

**République Algérienne Démocratique et Populaire**  
**Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique**  
**Université Ibn Khaldoun - Tiaret**



**Faculté des Sciences de la Matière**  
**Département de Physique**

**Mémoire**

*Présenté par :*  
*Benhaddou Fatima Zohra*

*Pour obtenir le diplôme de*  
*Master*

*Filière Physique*  
*Spécialité : Physique des matériaux*  
*Thème :*

**Effet de la température sur l'élargissement du  
faisceau dans le microscope électronique à  
balayage à haute pression**

*Soutenu le : 11 / 10 / 2020*

*Devant le jury :*

Mr Ammari  
Mr Benabdellah  
Mr Belkhorissat

Abdelkader  
Ghلامallah  
Redouane

Président  
Examineur  
Encadrant

**ANNEE UNIVERSITAIRE: 2019/2020**

## **Remerciements**

*Avant toute chose, nous remercions « Allah », l'omnipotent, pour nous avoir donné la force, la patience et le courage pour mener ce travail à son terme.*

*Nos remerciements les plus chaleureux et les plus vifs s'adressent à notre encadreur, Dr. Belkhrossat Radouane pour son entière disponibilité, ses encouragements et le temps conséquent qu'il nous a accordé.*

*Qu'il trouve ici l'expression de notre gratitude et notre sincère reconnaissance*

*Nos profonds remerciements s'adressent aussi aux Dr. Ammari Abdelkader et Dr. Binabdellah Gholamallah pour l'honneur qu'elles nous ont fait d'avoir acceptées d'évaluer ce travail.*

*Qu'elles soient assurées de notre respectueuse considération.*

*Nous tenons également à remercier Dr. Benhaua, Maître de conférences à la faculté des sciences de physique ..*

*Nos sincères remerciements s'adressent à tous les professeurs qui nous ont enseigné et qui par leurs compétences nous ont soutenu dans la poursuite de nos études.*

*Enfin, nous tenons également à remercier toutes les personnes qui ont participé de près ou de loin à la réalisation de ce travail.*

# DEDICACES

*Que ce travail témoigne de mes respects :*

*A mes parents :*

*Grâce à leurs tendres encouragements et leurs grands sacrifices, ils ont pu créer le climat affectueux et propice à la poursuite de mes études.*

*Aucune dédicace ne pourrait exprimer mon respect, ma considération et mes profonds sentiments envers eux.*

*Je prie le bon Dieu de les bénir, de veiller sur eux, en espérant qu'ils seront toujours fiers de moi.*

*A mes sœurs ikram et khaldia*

*A tous mes professeurs :*

*Leur générosité et leur soutien m'oblige de leurs témoigner mon profond respect et ma loyale considération. A tous mes amis et mes collègues : Ils vont trouver ici le témoignage d'une fidélité et d'une amitié infinie.*

*Fatima Zohra*

## SOMMAIRE

Remerciements

Dédicaces

|                         |     |
|-------------------------|-----|
| Liste des tableaux..... | i   |
| Liste des figures.....  | ii  |
| Introduction.....       | iii |

## PREMIÈRE I : SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE

### CHAPITRE I : LE MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE A HAUTE PRESSION

|  |    |
|--|----|
| I.1 DEFINITION DU HPSEM.....                 | 01 |
| I.2 LE POMPAGE DIFFERENTIEL.....             | 02 |
| I.3 LES DIFFERENTS TYPES DU HPSEM .....      | 03 |
| I.4 IMAGERIE EN ELECTRON SECONDAIRES.....    | 04 |
| I.5 IMAGERIE EN ELECTRON RETRODIFFUSEES..... | 05 |
| I.6 RESOLUTION SPATIALE .....                | 05 |

### CHAPITRE II : PRINCIPES DE L'INTERACTION ELECTRON GAZ DANS LE HPSEM

|  |           |
|--|-----------|
| II.1 INTRODUCTION.....   | 07        |
| II.2 CONSIDERATIONS THEORIQUES .....   | 08        |
| II.3 ELARGISSEMENT DU FAISCEAU D'ELECTRONS (SKIRTING).....                       | 10        |
| II.4 SECTIONS EFFICACES DE DIFFUSIONS .....                                      | 13        |
| <i>II.4.1 Sections efficaces de diffusions pour les gaz monoatomiques :.....</i> | <i>13</i> |
| <i>II.4.2 Sections efficaces de diffusions pour les gaz moléculaires .....</i>   | <i>14</i> |

