et d'H₂O à : (A): 5keV, (B): 20keV

Sous pression d'air et de la vapeur d'eau et surtout à faible tension de 5keV (Figures V.20, V.21), la forme des courbes est composée de deux zones correspondant aux BSE due à la fraction non diffusée et diffusée du faisceau incident primaire respectivement. La première zone est d'environ 0,3 à 0,4 μm , au-dessus de laquelle la deuxième zone est étalée avec deux régions internes et externes distinctes qui apparaissent avec une pression croissante. Ces deux

régions sont parfaitement corrélées avec les régions intérieures et extérieures du faisceau primaire diffusé représenté sur les figures (V.20.A V.21.A), ce qui indique clairement que les BSE dans ces deux régions sont dues à la partie élastique et inélastique des électrons primaires diffusés. La contribution des BSE à la région externe augmente avec l'augmentation de la pression. On note qu'à 5keV et 100 Pa, la deuxième zone n'apparaît pas avec de la vapeur d'eau, alors que pour l'air elle s'étend jusqu'à 40 μm . À 500 Pa, l'effet des électrons diffusés dans les gaz est nettement plus marqué surtout avec de l'air où le profil s'étend jusqu'à quelques centaines de micromètres. La vapeur d'eau semble clairement induire une dégradation mineure de la résolution par rapport à l'air. La différence remarquée dans les profils d'intensité par rapport à la pression entre l'air et la vapeur d'eau est causée principalement par le régime de diffusion où les collisions élastiques sont plus susceptibles de se produire sous pression d'air. A 20keV les profils se confondent et se concentrent dans une région inférieure à 4 μm , un comportement proche de celui du vide, à l'exception de l'air à 500Pa où la région externe s'étend jusqu'à 45 μm pour le carbone et 30 μm pour le SiO_2 .

II.4 Rayon de sortie des BSE (R_{bse}) en fonction du skirt

Les figures (V.22,V.23) montrent le rayon de skirt $R_{0.9}$ du faisceau d'électrons primaire (qui contient 90% des électrons de skirt à la surface de l'échantillon) et le rayon de sortie des BSE (R_{BSE}) qui contient 95% des électrons rétrodiffusés sorties au niveau de la surface d'échantillon carbone et SiO_2 , en fonction de la pression. Comme déjà vu dans la section ci-dessus, le R_{BSE} contenant 95% des BSE est plus fiable que la valeur maximale (100%) en raison des mauvaises statistiques associées au nombre d'électrons émergeant très loin du point d'impact, ce qui conduit à une grande incertitude dans l'estimation du point où la courbe des figures (V.20.A,V.21) traverse réellement l'axe des abscisses, surtout sous haute pression. Dans les figures (V.22, V.23), $R_{0.9}$ et R_{BSE} n'ont été rapportés que pour l'air et la vapeur d'eau. Comme prévu, nos résultats pour l'hélium, non représentés sur cette figure, indiquent que le R_{BSE} ainsi que le rayon de skirt restent presque indépendants de la pression pour les deux matériaux.

Pour un gaz donné et une pression relativement élevée et fixe, le R_{BSE} est plus grand avec le carbone qu'avec le SiO_2 car ce dernier a une densité plus élevée. Par exemple, à 200 Pa et 5keV, sous pression d'air (vapeur d'eau), le R_{BSE} est de 180 μm (57 μm) pour le carbone et de 163 μm (50 μm) pour le SiO_2 . Cette différence pour les deux matériaux, due à la différence de densité, est plus prononcée avec de l'air qu'avec la vapeur d'eau. Par conséquent, dans les conditions du VPSEM, la meilleure image obtenue dépend également du matériau irradié et

qui est meilleure avec les matériaux de haute densité. Dans le vide, la résolution latérale du signal BSE est limitée par le volume d'interaction dans la cible.

Afin d'étudier l'effet du gaz sur cette résolution, nous avons fait une comparaison entre le $R_{0.9}$ et le R_{BSE} en fonction de la pression. Il est intéressant de noter que dans tous les cas, les résultats montrent l'existence de deux régions distinctes. La première région est celle où la courbe de $R_{0.9}$ est supérieure à celle de R_{BSE} . La deuxième région correspond aux conditions où $R_{0.9}$ est inférieur à R_{BSE} .

A 5keV, le régime le plus intéressant est évidemment à basse pression (première région). Dans ce cas, la résolution des BSE est principalement affectée par le faisceau d'électrons non diffusé, en particulier à des pressions inférieures à 50 Pa pour l'air et à 100 Pa pour la vapeur d'eau. Lorsque la pression est augmentée, R_{BSE} , devient progressivement gouverné par le skirt et augmente (avec le volume de génération) plus rapidement que $R_{0.9}$ à partir d'une pression maximale P_M où $R_{BSE} = R_{0.9}$, qui correspond au volume de génération maximum acceptable avant le début de la dégradation de la résolution qui se produit pour $R_{BSE} > R_{0.9}$. Pour le carbone qui représente le pire des deux cas, la pression maximale d'opération P_M est de 190 Pa sous pression d'air et 340 Pa sous la vapeur d'eau. Il convient de noter que, même dans la première région où la résolution latérale est peu affectée par le skirt, il subsiste encore une perte du coefficient de BSE. Cette perte est cependant très faible, par exemple pour air-carbone, à une pression de 100 Pa qui est inférieure à P_M (190 Pa), la perte nette du coefficient de BSE est seulement d'environ 2% (tableau V.2). Comme on peut le voir sur les figures (V.22, V.23), le P_M est légèrement plus élevé avec du SiO_2 qu'avec le carbone, en raison de sa densité élevée. Pour le gaz d'hélium, et à faible tension 5keV, nos calculs ont montré que la condition de fonctionnement appropriée $R_{BSE} \leq R_{0.9}$ reste remplie même à des pressions allant jusqu'à 1000 Pa. Ceci est dû au rôle principal de l'hélium en tant que meilleur gaz pour l'imagerie dans un VP-SEM. Pour 20keV (Figure V.24) sous pression d'air, le domaine de pression où le $R_{BSE} < R_{0.9}$ est plus étalé, allant jusqu'à 720Pa pour le carbone et 850Pa pour le SiO_2 . Avec de la vapeur d'eau (Figure V.25) un prolongement de pression atteignant 930Pa pour le carbone, et plus de 1000Pa pour le SiO_2 . Comme déjà mentionné ci-dessus, le régime le plus intéressant est évidemment à basse pression. Dans ce cas, la résolution des BSE est principalement affectée par la fraction d'électrons non diffusée, en particulier à des pressions inférieures à 300 Pa pour l'air et à 250 Pa pour la vapeur d'eau.