### CHAPITRE III : METHODE DE MONTE-CARLO ET TRAJECTOIRES ELECTRONIQUES DANS LES GAZ

|   |           |
|---|-----------|
| III.1 INTRODUCTION :.....                           | 17        |
| III.2. LA METHODE DE MONTE-CARLO .....              | 17        |
| <i>III .2.1 Les nombres pseudo-aléatoires.....</i>  | <i>17</i> |
| <i>III.2.2 La distribution rectangulaire :.....</i> | <i>18</i> |

|  |    |
|--|----|
| III .2.2.1 Théorème (Carmikhael 1910) :  | 18 |
| III.2.2.2 Distribution non rectangulaire :   | 19 |
| <b>III.3 SIMULATION DES TRAGECTOIRES ELECTRONIQUES PAR LA METHODE MONTE-CARLO</b>            |    |
| <i>III.3.1.1 Principe :</i>  | 20 |
| <i>III .3.2 Calcul des angles de diffusion <math>\theta</math> et <math>\varphi</math> :</i> | 21 |
| <i>III .3.3 Trajectories de l'électron:</i>  | 22 |
| III .3.3.1 Condition initiale :  | 22 |
| III .3.3.2 Coordonnées de l'électron   | 22 |
| III .3.3.3 Pouvoir d'arrêt :   | 23 |
| <i>III .3.4 Organigramme de la simulation :</i>  | 24 |

## **PARTIE II : PARTIE PRATIQUE**

|   |           |
|---|-----------|
| <b>CHAPITRE IV : APPLICATION A L'INTERACTION ELECTRON-GAZ DANS LE HPSEM</b> |           |
| <b>LE HPSEM</b>   | <b>29</b> |
| IV.1 INTRODUCTION   | 29        |
| IV .2 CALCUL DES SECTION EFFICACES DIFFUSIONS                               | 29        |
| IV .3 CALCULS DES TRAJECTOIRES ELECROniques                                 | 31        |
| IV.4 CALCUL DES RAYONS DE SKIRT   | 34        |
| <b>6 CONCLUSION</b>   | <b>38</b> |
| <b>7 REFERENCES</b>   |           |

## La liste des tableaux

| <b>Tableau</b> | <b>Titre</b>  | <b>Page</b> |
|----------------|---|-------------|
| <b>Tableau</b> | Valeurs du numéro atomique $Z$ , énergie d'ionisation $J$ et l'amplitude de diffusion $F_e$ |             |
| <b>1</b>       | (0) pour que gaz monoatomique .....   | 14          |

## La liste des figures

| Figure           | Titre  | Page |
|------------------|--|------|
| <b>Figure 01</b> | Les différentes collisions ionisantes dans un gaz au-dessus de la surface d'un échantillon non conducteur. Les étoiles (*) indiquent des collisions : A: ionisation due au faisceau primaire, B: ionisation due aux électrons rétrodiffusés, C: ionisation due aux électrons secondaires, D: ionisation due au champ électrique.....   | 02   |
| <b>Figure 02</b> | Système de pompage différentiel à deux.....  | 03   |
| <b>Figure 03</b> | Comparaison entre différentes images d'une particule de gibbsite obtenue par le détecteur d'électron rétrodiffusés, détecteur d'électron secondaires et le détecteur d'électron secondaires environnementaux (ESED).la gibbsite de la rangée supérieure est revêtue d'une couche conductrice.la microstructure sous formes d' anneaux de croissance est observée seulement dans la particule de gibbsite non revêtue en utilisant le détecteur d'électrons secondaires environnementaux (ESED).....                                      | 06   |
| <b>Figure 04</b> | Image obtenue dans l'ESEM pour une plante montrant l'effet de la nature du gaz et la pression sur la qualité des images obtenues en mode retro-diffusé. Energie du faisceau d'électron 1.5 keV et distance de travail 9.7 mm.....  | 07   |
| <b>Figure 05</b> | Variation du skirt pour (a) l'hélium et (b) l'aire en fonction du rayon du faisceau d'électrons primaires et de la pression du gaz .....   | 08   |
| <b>Figure 06</b> | Un électron après l'ouverture PLA1 de l'ESEM, se déplace le long de l'axe de PLA1, subit une collision à une distance entre $z$ et $z + dz$ sous un angle de $\theta + d\theta$ ; il est ensuite dispersé et arrive à la surface de l'échantillon dans un espace annulaire entre $r$ et $r + dr$ Dans un mode de diffusion simple où chaque point de l'échantillon excité par des électrons diffusés, émet un signal proportionnel au courant de ces électrons, la "fraction non diffusée" de l'électron le faisceau peut s'écrire ..... | 09   |
| <b>Figure 07</b> | Evolution en fonction de la pression de la "fraction non diffusée" calculée de l'électron primaire du faisceau dans l'hélium, l'azote, l'oxygène, l'argon pour $E= 20$ keV et une distance de travail de 2mm.....  | 10   |
| <b>Figure 08</b> | Variation du rayon du skirt pour différents nombres moyens de diffusion.....   | 11   |