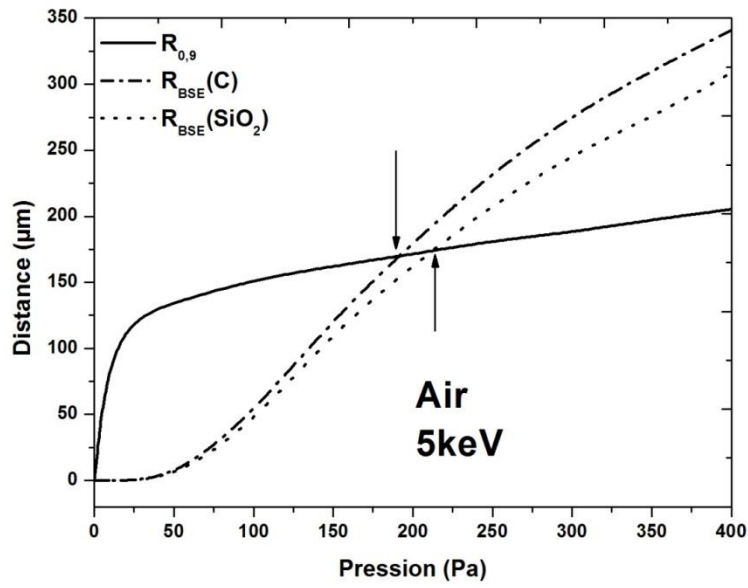


Figure V.22. R_{bse} vs skirt en fonction de la pression d'air à 5keV

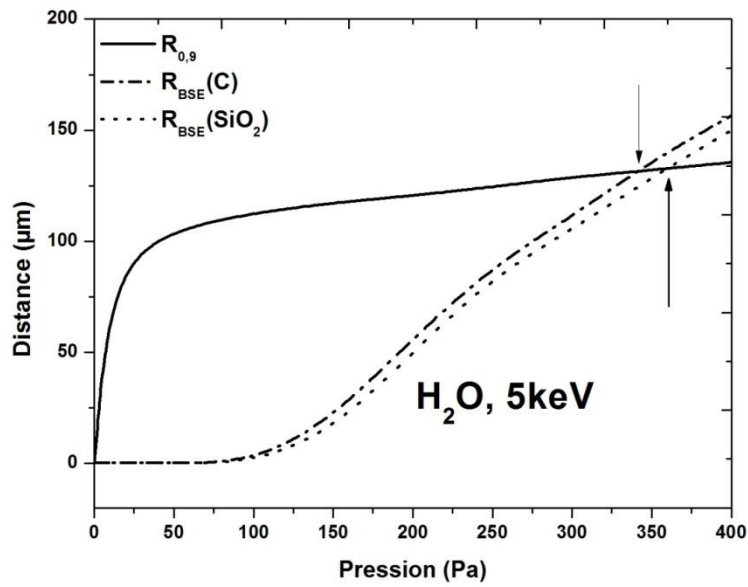


Figure V.23. R_{bse} vs skirt en fonction de la pression de vapeur d'eau à 5keV

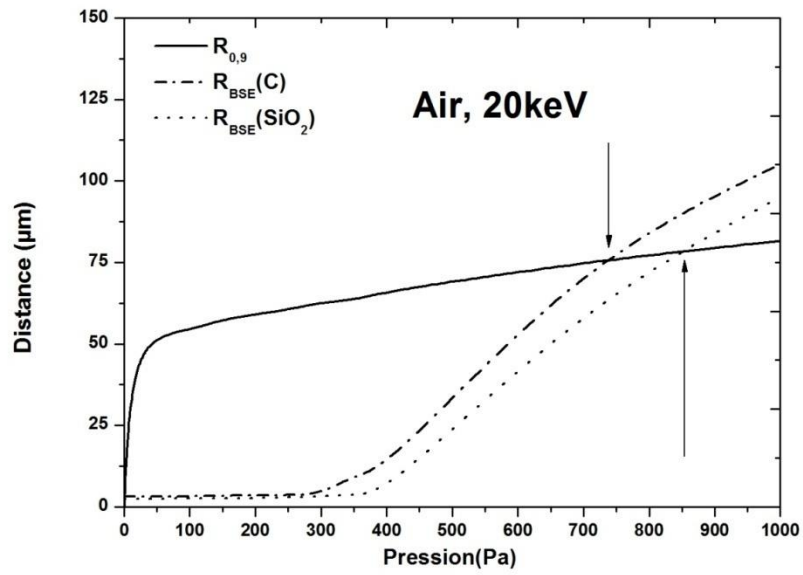


Figure V.24. R_{bse} vs skirt en fonction de la pression d'air à 20keV

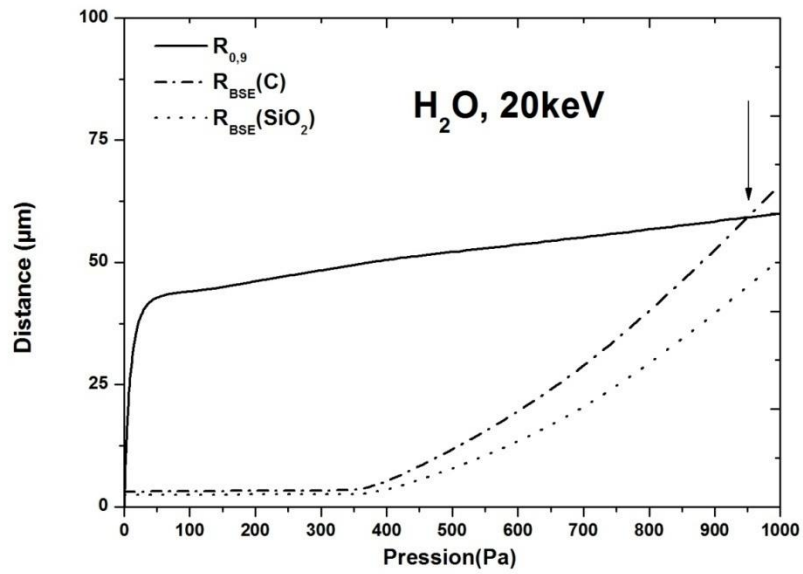


Figure V.25. R_{bse} vs skirt en fonction de la pression de vapeur d'eau à 20keV

III. DISTRIBUTIONS ENERGETIQUES ET ANGULAIRES DES BSE

Comme pour le coefficient BSE (η) et les distributions spatiales, notre programme peut être également utilisé pour prédire les énergies et les angles de sortie des électrons rétrodiffusés. Essentiellement, la procédure que nous avons suivi était de modéliser 10^6 électrons à 5 et 20 keV pour chaque cible. Nous avons ensuite examiné la trajectoire de chaque électron rétrodiffusé, calculé son énergie, et son angle entre cette trajectoire et la normale à surface. Ensuite, nous avons mis en place des intervalles de comptage correspondant à 100 divisions égales de l'intervalle $[0, 1]$ (où 0 à 1 est la gamme des valeurs possibles, de l'énergie réduite ($W=E_{bse}/E_0$)). Enfin, pour chaque électron rétrodiffusé, nous avons simplement incrémenté le comptage dans chaque intervalle correspondant à la valeur W . A ce stade, on traçant le nombre d'électrons dans l'intervalle correspondant à $0,01 < W < 0,1$ à la coordonnée $x \times 0,1$, et ainsi de suite, donnerait une courbe représentant BSE vs W . Cependant, nous avons besoin d'un graphique de la distribution d'énergie $d\eta/dE$ vs W pour la comparaison avec l'expérience. Pour obtenir une telle courbe, nous avons utilisé une différenciation numérique.

Les principales caractéristiques concernant la distribution d'énergie, sont la stabilité relative de sa forme, la prédominance d'électrons ayant subi des pertes d'énergie appréciables, l'absence d'un large groupe d'électrons ayant subi des diffusions élastiques, et l'augmentation lente de l'énergie moyenne avec l'augmentation du nombre atomique. Pour la distribution angulaire des BSE $d\eta/d\theta$, on suivra la même procédure décrite ci-dessus.

III .1 Distribution énergétique

Maintenant, afin de valider notre modèle de simulation concernant les distributions énergétiques des BSE, nous nous proposons dans ce paragraphe, de confronter nos résultats à ceux de la littérature, qu'ils soient théoriques ou expérimentaux. Malheureusement, les données sur le carbone, ne sont disponibles dans la littérature que pour les grandes énergies, plus rarement pour des énergies à 5keV. Pour le SiO_2 les résultats sont quasi inexistantes, sauf à 0.5keV par Dapor [148]. Pour ce faire, nous avons choisi l'Aluminium ou les résultats sont abondants, et qui permettent cette comparaison.

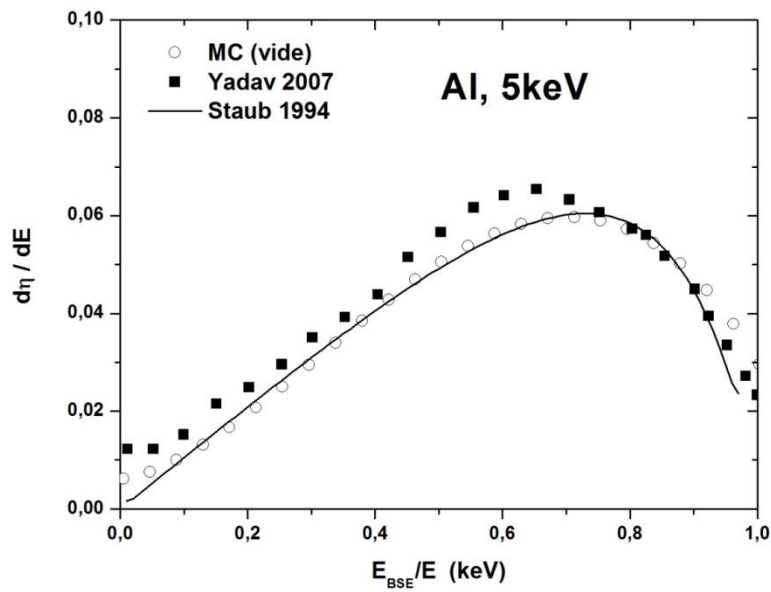


Figure V.26. Distributions énergétiques des BSE pour l'aluminium 5keV sous vide

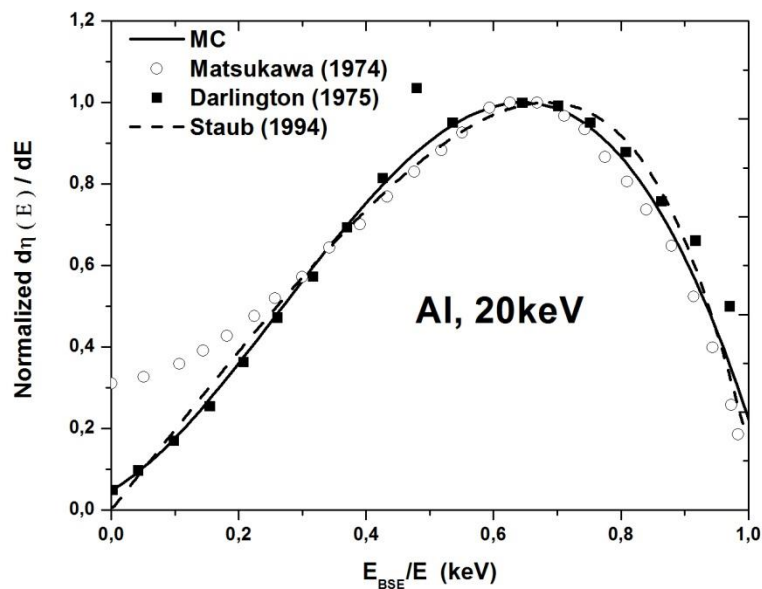


Figure V.27. Distributions énergétiques normalisées des BSE pour l'aluminium à 20keV sous vide

Les figures V.26, V.27 représentent une comparaison entre nos résultats de simulation (MC) et les résultats expérimentaux de Matsukawa [151] et Darlington [152] à 20keV, qui sont normalisés, et de Yadav [153] pour l'Aluminium à 5keV. On note que pour Staub [154] les courbes représentent sa formule théorique (voir ci-dessous).

Dans ces spectres provenant de différentes expériences, on constate qu'il y a une légère variation d'énergie qui pourrait être due aux incertitudes d'étalonnage des expériences [155]. Il y a de grandes variations parmi différents expériences dans les parties inférieures des spectres. Ces différences sont principalement dues à la résolution du détecteur dans cette gamme d'énergie [156]. Compte tenu des variations entre les expériences, on peut dire que les spectres générés par notre programme sont bien dans la moyenne des mesures expérimentales. Nous avons comparé nos résultats avec le modèle théorique de Staub [154], qui prédit les distributions énergétiques des électrons rétrodiffusés. L'énergie des spectres d'électrons rétrodiffusés pour un angle d'incidence nul dans ce modèle est donné par :

$$g(E_B/E_0) = - \frac{\partial \eta(E_B/E_0)}{\partial E_B} \quad (V.2)$$

$$\eta(W) = S \cdot \exp\left[-\left(\frac{K}{1-\gamma(E_B/E_0)^\alpha}\right)^p\right] \quad (V.3)$$

où $W=E_B/E$; S , K , p , γ , α sont des paramètres indépendantes ; $K=70|\ln B|^4$; $p=0.27$; $\gamma=1-\exp(-6|\ln B|^{-3/2})$; $\alpha=2.0$ et S est la fonction normalisée donnée par :

$$S=B_0 \exp[-(k)^p] \quad (V.4)$$

$$B_0=\beta\{1 - \exp[(-6.6 \times 10^{-3}) \times \beta^{-5/2}Z]\} \quad (V.5)$$

où B_0 est le coefficient d'électrons rétrodiffusé à incidence normal ;

$$\beta=0.40+0.065\ln E_0 \quad (V.6)$$

Cependant, il est noté que la théorie sous-estime les données dans la région correspondant à $W \leq 0,1$ (Fig.V.27). Ceci est peut être dû au fait que dans cette région, la plupart des électrons détectés sont un mélange des électrons secondaires réels de faible énergie ($E \leq 50$ eV) et des électrons rétrodiffusés ayant des énergies ≤ 1000 eV. Les électrons secondaires sont généralement produits par le faisceau d'électrons primaire ainsi que par les électrons rétrodiffusés. Cette divergence peut être aussi expliquée en considérant le fait que certains des électrons rétrodiffusés peuvent obtenir une énergie cinétique supérieure sous l'influence de la force d'espace-charge créée dans les collisions. Dans la figure V.26, la théorie surestime aussi les données expérimentales dans la région du pic entre 0,7 et 0,9; cela est dû à la faible diffusion élastique des électrons d'incidence dans les cibles de faible numéro atomique.

On remarque également que les spectres d'énergie ($d\eta/dE$) pour Al, C et SiO₂ dépendent de la cible Z , en particulier les éléments à haut Z ont une distribution atteignant un pic proche de 1 par rapport aux éléments à faible Z qui présentent des pics à des valeurs inférieures. Cette tendance peut être expliquée qualitativement en notant le fait que les éléments à Z élevé avec

une grande probabilité de diffusion élastique peuvent produire plus d'électrons rétrodiffusés ayant des énergies proches de l'énergie incidente.