|                  |  |    |
|------------------|--|----|
| <b>Figure 09</b> | La section efficace totale de quelque gaz moléculaire en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons primaire .....  | 15 |
| <b>Figure 10</b> | Elément caractéristique d'une étape de trajectoire d'un électron.....  | 20 |
| <b>Figure 11</b> | Organigramme de simulation des trajectoires électroniques et calcul des rayons de skirt par la méthode Monte-Carlo.....  | 25 |
| <b>Figure 12</b> | Variation de la section efficace totale de diffusion en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons primaires pour les gaz monoatomiques.....  | 29 |
| <b>Figure 13</b> | Variation de la section efficace totale de diffusion en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons primaires pour les gaz moléculaires.....   | 30 |
| <b>Figure 14</b> | Variation de la section efficace totale de diffusion en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons primaires pour les gaz moléculaires.....   | 31 |
| <b>Figure 15</b> | Trajectoires électroniques calculés dans la vapeur d'eau pour $E = 10$ keV, $L = 8.6$ mm et une température de $(-20^{\circ}\text{C})$ et pour 200 électrons avec une pression de 100 Pa pour l'image (a) et 10 Pa pour l'image (b).....                           | 32 |
| <b>Figure 16</b> | Trajectoires électroniques calculés dans la vapeur d'eau pour $E = 10$ keV, $L = 8.6$ mm, $P = 100$ Pa et pour 200 électrons avec une température de $(-20^{\circ}\text{C})$ pour l'image (a) et $(0^{\circ}\text{C})$ pour l'image (b).....                       | 33 |
| <b>Figure 17</b> | Variation du rayon de skirt calculé en fonction de la température pour la vapeur d'eau et pour les pressions de 10 et 100 Pa et pour $E = 10$ keV, $L = 8.6$ mm et pour 200 électrons.....   | 34 |
| <b>Figure 18</b> | Présentation des courbes de la variation du rayon de skirt en fonction de la température obtenues par le calcul des trajectoires par la méthode de Monte-carlo et par le calcul par l'expression de Danilatos pour $P = 10$ Pa, $E = 10$ keV, et $L = 8.6$ mm..... | 35 |



|                      |  |    |
|----------------------|--|----|
| <b>Figure<br/>19</b> | Présentation des courbes de la variation du rayon de skirt en fonction de la température obtenues par le calcul des trajectoires par la méthode de Monté-carlo et par le calcul par l'expression de Danilatos pour $P = 100 \text{ Pa}$ , $E = 10 \text{ keV}$ , mm..... | 36 |
|----------------------|--|----|

La naissance de la microscopie électronique à balayage (MEB) (*SEM* pour *Scanning Electron Microscopy*), dans les années 30 et 40, a représenté une percée majeure dans l'étude de la microstructure, de la composition et des propriétés des matériaux en vrac. Le MEB combine l'imagerie haute résolution avec une grande profondeur de champ, grâce aux courtes longueurs d'onde des électrons et à leur capacité à se concentrer à l'aide de lentilles électrostatiques et électromagnétiques. En outre, la forte interaction des électrons avec la matière produit une grande variété de "signaux" utiles qui révèlent toutes sortes de secrets sur la matière au niveau microscopique et même nanoscopique [1].

La microscopie électronique à balayage (MEB) est traditionnellement réalisée dans le vide, la grande majorité des microscopes fonctionnant à des pressions inférieures à 10<sup>-6</sup> Pa. Un nombre de fabricants proposent désormais des installations SEM à des pressions relativement élevées. Le terme haute pression la microscopie électronique à balayage (HPSEM) a été inventée [2, 3] pour distinguer ces techniques.

Généralement, le terme HPSEM s'applique à tout SEM dans lequel la chambre échantillon n'est pas soumise au vide à cause de son occupation par la présence d'un gaz qui est introduit dans le but de créer un nombre suffisant d'ions après la collision des atomes neutres du gaz avec les électrons du faisceau primaire. Cette quantité d'ions va servir à annihiler l'excès de charge négative créée dans l'échantillon après l'irradiation de ce dernier par les électrons du faisceau primaire. L'inconvénient de cette méthode c'est que la présence du gaz sur le trajet du faisceau primaire va le dévier de sa direction initiale donnant naissance ainsi à un élargissement du faisceau d'électrons primaire qu'on appelle le "skirt". Le but de ce document est de calculer par la méthode de Monte Carlo la trajectoire du faisceau primaire dans le gaz pour différents paramètres utilisés dans le HPSEM, tel que : la distance de travail, l'énergie du faisceau primaire, la pression du gaz, la nature du gaz et la température. Cette étude va nous permettre de minimiser ces paramètres dans le but de se placer dans les meilleures conditions afin d'obtenir un faible skirt et un nombre suffisant d'ions qui permet de contrebalancer ou d'annihiler l'excès de la charge négative créée au niveau de l'échantillon.