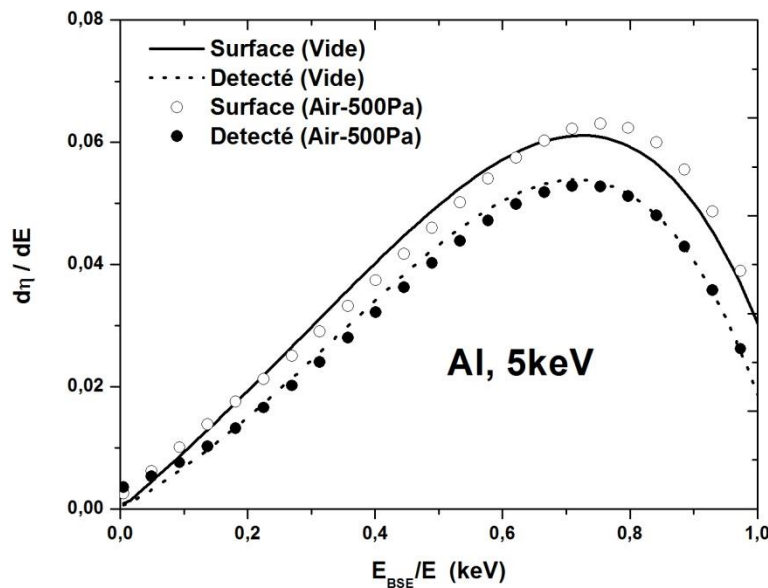


Figure V.28. Les distributions énergétiques des BSE à la surface et détectés pour l'aluminium 5keV sous Vide et sous pression d'air $P=500Pa$

La figure (V.28) montre la différence entre le spectre des électrons issus de la surface et ceux détectés, sous vide et sous pression d'air à 500Pa, pour un rayon de détecteur de 5mm.

Plus loin, nous n'allons nous concentrer que sur les énergies des électrons issus du carbone et SiO_2 et atteignant le détecteur.

Les distributions d'énergies tracées pour le SiO_2 et le carbone à 5 et 20 keV en fonction de la pression d'air qui est le cas le plus défavorable en matière de diffusion des électrons, sont représentée sur les figures (V.29, V.30). Comme déjà mentionné ci-dessus, on peut noter ici, que les zones sous les spectres d'énergie des deux cibles représentent leurs valeurs respectives du taux de rétrodiffusion (η). Ces zones décrivent comment le nombre d'électrons rétrodiffusés augmente avec le numéro atomique. Aussi, comme prévu, il y a une grande réduction dans l'amplitude entre les énergies des BSE à la surface de l'aluminium et au détecteur (Fig. V.27). Cette réduction est due effectivement à la géométrie limitée du détecteur. Sous pression d'air à 500Pa, le spectre à la surface augmente et se décale à droite vers les énergies supérieures à 0.6keV (figure V.28). Ce dernier est généralement dû à l'inclinaison du rayon de skirt. Les électrons incidents qui appartiennent au rayon de skirt sont légèrement

inclinés par rapport à l'axe Δ , donnant lieu à une situation similaire à celle où l'échantillon est légèrement incliné, ce qui traduit ce décalage vers la droite.

En plus, les électrons du skirt, qui ont subis des déviations angulaires importante se déplacent avec un faible parcours dans la cible avant de se rétrodiffusés et perdent moins d'énergie que ceux qui subissent des déviations faibles. Généralement, le coefficient BSE augmente à une incidence oblique. Ce fait semble aussi expliquer l'augmentation du spectre énergétique des BSE issu de la surface de l'échantillon avec l'augmentation de la pression.

D'autre part, ce spectre diminue légèrement entre 0.2 et 0.6 keV (Figure V.28). On sait qu'à faible énergie, la section efficace du gaz augmente et le libre parcours moyen diminue, ce qui augmente les collisions et les pertes d'énergies des BSE avant d'entrer en collision avec le matériau. Une fois dans ce dernier, ils perdent encore de l'énergie, ce qui traduit cette légère diminution des spectres entre 0.2 et 0.6keV.

Les spectres pour le carbone, le SiO₂ et C/SiO₂ figures (V.29) jusqu'à (V.32), traduisent uniquement les BSE qui ont atteints le détecteur. Pour le carbone et le SiO₂ à 5keV et 250Pa, les courbes diminuent dans toute la plage du spectre, surtout entre 0.4 et 0.9 (2-5keV) à l'inverse de la courbe à 50Pa. Cette réduction, est due principalement aux collisions des BSE issus du skirt avec l'air, dont une partie se perd loin de l'angle d'acceptation du détecteur. Une légère réduction de l'énergie dans la région inférieure à 0.2 (1keV) est observée pour le carbone et le SiO₂ à 5keV et à 250Pa. Ceci s'explique par le libre parcours moyen qui est inférieur à la distance de travail, ce qui favorise les collisions, entraînant des pertes d'énergies. A 20keV, la diminution par rapport au vide est légère à cause de la grande fraction des électrons non diffusés qui atteint plus de 80%.

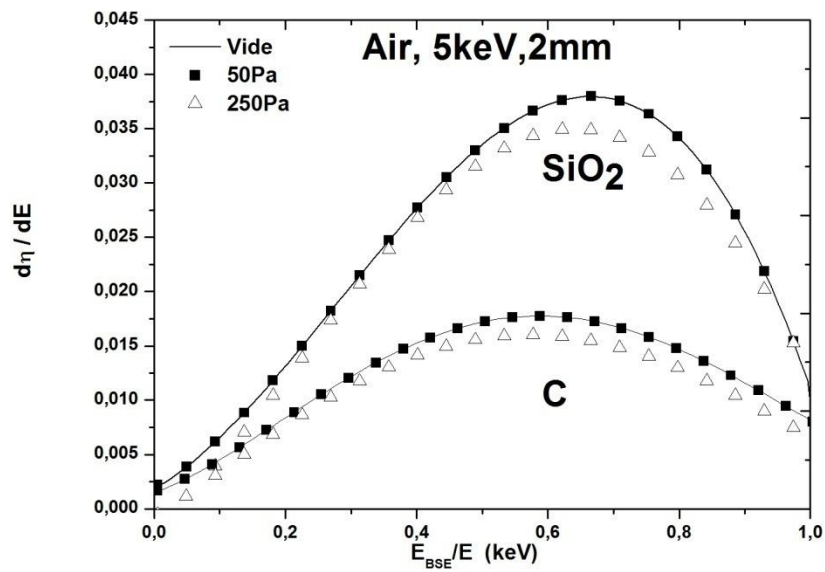


Figure V.29. Les distributions énergétiques des BSE pour le Carbone et SiO_2 5keV sous Vide et sous pression d'air $P=50Pa, P=250Pa$

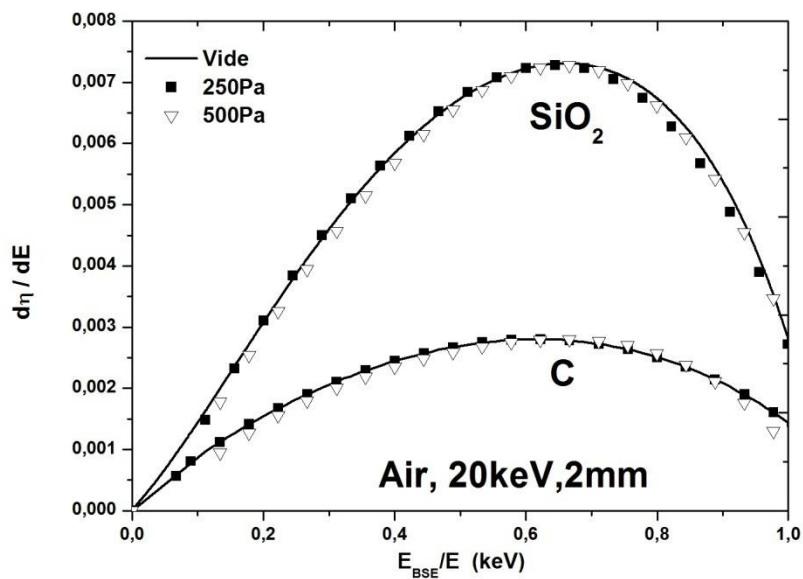


Figure V.30. Les distributions énergétiques des BSE pour le Carbone et SiO_2 20keV sous Vide et sous pression d'air $P=250Pa, P=500Pa$

A l'interface et dans le vide, le comportement est un peu différent dans la région $<0.4keV$ (2keV). Un nombre d'électrons subissent des collisions dans le SiO_2 , migrent dans la partie voisine (carbone), et se rétrodiffuse facilement sans subir trop de collision dans le carbone du

à sa faible densité par rapport au SiO_2 . Ceci entraîne une légère augmentation de l'énergie dans la région $<0.4\text{keV}$. Au fur et à mesure que la pression augmente, le nombre de BSE du SiO_2 augmente à cause du skirt, et la migration augmente. Pour la région $>0.5\text{keV}$, le même comportement que les matériaux purs (carbone et SiO_2) est observé. À 20keV , la diminution commence plus tôt, de 0.3 à 0.8keV car la migration commence dans le SiO_2 à partir d'une grande profondeur (profondeur d'interaction) et les électrons susceptibles de se rétrodiffuser se trouvent piégés dans le carbone.

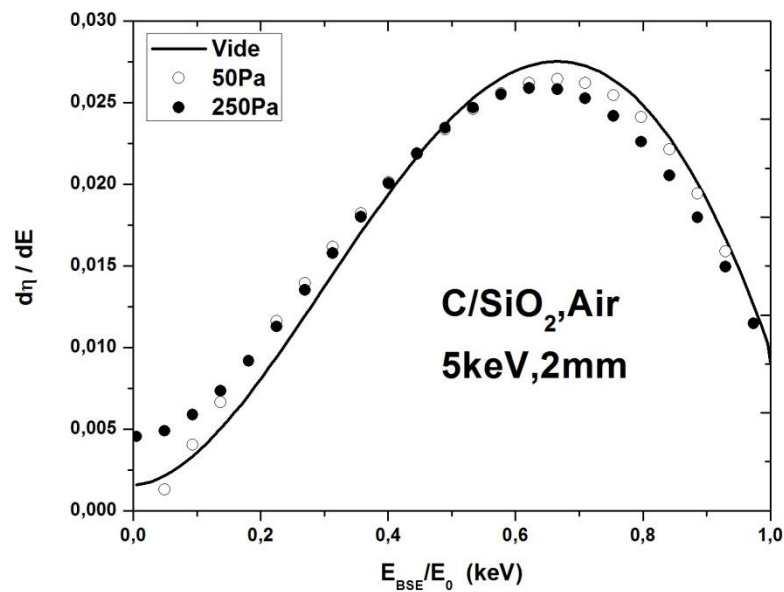


Figure V.31. Distributions énergétiques des BSE à l'interface C/SiO_2 5keV sous vide et sous pression d'air $P=50\text{Pa}$, $P=250\text{Pa}$

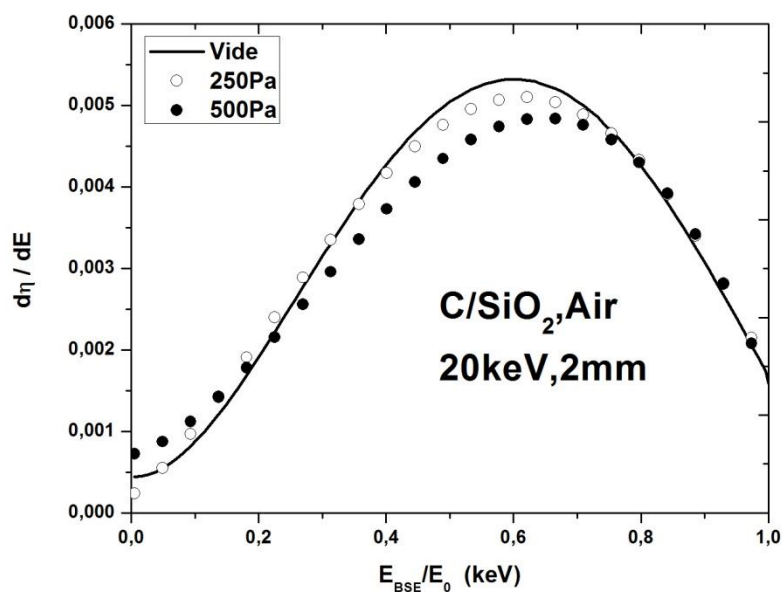


Figure V.32. Distributions énergétiques des BSE à l'interface C/SiO₂ 20keV sous Vide et sous pression d'air $P=250\text{Pa}$, $P=500\text{Pa}$

Energie détecté la plus probable (Ep), sous pression d'air		
	5keV	20keV
SiO ₂		
Vide	3.35	13
250Pa	3.20	13
Carbone		
Vide	2.95	12
250Pa	2.80	12
C/SiO ₂		
Vide	3.3	12.3
250Pa	3.1	12.4

Tableau V.3 Energie la plus probable détectée Ep des BSE pour différentes pressions et pour les trois matériaux C, SiO₂, C/SiO₂ à E=5keV, 20keV

Pour les trois matériaux, nous avons calculé l'énergie détectée des BSE la plus probable (tableau V.3). Ces énergies augmentent en fonction du numéro atomique de chaque matériau, et diminuent en fonction de la pression (250Pa) d'air à faible énergie (5keV).

On note, 4% de perte pour le SiO₂, 5% pour le carbone et 6% à l'interface carbone-SiO₂. A 20keV, la pression n'a pas d'effet sur la variation d'énergie. Ceci est dû à la faible fraction diffusé à 250Pa. Pour 5keV, la probabilité de collision est grande, et les BSE subissent des collisions avec le gaz en perdant une partie de leur énergie, ce qui explique cette diminution de l'énergie la plus probable détectée.

Maintenant pour avoir une image complète du comportement des BSE, nous avons aussi tracé en trois dimension leur distribution énergétique en fonction de leur coordonnées de sortie à la surface du carbone qui est le cas le plus défavorable. Les figures (V.33) à (V.36) montrent ces distributions, sous vide et sous pressions d'air de 50 Pa et 200 Pa.

Dans le vide, nous voyons que tous les BSE proches du point d'impact du faisceau, ont plus d'énergie (2.5 à 4 keV), que ceux les plus éloignés. Par conséquent, ces derniers sont les électrons qui pénètrent plus profondément dans l'échantillon et s'échappent du point d'impact en perdant probablement beaucoup d'énergie par diffusion inélastique. Ces électrons rétrodiffusés à faible énergie peuvent ne pas avoir une contribution significative à l'image BSE.

A une pression de 200 Pa, la distribution des électrons rétrodiffusés montre un pic élevé près du point d'impact du faisceau avec une large gamme de différente énergie allant de 1 keV à 5 keV. L'hélium à 500Pa se comporte comme l'air à 50Pa et la distribution n'est pas affectée par le changement de pression. Celui-ci a une plus grande fraction du signal dérivé de son pic, ce qui se traduit par une résolution plus élevée.

En outre, à basse pression, l'étendue de la région extérieure est peu modifiée, sauf pour le cas de l'air, à cause de sa plus grande section efficace de diffusion par rapport à celle de l'hélium. Au fur et à mesure que l'hélium est introduit, le rapport signal/bruit est amélioré.

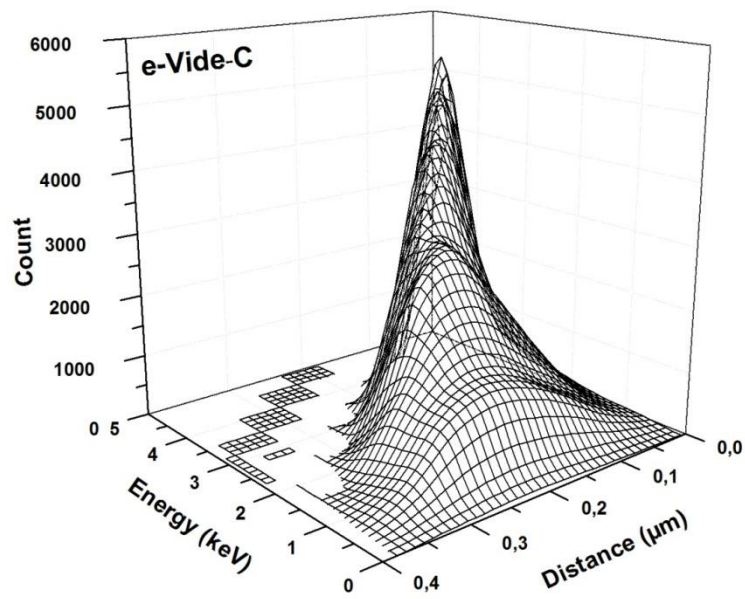


Figure V.33. Distribution énergétique en trois dimension pour le Carbone sous vide $E=5\text{keV}$

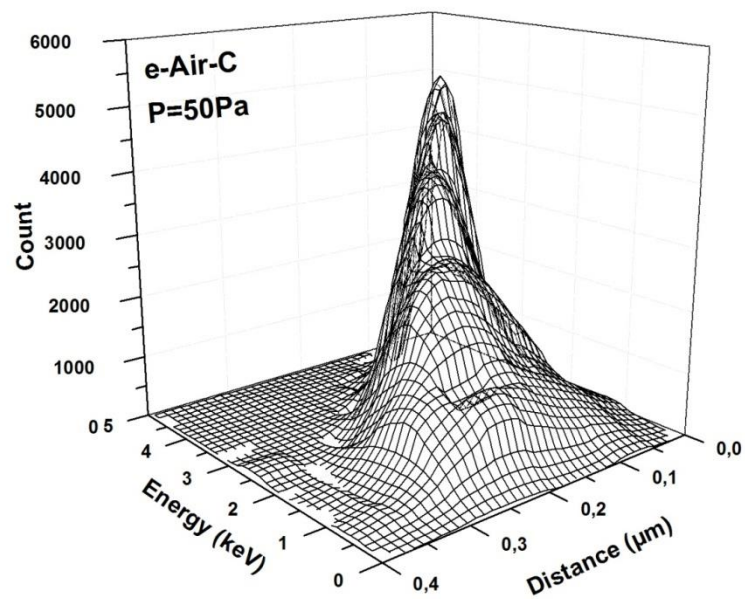


Figure V.34. Distribution énergétique en trois dimension pour le Carbone sous pression d'air
 $P=50\text{Pa}$ $E=5\text{keV}$

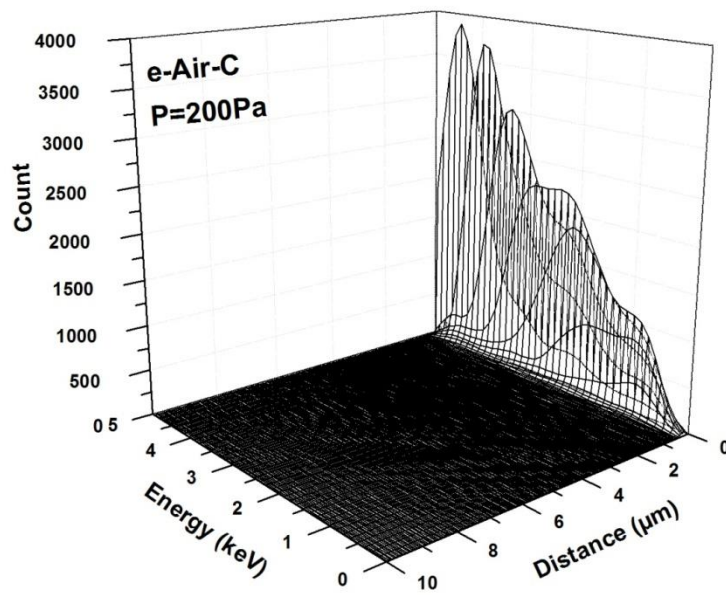


Figure V.35. Distribution énergétique en trois dimension pour le Carbone sous pression d'air
 $P=200\text{Pa}$ $E=5\text{keV}$

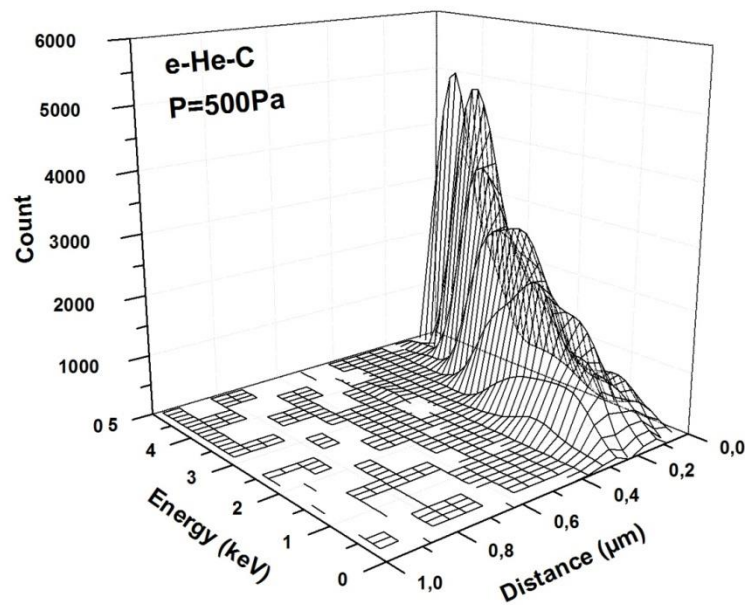


Figure V.36. Distribution énergétique en trois dimension pour le Carbone sous pression de l'hélium
 $P=50\text{Pa}$ $E=5\text{keV}$

III .2 Distribution angulaire

D'autres propriétés intéressantes des BSE sont leur distribution angulaire par rapport à la direction d'incidence du faisceau d'électrons.

La distribution angulaire des BSE lorsqu'ils émergent de la surface supérieure de l'échantillon couvre un angle solide de 180 degrés, mais la quantité effective détectée du signal dépend de la géométrie et du mécanisme de collecte du détecteur. Dans cette partie, à cause de la symétrie du signal, nous étudions la distribution angulaire des BSE issus de la surface de carbone et SiO₂ entre 0 et 90°. Les résultats sont tracés dans les figures (V.37) à (V.40) pour différentes pressions et énergies.