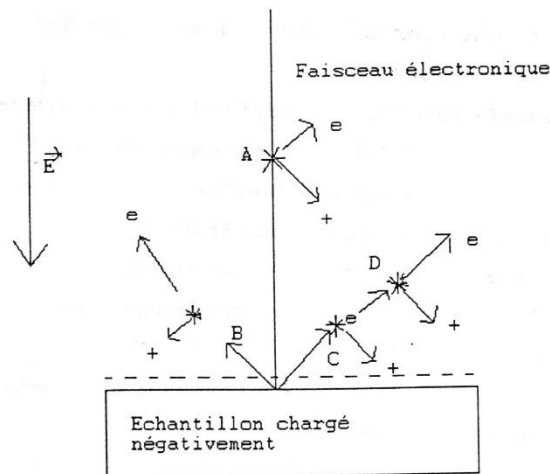
## **I. Le Microscope électronique à balayage à haute pression**

### **I.1. Définition du HPSME**

Le microscope électronique à balayage à haute pression (HPSEM) est un microscope qui permet de travailler avec un environnement gazeux dans la chambre de l'échantillon. Ceci permet l'observation de n'importe quel échantillon, humide ou sec, conducteur ou isolant. Son invention avait comme objectif d'annihiler les charges statiques consistant en excès d'électrons et qui apparaissent sur la surface de l'échantillon et perturbent les signaux recueillis dans le SEM traditionnel (Scanning électrons microscope). En même temps, Le faisceau d'électrons incidents va se dévier de sa trajectoire initiale après son pénétration dans une zone de champ électrostatique. Les images SEM sont ainsi distordues et les analyses X en énergie ou en longueur d'onde sont moins précises et moins reproductibles. L'élimination de cette charge statique est traditionnellement réalisée en déposant un film mince métallique (typiquement quelques nm) sur la surface de l'échantillon qui est branché avec la masse.

L'annihilation de la charge statique de l'échantillon analysé dans le HPSEM consiste à introduire un gaz dans l'enceinte de la chambre échantillon et l'ioniser après la collision des électrons du faisceau d'électrons primaire avec les atomes ou les molécules neutres du gaz qui se trouvent sur leurs chemins. La quantité d'ions positifs après leur réorientations vers la surface de l'échantillon par un champ électrique appliqué au niveau de la chambre échantillon va servir à annihiler les charges négatives présentes en surface de l'échantillon.

Après avoir défini le HPSEM sur la base ses applications, nous décrivons dans ce qui suit son principe physique de fonctionnement. La figure (1) résume les interactions essentielles conduisant à l'ionisation du gaz dans la chambre d'analyse.



**Figure 1.** Les différentes collisions ionisantes dans un gaz au dessus de la surface d'un échantillon non conducteur. Les étoiles (\*) indiquent des collisions : A: ionisation due au faisceau primaire, B: ionisation due aux électrons rétrodiffusés, C: ionisation due aux électrons secondaires, D: ionisation due au champ électrique[4]:

De la **figure 1** demeure hypothétique, l'énergie des électrons secondaires n'étant probablement pas suffisante pour produire l'ionisation des molécules ou atomes gazeux. Les différentes interactions susceptibles de se produire dans la chambre d'analyse seront décrites plus loin dans ce chapitre.

A l'instar des SEM conventionnels, le HPSEM comprend une région qui doit être maintenue sous un vide secondaire (moins de  $10^{-2}$  Pa). De plus, de par sa définition, le HPSEM doit comporter une région de haute pression (jusqu'à plusieurs centaines de Pa). Ces deux régions sont séparées par un système d'ouvertures (PLA : "Pressure limiting aperture"). Le système de base comprend deux ouvertures notées PLA1 et PLA2 (pompage différentiel à deux étages). La région comprise entre PLA1 et PLA2 est une zone intermédiaire où la pression n'est pas uniforme

## I.2. Le pompage différentiel

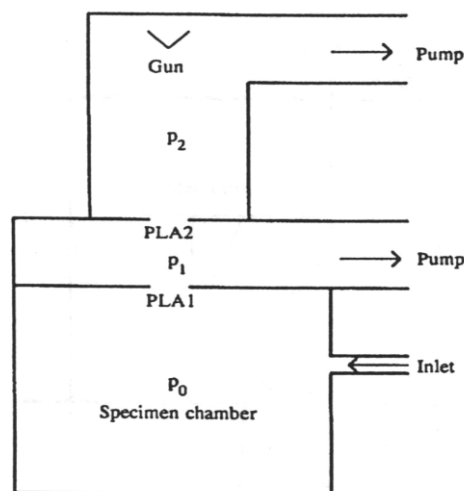
Le HPSEM comprend donc une colonne d'électrons, un système de détection, et un système de pompage. Le fonctionnement est optimisé lorsque le gradient de pression le long du parcours du faisceau primaire permet le transfert du flux d'électrons avec un minimum de perte due aux collisions avec les particules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

Historiquement et technologiquement, le développement des HPSEM est passé par trois étapes essentielles :

- (a) Dynamique des gaz et transfert du faisceau d'électron.
- (b) Systèmes de détection.
- (c) Conception de l'optique électronique.

Le développement de la première étape a donné naissance à la deuxième étape. De la même manière, la troisième étape est en relation étroite avec la deuxième. Les deux premières étapes sont essentielles car elles déterminent l'existence même du HPSEM. Leur développement a conduit à la construction des premiers prototypes.

La première modification apportée au HPSEM par rapport au SEM est l'incorporation d'un système de pompage différentiel montré sur la figure 0 2. Un système de pompage à deux étages est le minimum requis pour le fonctionnement de tout HPSEM. Un tel système permet d'obtenir un vide dans la colonne optique, qui autorise l'utilisation de filaments en tungstène. Mais, l'utilisation de filaments en La B<sub>6</sub> ou de canons à émission de champ, requière un système plus sophistiqué à plusieurs étages. Il convient de noter cependant que les étages supplémentaires introduits ne permettent pas de diminuer le taux de perte d'électrons de façon significative. C'est pour cette raison que nous nous sommes limité à la description du système de base sur lequel est basé la formulation des équations décrivant le transfert du faisceau d'électrons que nous verrons au chapitre suivant [4].



**Figure 2** : Système de pompage différentiel à deux

### I.3. Les différents types du HPSEM

Le microscope électronique à balayage à haute pression (HPSEM) comme définit précédemment englobe différents types de microscopes qui sont utilisés pour des utilisations

bien précises avec des gammes de pression et des modes de détections bien définis. On peut citer parmi ces microscopes [5]:

- le VPSEM (Variable Pressure SEM), qui englobe les HPSEM qui fonctionnent avec une gamme de pression comprise entre ( $10^{-4}$  et 300 Pa). Parmi ces microscopes on peut citer:
  - le NSEM (Naturel Scanning Electron Microscope) qui fonctionne avec une gamme de pression qui varie entre 1 et 300 Pa.
  - le CPSEM (Controlled Pressur Scanning Electron Microscope) dont, la gamme de pression varie de 2.66 Pa à 266.66 Pa.
- l'ESEM (Environmental Scanning Electron Microscope) qui comprend les HPSEM qui fonctionnent avec une gamme de pression comprise entre ( $10^{-4}$  jusqu'à des pressions de 640 Pa, et pour certains auteurs jusqu'à 50 torrs [6].

#### **I.4.Imagerie en électron secondaires**

La détection d'électrons secondaires (Ses) se complique par la présence de gaz surtout si un potentiel de plusieurs KV est requise pour une accélération supplémentaire. En effet, le détecteur **Everhart-Thornley** qui est couramment utilisé dans le MEB conventuel comme le dispositif plus sensible pour la détection des électrons secondaires ne fonctionne pas correctement dans le MEB-PV cause de l'effet de la décharge électrique [7] en plus, les ES n'arrivent pas à atteindre le détecteurs E-T car leur libre parcours moyen est de "Seulement quelques millimètre à une pression 0.5 Torr ou le détecteur E-T est placé a quelque centimètre". En conséquence plusieurs nouveaux détecteur ont été développés de puis les premier expérience réalisés dans un milieu gazeux par Robinson [8] ces détecteur sont divisée en deux catégories : (a) Détecteur basé sur l'utilisation du gaz lui-même comme un moyen de détection ; ceci signifie l'utilisation d'un dispositif de détection de gaz appelé "the gaseous détection de vice-GDD [9]".celle-ci repose sur le fait que les SEs qui quittent la surface de l'échantillon vont ioniser les atomes /molécules du gaz. Ces ions sont ensuite accélérés vers le détecteur positivement .Pendant leurs trajets, ils entre en collision avec d'autre et atomes /molécules neutre qui génèrent d'autre événement d'ionisation dans un processus de cascade multiplicative. Les ions négatifs sont finalement recueilles sur la détecteur pour produire le signale .tandis que les ions positifs dérivent vers l'échantillon et neutralisent les régions chargées négativement. Les images d'électrons secondaires peuvent