Pour le carbone, l'effet de la variation de la pression est plus prononcé sur les angles détectés, que pour le SiO₂. Un décalage du spectre vers les angles supérieurs (>45°) et inférieur à <10° est observé avec l'augmentation de la pression. Cette variation est toujours liée au rayon de skirt et son impact sur la variation des BSE en fonction du numéro atomique. Sous pression de gaz les électrons diffusés (skirt) frappent la cible avec des angles initiaux non nuls et sortent rapidement sous forme d'électrons rétrodiffusés sans trop perdre beaucoup d'énergie. Ces angles initiaux, s'ajoutent au nombre de fois où les angles azimutaux sont calculés au cours du trajet de l'électron pour chaque matériau. Plus l'électron rétrodiffusé est plus loin du point d'impact, plus l'angle d'échappement est plus grand, surtout pour les matériaux de faible densité.

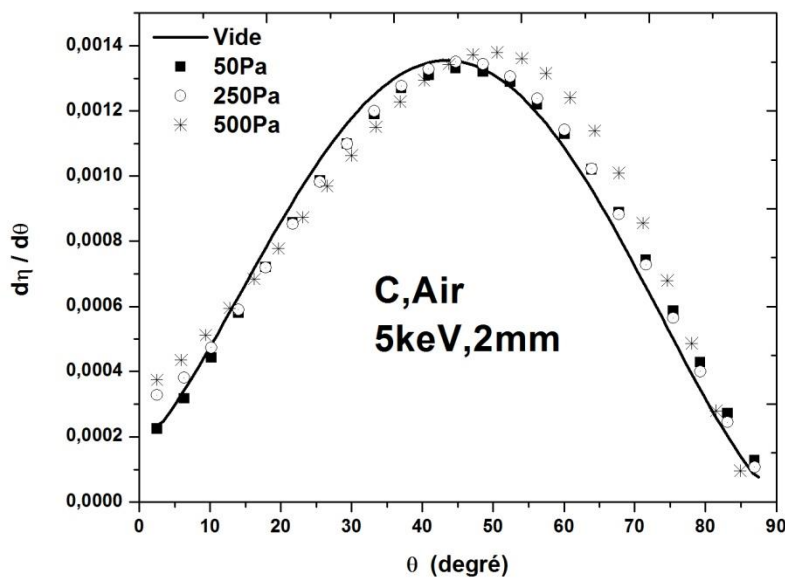


Figure V.37. Distribution angulaire des BSE à la surface de carbone pour différentes pression d'air à 5keV

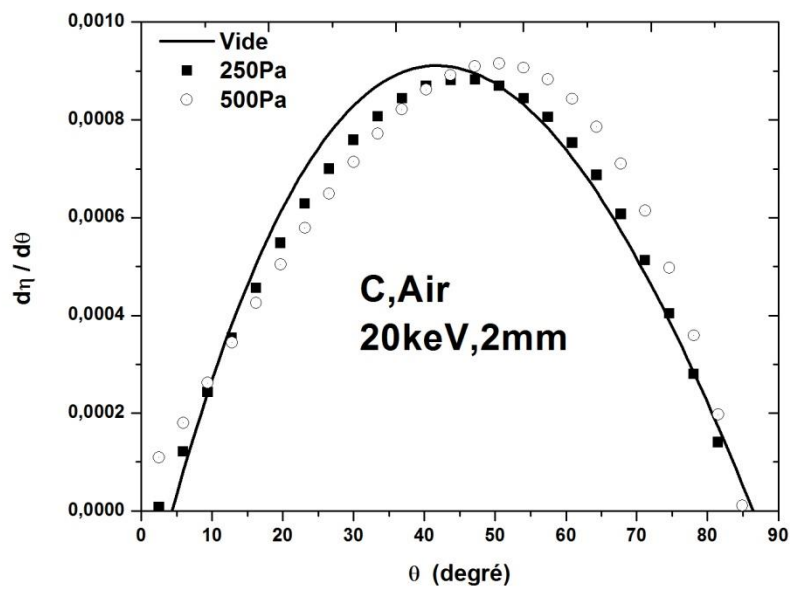


Figure V.38. Distribution angulaire des BSE à surface de carbone pour différentes pressions d'air à 20keV

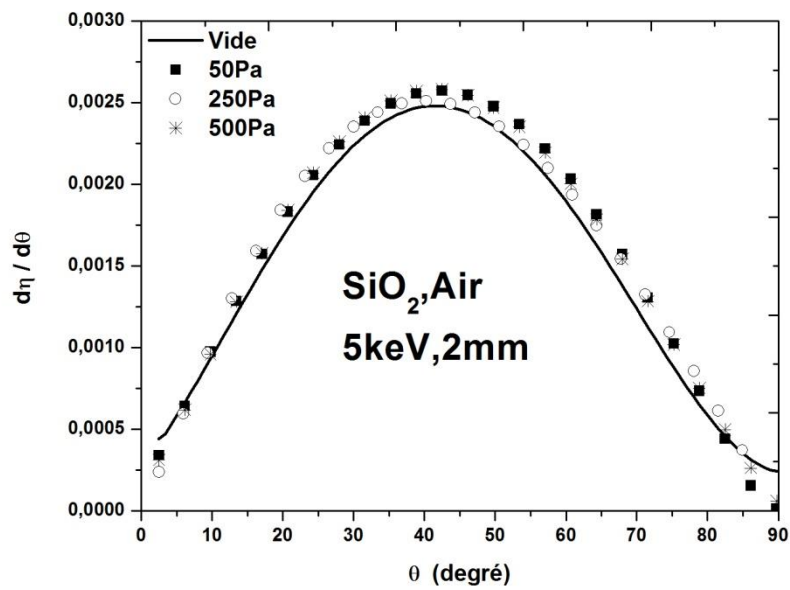


Figure V.39. Distribution angulaire des BSE à la surface de SiO_2 pour différentes pressions d'air à 5keV

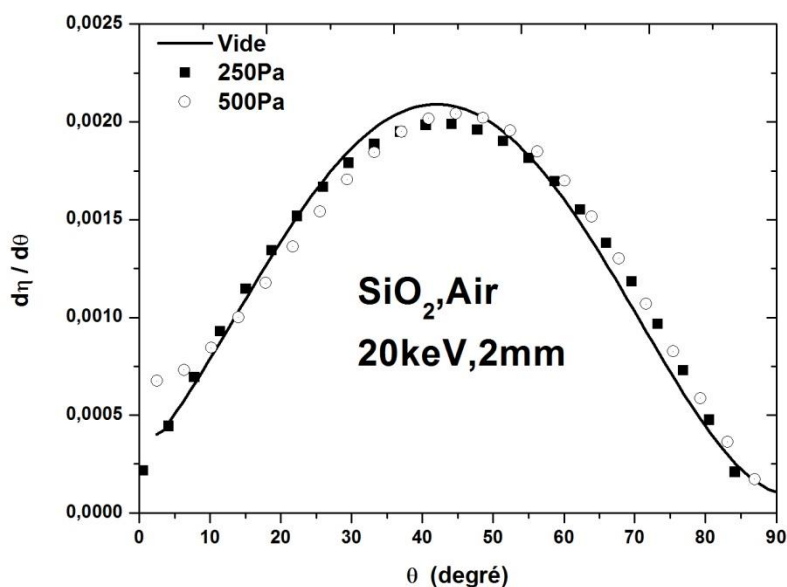


Figure V.40. Distribution angulaire des BSE à la surface de SiO_2 pour différentes pressions d'air à 20keV

Angle le plus probable, détecté (E_θ) sous pression d'air		
	5keV	20keV
Carbone		
Vide	46,29°	42°
250Pa	47.60°	45°
SiO₂		
Vide	42.50°	43.4°
250Pa	42.05°	44°

Tableau V.4 L'angle détecté des BSE la plus probable E_θ pour différentes pressions et pour les trois matériaux C, SiO_2 à $E=5\text{keV}$, 20keV

Pour le carbone et le SiO_2 , nous avons calculé l'angle le plus probable détecté (tableau V.4). Ces angles diminuent à 5keV, et augmentent légèrement à 20keV avec l'augmentation du numéro atomique. Cette variation dans le vide est due à la variation de la densité des deux matériaux, au nombre atomique et à la poire d'interaction.

A 5keV, chaque fois que Z augmente, la densité augmente, la poire se rétrécit et les angles diminuent. A 20keV, les angles augmentent car la poire d'interaction est augmentée d'environ 10 fois par rapport à 5keV. En fonction de la pression d'air à (5keV, 2 % d'augmentation est enregistré de l'angle le plus probable pour le carbone et 6% à 20keV. Pour le SiO₂, à la pression de 250Pa, l'énergie n'a pas d'effet marquant sur la variation des angles détectés.

IV. CONCLUSIONS

Ce chapitre a été consacré au comportement des électrons rétrodiffusés émis et détectés dans la chambre d'analyse d'un VP-SEM sous les régimes spécifiques de basse et haute tension. La distribution d'intensité des BSE à la surface de l'échantillon indique clairement le rôle de la partie diffusée du faisceau d'électrons primaires dans l'augmentation du volume d'interaction dans le matériau cible sous pression croissante. En effet, le rayon de sortie R_{BSE} des électrons rétrodiffusés augmente lorsque la pression augmente. Sauf pour l'hélium qui introduit très peu de changements même à haute pression, les deux autres gaz testés, la vapeur d'eau et l'air font augmenter le rendement des BSE à la surface du matériau et le diminuer au niveau du détecteur par rapport au vide. La vapeur d'eau devrait fournir de meilleures conditions d'imagerie que l'air. Nous avons introduit une nouvelle approche pour déterminer la gamme de pression de fonctionnement qui assure une dégradation minimale de la résolution latérale en mode d'imagerie BSE pour un échantillon donné et un gaz donné. Cette méthode est basée sur la comparaison entre le rayon de skirt $R_{0.9}$ du faisceau d'électrons incident et le rayon de sortie R_{BSE} . Nous trouvons que la gamme de pression appropriée suit la condition $R_{BSE} \leq R_{0.9}$, où l'égalité définit la pression maximale P_M au-dessus de laquelle, la dégradation de résolution devrait commencer. Avec une tension d'accélération de 5 kV, une distance de travail de 2 mm et une cible de carbone, nos valeurs calculées de P_M sont de 190 Pa et 340 Pa sous pression d'air et de vapeur d'eau respectivement. Cette pression maximale peut être augmentée lorsqu'il s'agit de matériaux de densité supérieure à celle du carbone, comme le montrent nos résultats pour SiO₂.

L'étude des distributions énergétiques et angulaires des BSE détectés sous vide montre que la géométrie limitée du détecteur (rayon de détecteur) entraîne une grande réduction du signal BSE où les énergies les plus probables varient entre $0.6E_0$ à $0.67E_0$ (E_0 étant l'énergie des électrons incidents). Sous pression d'air, le skirt, entraîne un décalage des spectres vers les énergies et les angles supérieurs, surtout pour le carbone. L'inspection de la distribution angulaire montre que le nombre maximum d'électrons rétrodiffusés est émis par nos matériaux à 5 et 20keV pour des pressions <250Pa, le long de la surface normale à des angles

qui varient entre 42° et 46° qui sont les angles les plus probables. Si le détecteur est placé à des valeurs plus grandes de ces valeurs ou inférieures, les électrons rétrodiffusés diminuent. Aux angles les plus éloignés, juste au-dessus de la surface, il n'y a pratiquement pas de trajectoires d'électrons rétrodiffusés. Ainsi, et comme on pouvait le prévoir, l'emplacement d'un détecteur BSE par rapport à la surface d'échantillon aura une forte influence sur son efficacité de détection.

CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION GENERALE

Nous avons définis graduellement le principe de microscopie électronique à balayage à pression variable VPSEM. 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 aussi 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 VPSEM.

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 afin de prédire le comportement du faisceau électronique primaire lors de sa traversée dans la chambre d'analyse du microscope (skirt, fractions...) et l'émission et à la détection des électrons rétrodiffusés en présence de gaz dans le VPSEM. Nous avons choisi de mener ce travail sur trois gaz différents; H_2O , Air et l'hélium. Pour cela, nous avons choisi comme matériaux le carbone © à cause de son faible numéro atomique et qui représente le cas le plus défavorable en matière de résolution, le silicium SiO_2 comme un diélectrique avec une densité plus élevée et leur interface C/ SiO_2 . Dans tous les cas, nous avons effectué nos calculs avec 10^6 trajectoires en variant les paramètres du VP-SEM.

Nous avons ainsi pu visualiser le comportement des électrons dans ces trois gaz, tel que le skirt, la fraction non diffusée et diffusée et le libre parcours moyen. Comme prévu, nous avons constaté un élargissement du faisceau incident, qui augmente avec la pression et diminue avec l'augmentation de l'énergie du faisceau d'électrons primaires. Cet effet est le moins important dans le cas de l'hélium par rapport à l'air et la vapeur d'eau.

La distribution des BSE à la surface de l'échantillon indique clairement le rôle de la partie diffusée du faisceau d'électrons primaires dans l'augmentation du volume d'interaction dans le matériau cible sous pression croissante. En effet, le rayon de sortie R_{BSE} des électrons rétrodiffusés augmente lorsque la pression augmente. Sauf pour l'hélium qui introduit très peu de changements même à haute pression, les deux autres gaz testés, la vapeur d'eau et l'air font augmenter le rendement des BSE à la surface du matériau et le diminuer au niveau du détecteur par rapport au vide. La vapeur d'eau devrait fournir de meilleures conditions

d'imagerie que l'air. Nous avons introduit une nouvelle approche pour déterminer la gamme de pression de fonctionnement qui assure une dégradation minimale de la résolution latérale en mode d'imagerie BSE pour un échantillon donné et un gaz donné. Cette méthode est basée sur la comparaison entre le rayon de skirt $R_{0,9}$ du faisceau d'électrons incident et le rayon de sortie R_{BSE} . On trouve que la gamme de pression appropriée suit la condition $R_{BSE} \leq R_{0,9}$, où l'égalité définit la pression maximale P_M au-dessus de laquelle, la dégradation de résolution devrait commencer. Avec une tension d'accélération de 5 kV, un GPL de 2 mm et une cible de carbone, nos valeurs calculées de P_M sont de 190 Pa et 340 Pa sous pression d'air et de vapeur d'eau respectivement. Cette pression maximale peut être augmentée lorsqu'il s'agit de matériaux de densité supérieure à celle du carbone, comme le montre le SiO_2 .

L'étude des distributions énergétiques et angulaires des BSE détectés sous vide montre que la géométrie limitée du détecteur (rayon de détecteur) entraîne une grande réduction du signal BSE où les énergies les plus probables varient entre $0.6E_0$ à $0.67E_0$. Sous pression d'air, le skirt, entraîne un décalage des spectres vers les énergies et les angles supérieurs, surtout pour le carbone. L'inspection de la distribution angulaire montre que le nombre maximum d'électrons rétrodiffusés est émis par nos matériaux à 5 et 20keV pour des pressions $<250Pa$, le long de la surface normale à des angles qui varient entre 42° et 46° qui sont les angles les plus probables. Si le détecteur est placé à des valeurs plus grandes de ces valeurs ou inférieures, les électrons rétrodiffusés diminuent. Aux angles les plus éloignés, juste au-dessus de la surface, il n'y a pratiquement pas de trajectoires d'électrons rétrodiffusés. Ainsi, l'emplacement d'un détecteur BSE par rapport à la surface de l'échantillon aura une forte influence sur son efficacité de collection. Tous ces résultats sont potentiellement exploitables pour les expérimentateurs afin de se placer dans les conditions optimales d'imagerie en mode BSE.

BIBLIOGRAPHIE

BIBLIOGRAPHIE

- [1] Moncrieff, D.A., and Robinson VNE, Harris LB. (1978): Charge neutralization of insulating surfaces in the SEM by gas ionization. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.11, 2315-2325.
- [2] Swift, J.A. and Brown, A.C. (1970): Environmental Cell for Examination of Wet Biological Specimens At Atmospheric Pressure By Transmission Scanning Electron Microscopy. *J. Phys. E – Sci. Instr.*, 3(11), 924.
- [3] Parsons, D. (1975): Radiation Damage in Biological Materials, in *Physical Aspects of Electron Microscopy and Microbeam Analysis*. B. Siegel, New York: pp. 259–265.
- [4] Lane, W.C. (1970): The environmental cold stage. *Proceedings of the Third Scanning Electron Microscopy Symposium*, IIT Research Institute, Chicago, IL, 60616.
- [5] Robinson, V.N.E. (1975): The elimination of charging artifacts in the scanning electron microscope. *J. Phys. E: Sci. Instr.* 8(8), 638–640.
- [6] Robinson, V.N.E. (1974): A wet stage modification to a scanning electron microscope. *Proc. 8th Int. Cong. Electron Microscopy*, Canberra, Aust. Acad. Sci.
- [7] Robinson, V.N.E. (1996): SEM at high chamber pressure. <http://www.microscopy.com/MicroscopyListserver/MicroscopyArchives.html> (November 19, 1996).
- [8] Von Engel, A. (1965). *Ionized Gases*, Clarendon Press, Oxford.
- [9] Moncrieff, D.A., Barker, P.R. and Robinson, V.N.E. (1979): Electron scattering by the gas in the scanning electron microscope, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 12(4), 481–488.
- [10] Shah, J.S. and Beckett, A. (1979): A preliminary evaluation of moist environment ambient temperature scanning electron microscopy (MEATSEM). *Micron*, 10, 13–23.
- [11] Neal, R.J. and Mills, A. (1980): Dynamic Hydration Studies In An SEM. *Scanning*, 3(4), 292–300.
- [12] Danilatos, G.D. (1990b): U.S. Patent No. 4,897,545: Electron detector for use in a gaseous environment, ElectroScan Corporation.
- [13] Danilatos, G. (1989a) : Mechanisms of Detection and Imaging in the ESEM. *J. Microsc.*, 160(pt. 1), 9–19.
- [14] Farley, A.N. and Shah, J.S. (1991): High-Pressure Scanning Electron-Microscopy Of Insulating Materials – A New Approach. *J. Microsc.–Oxford*, 164, 107–126.

- [15] Mohan, A., Khanna, N., Hwu, J. and Joy, D.C. (1998): Secondary electron imaging in the variable pressure scanning electron microscope. *Scanning*, 20, 436–441.
- [16] Danilatos, G.D. (1990a). Theory of the Gaseous Detector Device in the Environmental Scanning Electron Microscope. *Adv. Electron. Electron Phys.*, 78.
- [17] Thiel, B.L., Bache, I.C., Fletcher, A.L., Meredith, P. and Donald, A.M. (1997): An Improved Model for Gaseous Amplification in the Environmental SEM. *J. Microsc.*, 187(pt. 3), 143–157.
- [18] Toth, M., Knowles, W.R. and Thiel, B.L. (2006): Secondary electron imaging of nonconductors with nanometer resolution. *Appl. Phys. Lett.*, 88(2), Article no. 023105.
- [19] Danilatos, G.D. U.S. Patent (1989b): Multipurpose gaseous detector device for electron microscope, ElectroScan Corporation. No. 4,992,662.
- [20] Morgan, S.W. and Phillips, M.R. (2006): Gaseous scintillation detection and amplification in variable pressure scanning electron microscopy. *J. Appl. Phys.*, 100(7), Article no. 074910.
- [21] Jacka, M., Zadrazil, M. and Lopour, F. (2003): A differentially pumped secondary electron detector for low-vacuum scanning electron microscopy. *Scanning*, 25, 243–246.
- [22] Slowko, W. (2006): New system for secondary electron detection in variable-pressure scanning electron microscopy. *J. Microsc.–Oxford*, 224, 97–99.
- [23] Meredith, P., Donald, A.M. and Thiel, B. (1996): Electron–gas interactions in the environmental scanning electron microscopy gaseous detector. *Scanning*, 18(7), 467–473.
- [24] Fletcher, A.L. Cryogenic. (1997): Developments and Signal Amplification in Environmental Scanning Electron Microscopy. University of Cambridge, PhD thesis.
- [25] Fletcher, A.L., Thiel, B. and Donald, A. (1997): Amplification measurements of Potential Imaging Gases in Environmental SEM. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 30, 2249–2257.
- [26] Stowe, S.J. and Robinson, V.N.E. (1998): The use of helium gas to reduce beam scattering in high vapour pressure scanning electron microscopy applications. *Scanning*, 20, 57–60.
- [27] Mathieu, C. (1999): The beam–gas and signal–gas interactions in the variable pressure scanning electron microscope. *Scanning Microsc.*, 13(1), 23–41.
- [28] Wight, S., Gillen, G. and Herne, T. (1997): Development of environmental scanning electron microscopy electron beam profile imaging with self-assembled monolayers and secondary ion mass spectroscopy. *Scanning*, 19, 71–74.