être obtenus en mesurant le courant induit dans l'électrode positive (the gaseous electron detector) ou en mesurant le courant ionique induit dans l'échantillon (the ions current detector [10, 11, 12]. (b) les détecteur à scintillation ou les SEs doivent être accélérés à une énergie de l'ordre de plusieurs KeV par un champ électrostatique afin de produire efficacement des scintillations dans un matériau scintillateur. Par l'intermédiaire d'un photomultiplicateur on peut mesurer l'émission de la lumière émise du gaz (the gas luminescence detector). D'autres technologies pour la détection des ESs ont été proposées comme l'amplificateur à deux étages pour ultra-haute résolution [12, 13] et le détecteur d'électron secondaire à pompage différentiel [14, 15]. Récemment un nouveau type de détecteur à scintillation a été introduit [16]. Le concept de ce détecteur diffère des autres en ayant deux ouvertures de limitation de pression agissant comme une lentille électrostatique pour la transmission de signaux d'électron au scintillateur. Le détecteur est capable de fonctionner à des pressions de vapeurs d'eau dans la chambre d'analyse de 10 Pa à 1000 Pa.

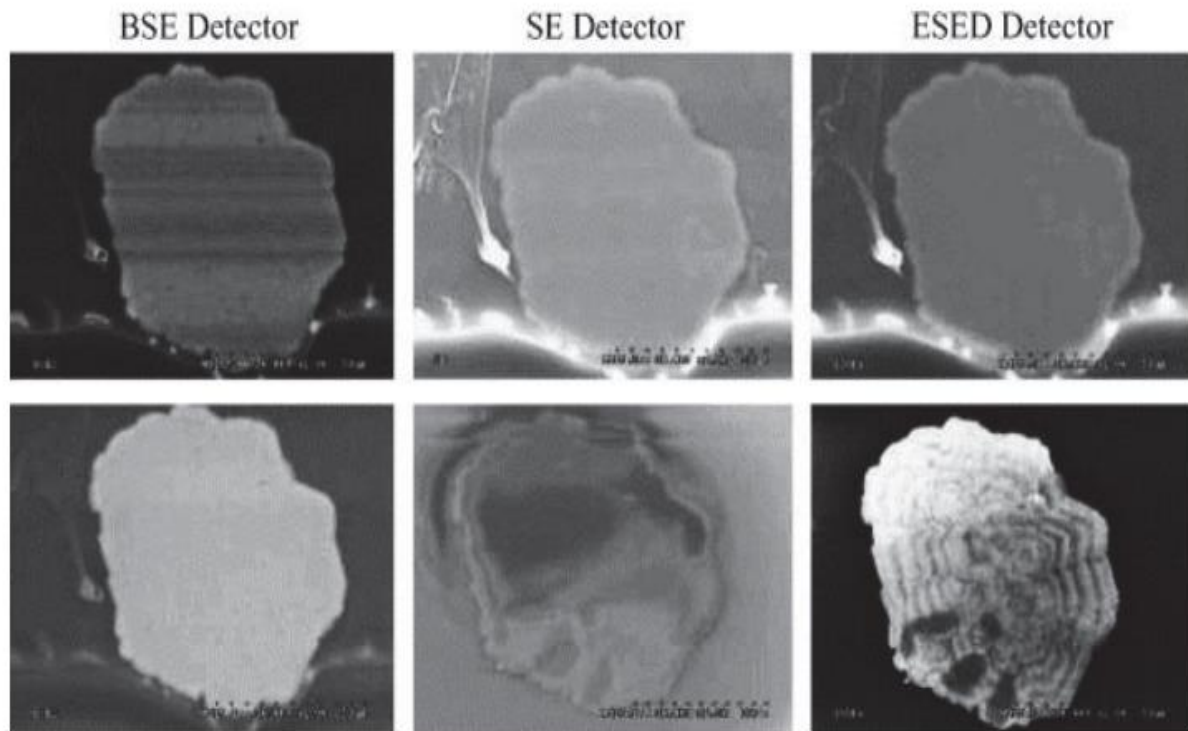
### **I.5. Imagerie en électron rétrodiffusés**

Le signal de l'électron rétrodiffusé (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 Robinson [17]. Puis l'imagerie en électron rétrodiffusés atteint l'apogée de son développement à la suite de l'utilisation des détecteur de type scintillateur [18]. d'une manière générale, les détecteur des électrons rétrodiffusés sont basés sur :

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

### **I.6. Résolution spatiale**

Dans le MEB-BV, l'imagerie en électron secondaire est prédominante par rapport à l'imagerie en électron rétrodiffusés et cela peut être attribué à l'idée que la première offre une meilleure résolution que la seconde. L'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 de 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 des images peuvent être corrigées même à haute pression.