- [29] Gillen, G., Wight, S., Bright, D. and Herne, T. (1998): Quantitative secondary ion mass spectrometry imaging of self-assembled monolayer films for electron beam dose mapping in the environmental scanning electron microscope. *Scanning*, 20, 400–409.
- [30] Phillips, M.R., Toth, M. and Drouin, D. (1999): A Novel Technique for Probe Intensity Profile Characterization In the Environmental Scanning Electron Microscope. *Microsc. Microanal.*, 5(2), 294–295.
- [31] Thiel, B.L., Bache, I.C. and Smith, P. (2000): Imaging the probe skirt the environmental SEM. *Microsc. Microanal.*, 6(Suppl. 2), 794–795.
- [32] Wight, S.A. and Zeissler, C.J. (2000): Direct measurement of electron beam scattering in the environmental scanning electron microscope using phosphor imaging plates, *Scanning* 22(3), 167–172.
- [33] Kadoun A, Belkorissat R, Khelifa B, Mathieu C(2003) *Vacuum* 69,p537–543.
- [34] Tang, X.H. and Joy, D.C. (2005): An experimental model of beam broadening in the variable pressure scanning electron microscope. *Scanning*, 27(6), 293–297.
- [35] Griffin, B.J. and Nockolds, C.E. (1996): Quantitative EDS analysis in the ESEM using a bremsstrahlung intensity-based correction for primary electron beam variation and scatter. *Microscopy and Microanalysis* _96.
- [36] Bilde-Sorensen, J. and Appel, C.C. (1997): X-ray spectrometry in ESEM and LVSEM: corrections for beam skirt effects. *SCANDEM-97*.
- [37] Doehne, E. (1997a): A New Correction Method for High-Resolution Energy-Dispersive X-Ray Analyses in the Environmental Scanning Electron Microscope. *Scanning*, 19(2), 75–78.
- [38] Gauvin, R. (1999): Some theoretical considerations on X-ray microanalysis in the environmental or variable pressure scanning electron microscope. *Scanning*, 21(6), 388–393.
- [39] Mansfield, J.F. (2000): X-ray microanalysis in the environmental SEM: A challenge or a contradiction? *Microchim. Acta*, 132(2–4), 137–143.
- [40] Newbury, D.E. (2002): X-ray microanalysis in the variable pressure (environmental) scanning electron microscope. *J. Nat. Inst. Standards Technol.*, 107(6), 567–603.
- [41] Le Berre, J.F., Demers, H., Demopoulos, G.P. and Gauvin, R. (2007) : Skirting: A limitation for the performance of X-ray microanalysis in the variable pressure or environmental scanning electron microscope. *Scanning*, 29(3), 114–122.
- [42] Clausen, C. and Bilde-Sorensen, J. (1992): Observation of voltage contrast at grain boundaries in YSZ. *Micron Microscop. Acta*, 23(1/2), 157–158.

- [43] Horsewell, A. and Clausen, C. (1994): Voltage contrast of ceramics in the environmental SEM. ICEM 13, Paris, France.
- [44] Harker, A.B., Howitt, D.G., Denatale, J.F. and Flintoff, J.F. (1994). Charge-Sensitive Secondary-Electron Imaging Of Diamond Microstructures. *Scanning*, 16(2), 87–90.
- [45] Meredith, P. and Donald, A.M. (1996): Study of ‘wet’ polymer latex systems in environmental scanning electron microscopy: some imaging considerations. *J. Microsc.*, 181(pt.1), 23–35.
- [46] Meredith, P., Donald, A.M. and Thiel, B. (1996): Electron–gas interactions in the environmental scanning electron microscopy gaseous detector. *Scanning*, 18(7), 467–473.
- [47] Griffin, B.J. (1997): A New Mechanism for the Imaging of Non-conductive Materials: An Application of Charge-Induced Contrast in the Environmental Scanning Electron Microscope (ESEM). *Microsc. Microanal.*, 3(Suppl. 2: Proceedings), 1197–1198.
- [48] Doehne, E. (1998): Charge Contrast: Some ESEM Observations of a New/Old Phenomenon. *Microsc. Microanal.*, 4(Suppl.2: Proceedings), 292–293.
- [49] Baroni, T.C., Griffin, B.J., Browne, J.R. and Lincoln, F.J. (2000): Correlation Between Charge Contrast Imaging and the Distribution of Some Trace Level Impurities in Gibbsite. *Microsc. Microanal.*, 6, 49–58.
- [50] Stokes, D.J., Thiel, B.L. and Donald, A.M. (1998). Using Secondary Electron Contrast for Imaging Water–Oil Emulsions in the Environmental SEM (ESEM). *Microsc. Microanal.*, 4(Suppl. 2: Proceedings), 300–301.
- [51] Stokes, D.J. (1999): Environmental SEM studies of the microstructure and properties of food systems, University of Cambridge, PhD thesis.
- [52] Stokes, D.J., Thiel, B.L. and Donald, A.M. (2000): Dynamic Secondary Electron Contrast Effects in Liquid Systems Studied by Environmental SEM (ESEM). *Scanning*, 22(6), 357–365.
- [53] Farley, A.N., Beckett, A. and Shah, J.S. (1988): Environment Ambient-Temperature Scanning Electron-Microscopy) Or The Sem Of Plant Materials Without Water-Loss. *Institute Of Physics Conference Series* (93):111–112.
- [54] Farley, A.N., Beckett, A. and Shah, J.S. (1990): Comparison of Beam Damage of Hydrated Biological Specimens in High-Pressure Scanning Electron Microscopy and Low-Temperature Scanning Electron Microscopy. *Proc. XIIth International Congress for Electron Microscopy*, San Francisco Press.

- [55] Gilpin, C.J. and Sigeo, D.C. (1995): X-ray microanalysis of wet biological specimens in the environmental scanning electron microscope. 1. Reduction of specimen distance under different atmospheric conditions, *J. Microsc.*, 179(1), 22–28.
- [56] Stokes, D.J. (2001): Characterisation of Soft Condensed Matter and Delicate Specimens using Environmental Scanning Electron Microscopy (ESEM). *Adv. Eng. Mat.*, 3(3), 126–130.
- [57] Donald, A.M. (2003): The use of environmental scanning electron microscopy for imaging wet and insulating materials. *Nature Mat.*, 2(8), 511–516.
- [58] Stokes, D.J. (2003b): Recent advances in electron imaging, image interpretation and applications: environmental scanning electron microscopy. *Philosoph. Trans. Roy. Soc. Lond. Series A – Math, Phys. Eng. Sci.*, 361(1813), 2771–2787.
- [59] Muscariello, L., Rosso, F., Marino, G., Giordano, A., Barbarisi, M., Cafiero, G. and Barbarisi, A. (2005): A critical review of ESEM applications in the biological field. *J. Cell. Phys.*, 205, 328–334.
- [60] Thiel, B.L. and Toth, M. (2005): Secondary electron contrast in low-vacuum/ environmental scanning electron microscopy of dielectrics. *J. Appl. Phys.*, 97(5).
- [61] Multi-authors (2004). Special issue: Characterisation of Nonconductive Materials. *Microsc. Microanal.*, 10(6).
- [62] Doehne, E. (1997b): ESEM development and application in cultural heritage conservation, in *In-Situ microscopy in Materials Research*. P.L. Gai, Kluwer Academic Publishers, pp. 47–65.
- [63] Baker, F.S., Craven, J.P. and Donald, A.M. (2003): The environmental scanning electron microscope and its applications, in *Techniques for Polymer Organisation and Morphological Characterisation*. R.A. Pethrick and C. Viney, John Wiley & Sons, Ltd, 111–143.
- [64] Stokes, D.J. (2003a): Investigating Biological Ultrastructure using Environmental Scanning Electron Microscopy (ESEM), in *Science, Technology and Education of Microscopy: An Overview*. No. 1, Vol. II. A. Mendez-Vilas. Badajoz, Spain, Trans Tech Publications Ltd, pp. 564–570.
- [65] Donald, A.M. (2007): Environmental scanning electron microscopy, in *Tissue Engineering Using Ceramics and Polymers*, J. Gough, Woodhead.
- [66] Griffin, B.J. (2007): Variable Pressure and Environmental Scanning Electron Microscopy. Imaging of Biological Samples, in *Electron Microscopy Methods and Protocols*, second edition. J. Kuo, Humana Press.

- [67] Robinson, V. N. E. and Robinson, B. W. (1978): Materials characterisation in a scanning electron microscope environmental cell. *Scanning Electron Microsc.* 1, 595–602.
- [68] Danilatos, G. C. (1990): Theory of gaseous detector device in the environmental scanning electron microscope. *Adv. Electronics Electron Phys.* 71, 1–102.
- [69] Peters, K. R. (1992): Principles of low vacuum scanning electron microscopy. *Proc. 50th Ann. Meeting Electron Microsc. Soc. Am.* (Bailey, G.W., Bentley, J., and Small, J.A., ed.), pp. 1304–1305.
- [70] Danilatos, G. D. and Robinson, V. N. E. (1979): Principles of scanning electron microscopy at high pressures. *Scanning* 2, 72–82.
- [71] Farley, A. N. and Shah, J. S. (1988): A new technique for high pressure SEM. *Inst. Phys. Conf. Ser.* 93, 241–242.
- [72] Knowles, W. R., Thiel, B. L., Toth, M., et al. (2004): Design of a two-stage gas amplification secondary electron detector for imaging insulating samples at the sub-1 nm scale. *Microsc. Microanal.* 10, 1060–1061.
- [73] Thiel, B. T., Toth, M., and Knowles, W. R. (2005): Ultra-high resolution and metrology with Low Vacuum SEM. *Microsc. Microanal.* 11, 384CD.
- [74] Bolon, R., Roberstson, C.D. & Lifshin, E. (1989) : The environmental SEM: a new way to look at insulators. In *Micro beam Anal.*, p. 449–452.
- [75] Zoukel, A., Khouchaf, L., Di Martino, J., Ruch, D., 2013 Skirting effects in the variable pressure scanning electron microscope: Limitations and improvements. *Micron* 44 (2013) 107–114.
- [76] Danilatos, G.D. (1985): Design and construction of an atmospheric or environmental SEM (part 3). *Scanning* 7, 26–42.
- [77] Reimer, L. (1985): *Scanning Electron Microscopy*, Springer-Verlag, Berlin.
- [78] Phillips, M. R. and Morgan, S. W. (2005): Direct comparison of various gaseous secondary electron detectors in the variable pressure scanning electron microscope. *Microsc. Micro anal.* 11, 398–399.
- [79] Craven, J. P., Baker, F. S., Thiel, B. L., and Donald, A. M. (2002): Consequences of positive ions upon imaging in low vacuum scanning electron microscopy. *J. Microsc. (Oxford)* 205, 96–105.
- [80] Stokes, D. J., Baker, F. S., and Toth, M. (2004): Raising the pressure: realizing room temperature/high humidity applications in ESEM. *Microsc. Microanal.* 10, 1074–1075.