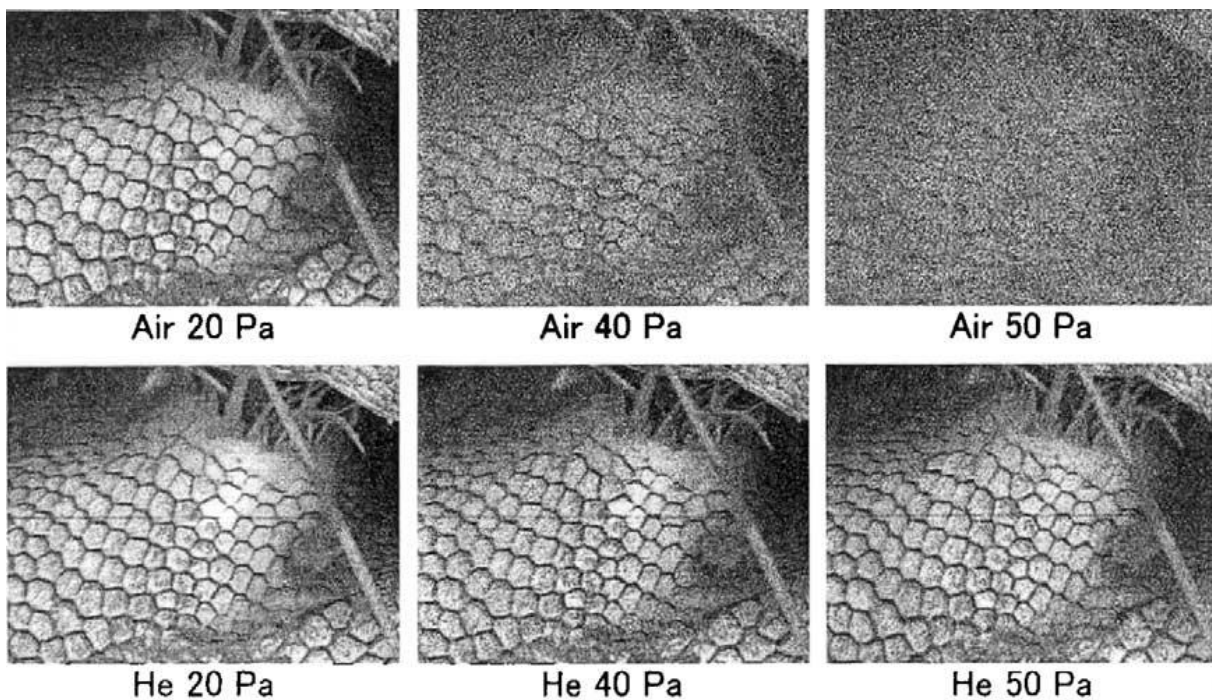
**Figure 03.** Comparaison entre différentes images d'une particule de gibbsite obtenue par le détecteur d'électron rétrodiffusés, détecteur d'électron secondaires et le détecteur d'électron secondaires environnementaux (ESED).la gibbsite de la rangée supérieure est revêtue d'une couche conductrice.la microstructure sous formes d' anneaux de croissance est observée seulement dans la particule de gibbsite non revêtue en utilisant le détecteur d'électrons secondaires environnementaux (ESED ) [19]