- [81] Joy, D. C. (1995): Monte Carlo Modelling for Microscopy and Microanalysis. Oxford University Press, New York.
- [82] Griffin, B. J. (2005): Challenges and progress towards low voltage imaging in VPSEM. *Microsc. microanal.* 11, 396–397.
- [83] Guo, Y. Ji. H.S., Zhong, T.X., Zhang, H., Quan, X.L., Zhang, Y.Q., Xu, X.D. (2005). Charge and charging compensation on oxides and hydroxides in oxygen environmental SEM. *Ultramicroscopy* 103 191–198.
- [84] Danilatos, G.D. (1988): Foundations of environmental scanning electron microscopy. *Advances in electronics and electron physics*, 71,109-250.
- [85] Adamiak B. & Mathieu C. (2000) :The reduction of the beam gas interactions in the variable pressure scanning electron microscope with the use of helium gas. *Scanning* 22,178–181
- [86] Danilatos G.D. (1994a): Environmental scanning electron microscopy and microanalysis. *Mikrochimica Acta*, 114/115, 143–155
- [87] Farley, A.N., and Shah J.S. (1990a): Primary considerations for image enhancement in high-pressure scanning electron microscopy 1: Electron beam scattering and contrast. *Journal of Microscopy*, 158, 379–388.
- [88] Wight, S.A. (2001): Experimental data and model simulations of beam spread in the environmental scanning electron microscope. *Scanning*, 23, 320–327.
- [89] Lenz, F. (1954): Zur streuung mittelschneller elektronen in kleinste winkel (Scattering of medium energy electrons in very small angles). *Zeitschrift Naturforschung*, 9a, 185–204.
- [90] Wentzel, G. (1926): Dispersion of corpuscular rays as di raction appearances. *Zeitschrift furPhysik*, 40, 590–593.
- [91] Burge, R.E., Smith, G.H. (1962): A new calculation of electron scattering cross-sections and a theoretical discussion of image contrast in the electron microscope. *Proceedings of the Physical Society*, 79, 673–690.
- [92] Massey, H.S.W., Burhop, E.H.S. & Gilbody, L.B. (1969): *Electronic and Ionic Impact Phenomena*. Clarendon Press, Oxford, 2nd edition.
- [93] Jost, K. & Kessler, J. (1963): Die Ortsverteilung mittleschneller Elektronen bei Mehrfachstreuung (The spatial distribution of medium energy electrons during plural scattering). *Zeitschrift Physik*, 176, 126–142.
- [94] Fink, M., Kessler,J. , *Zeits.* (1966). *Phys*, 196, 1.

- [95] Wellenstein, H. F., Bonham, R. A., Ulsh, R. C. (1973). Phys. Rev. A, 8, 304.
- [96] Kessler, J., Zeits. (1964a).Phys, 182, 137.
- [97]. Kessler, J., Zeits. (1964b).Phys, 182, 153.
- [98] Wentzel, G., Zeits. (1927).Phys, 40, 590.
- [99] Williams, E. (1939).Proc. Roy. Soc, A, 169, 531.
- [100] Leisgang, S., Zeits. (1952).Naturf, 132, 183.
- [101] Bers, A., Vainstein, B. K. (1962). International Cristallographic tables Vol III. Kynoch Press, Birmingham
- [102] Eli, Napchan. (2004). Physics Used in MC-SET. Department of Materials, Imperial College, London
- [103] Mott, N. F., Massey H. S. W. (1965): The Theory of atomic Collision. Oxford Clarendon Press.
- [104] McDaniel, E.W. (1964). Collision Phenomena in Ionized Gases, Wiley, New York.
- [105] Belkhorissat, R. (2001). 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.
- [106] Bothe, W., Zeits. (1921).Phys, 5, p 63.
- [107] Schumacher, B. W. (1968). Ontario Research Foundation Physics Research report, 6604.
- [108] Reimer, L., Gilde, H., Sommer, K. H. (1970). Optik, 30, 590 .
- [109] Smith, R. C., Schumacher B. W. (1974). J. Chem. Phys, 60, 103.
- [110] Bogaerts A, Straaten MV, Renaat G. (1995).Spectrochimica Acta Part B, 2, 179-176.
- [111] Egerton, R.F. (1996). New York: Plenum Press.
- [112] Joy, D.C., Luo S. (1989). Scanning, 11, 176–80.
- [113] Deraz, M. (1996) : Simulation et corrélation du courant EBIC par la méthode de Monte Carlo. Mémoire de magistère, université de Sidi Bel Abbés.

- [114] Hadeif, M. (1999) thèse de magister Univ.Constantine
- [115] 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.
- [116] Bethe, H.Z. (1930).Annalen de Phys, 5, 325–33.
- [117] Berger, M.J., Selzer, S.M., 1964. Studies in penetration of charged particles in matter. Nat. Acad Sci natl Res Council publ. Vol.1133, 205-228.
- [118] Joy, D.C. (1991): An introduction to Monte Carlo simulation, Scan Microsc. 5 329–337.
- [119] Hunger H.J., Kuchler , L.(1979) : Measurements of the electron backscattering coefficient for quantitative EPMA in the energy range of 4 to 40 keV, Phys. Status Solidi a 56 45–48 .
- [120] Heinrich, K. F. J. (1966) In Proceedings of the 4th International Conference on X-ray Optics and Microanalysis (R. Castaing, P. Deschamps, and J. Philibert, eds.), Hermann, Paris, p. 159.
- [121] Bishop, H. (1966) In Proceedings of the 4th International Conference on X-ray Optics and Microanalysis (R. Castaing, P. Deschamps, and J. Philibert, eds.), Hermann, Paris, p153.
- [122] Newbury, D. E., H. Yakowitz, and R. L. Myklebust (1973). Appl. Phys. Lett. 23, 488.
- [123] David C. Joy (1995) : Monte Carlo Modeling for Electron Microscopy and Microanalysis NEW YORK OXFORD UNIVERSITY PRESS. 95–96.
- [124] Arnal, F, P. Verdier, and P.-D. Vincinsini (1969). *C. R. Acad. Sci. Paris* 268, 1526.
- [125] Berger, D. H. Niedrig (1999): Complete Angular Distribution of Electrons Backscattered from Tilted Multicomponent Specimens », Scanning, 21, p187.
- [126] J. Wagner, W. Stummer, M. Völkerer, A. Hanke, J. Wernisch (2005): Measuring the Angular Dependant Energy Distribution of Backscattered Electrons at variable Geometry, Scanning, 27, p.298.
- [127] Murata, K. (1973). *SEM/1973*, IIT Research Institute, Chicago, p. 268.
- [128] Murata, K. (1974). *J Appl. Phys.* 45, 4110.
- [129] Newbury, D. E., and R. L. Myklebust (1991). In *Microbeam Analysis-1991* (D. G. Howitt, ed.), San Francisco Press, San Francisco, p. 561.

- [130] GÉRARD P., J.L. BALLADORE, J.P.MARTINEZ, A.OUABBOU (1995) : Experimental Determination of Angular-Energy Distributions of Electrons Backscattered by Bulk Gold and Silicon Samples. SCANNING Vol. 17, 377–386.
- [131] Murata, K., Yasuda, M., Kawata, H., (1992). The spatial distribution of backscattered electrons revisited with a new Monte Carlo simulation. Scanning Microscopy International, Chicago, IL, ETATS-UNIS.
- [132] Yasuda M., Kawata, H., Murata, K(1996): The spatial distribution of backscattered electrons calculated by a simple model. Wiley-VCH, Berlin, Allemagne
- [133] Danilatos, G.D(2012) : Backscattered electron detection in environmental SEM. Journal of Microscopy 245, 171-185.
- [134] Robertson, K., Gauvin, R., Finch, J(2005): Application of charge contrast imaging in mineral characterization. Minerals Engineering 18, 343-352.
- [135] E. Oho , A. Akai, S. Itoh (20 0 0); Image quality improvement using helium gas in low voltage variable pressure scanning electron microscopy, J. Elec. Microsc. 49 761–763.
- [136] Khouchaf, L., Verstraete, J (2004): Electron scattering by gas in the Environmental Scanning Electron Microscope (ESEM): Effects on the image quality and on the X-ray microanalysis. Journal De Physique. IV : JP 118, 237-243.
- [137] Mathieu, C., Khouchaf, L., Kadoun, A (2007): Exploring the high pressure SEM, in: Diaz, A.M.-V.a.J. (Ed.), modern research and educational topics in microscopy, pp. 779-786.
- [138] Assa'd A.M.D. and M.M. El Gomati (1998) : Backscattering coefficients for low energy electrons. Scanning microscopy vol. 12, no. 1, 185-192.
- [139] Ronald Vane and Vince Carlino (2005): Environmental Contamination Sources and Control in High Resolution Scanning. Electron Microscopy. Microsc Microanal 11(Suppl 2).
- [140] Deborah Lau, Anthony E. Hughes, Tim H. Muster, Timothy J. Davis, and A. Matthew Glenn(2010) : Electron-Beam-Induced Carbon Contamination on Silicon: Characterization Using Raman Spectroscopy and Atomic Force Microscopy. Microsc. Microanal. 16, 13–20.
- [141] Dapor M. and A. Miotello(1999): Backscattering of electrons from selected oxides: MgO, SiO₂, and Al₂O₃. Eur. Phys. J. AP 5, 143-148.
- [142] Dapor, M. (2006): A comparative study of electron and positron penetration in silicon dioxide, J. Electron Spectrosc. Related Phenomena 151, 182–192.

- [143] Neubert , G. S. Rogaschewski (1980): Backscattering coefficient measurements of 15 to 60 keV electrons for solids at various angles of incidence, *Phys. Stat. Sol.* 59 35–41.
- [144] Nedela, V. V. Romanovsky (2002): Influence of the cross-section of gas molecules upon detection in environmental SEM, in: *Proceedings of the 2nd Annual Meeting Of The Czechoslovak Microscopy Society , Brno , , pp. 83–84 .*
- [145] Bongeler, R. U. Golla, M. Kassens, L. Reimer, B. Schindeler, R. Senkel, M. Spranck (1993) : Electron-specimen interaction in low voltage scanning electron microscopy, *Scanning* 15 1–18.
- [146] El Gomati, M.M. C.G.H. Walker , A.M.D. Assa'd , M. Zadra Zil (2008) :Theory experiment comparison of the electron backscattering factor from solids at low electron energy (250–5,0 0 0 eV), *Scanning* 30 2–15 .
- [147] Dapor, M. (2004) Backscattering of low energy electrons from carbon films deposited on aluminum: a Monte Carlo simulation, *J. Appl. Phys.* 95 718–721.
- [148] Dapor, M (2007): Monte Carlo computations of the electron backscattering coefficient for bulk targets and surface thin films, *Surf. Interface Anal.* 2007; 40: 714–717.
- [149] Riccardis,A. C. De M. F. De Riccardis, M. Nacucchi, L. Tapfer (1993),*Proc. of the Multinational Congress on Electron Microscopy, Parma, Italy, Sept. 13-17, p. 363.*
- [150] Kotera,M. S. Yamaguchi, T. Fujiwara, H. Suga (1992), *Jpn. J. Appl. Phys.* 31, 4531.
- [151] Matsukawa T, Shimizu R and Hashimoto H (1974): Measurements of the energy distribution of backscattered kilovolt electrons with a spherical retarding-field energy analyser. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 7 695–702.
- [152] Darlington E H (1975): Backscattering of 10–100 keV electrons from thick targets *J. Phys. D: Appl. Phys.* 8 85–93.
- [153] YadavR.K , and Shanker , (2007) : Energy and angular distributions of backscattered electrons from collisions of 5 keV electrons with thick Al, Ti, Ag, W and Pt targets. *journal physics* pp. 517–528.
- [154] Staub, P, F, J(1994). *Phys. D* 27, 1533.
- [155] Ali E S M and Rogers D W O (2008) : Benchmarking EGSnrc in the kilovoltage energy range against experimental measurements of charged particle backscatter coefficients *Phys. Med. Biol.* 53 1527–43.

- [156] Bishop H E, (1965) : Some electron backscattering measurements for solid targets Proc. 4th Int. Conf. on X-ray Optics and X-ray Microanalysis ed R Castaing et al (Paris: Hermann) ,153-8.