## II : Principes de l'interaction électron gaz dans le HPSEM

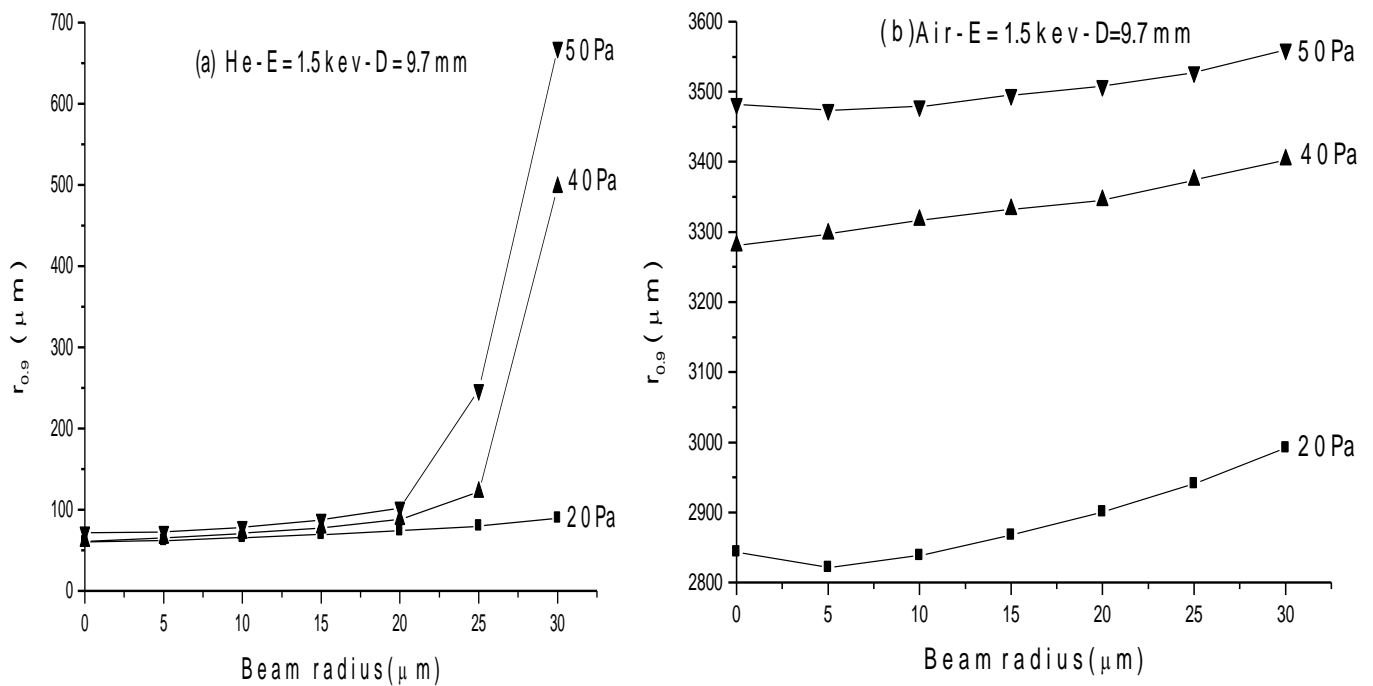
### II. 1. Introduction

Dans la chambre d'analyse d'un MEB à pression variable l'interaction entre le faisceau d'électron primaire et l'environnement gazeux 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 excités, (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 [20]. L'utilisation d'hélium a permis une amélioration du contraste chimique des images et de la stabilité des résultats de microanalyse ce qui le classe en premier rang devant les autres gaz comme l'air (voir **figur 4** et **figure 5**).



**Figure 4** : Image obtenue dans l'ESEM pour une plante montrant l'effet de la nature du gaz et la pression sur la qualité des images obtenues en mode retro-diffusé.

Energie du faisceau d'électron 1.5 keV et distance de travail 9.7 mm



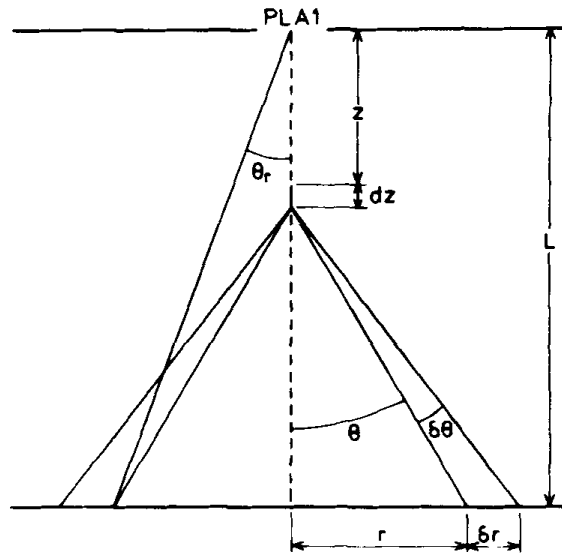
**Figure 05 :** Variation du skirt pour (a) l'hélium et (b) l'air en fonction du rayon du faisceau d'électrons primaires et de la pression du gaz [21]

De la même manière, l'augmentation du rapport signal / bruit permet une amélioration de la limite de détection du système de microanalyse. Malgré les avantages de l'hélium, une importante focalisation du faisceau d'électrons, peut induire une augmentation de la température de la surface de l'échantillon en provoquant sa dégradation notamment pour les matériaux fragiles ou une déshydratation des échantillons hydratés. Il est possible à notre avis d'éviter ce problème en utilisant l'effet Peltier ou en travaillant à basse Température. Lorsque l'utilisation de vapeur d'eau comme gaz dans la chambre de l'ESEM est nécessaire, il est important d'effectuer un étalonnage du système de microanalyse en fonction de la pression. Dans la plupart de l'étude que nous avons réalisée, il est essentiel de développer des méthodes de correction afin d'obtenir résultats fiables de la microanalyse dans l'ESEM [22].

## II. 2. Considérations Théoriques

Dans le HPSEM la situation se complique par la présence de gaz. Différentes interactions apparaissent entre le faisceau d'électrons primaires et les atomes ou molécules de gaz avant

l'arrivée du faisceau sur la surface de l'échantillon .Ces interactions provoquent une partie du faisceau d'électrons à diffuser (**Fig 06**). généralement le faisceau d'électrons primaire sera divisé en deux parties: une première partie appelée "fraction non diffusée" et une deuxième partie nommée "fraction dispersée" ou "skirt". Pour une tension d'accélération et une distance de travail donnée, le pourcentage de ces deux fractions sera en fonction de la nature du gaz utilisé et de la pression dans la chambre à échantillon de l'ESEM

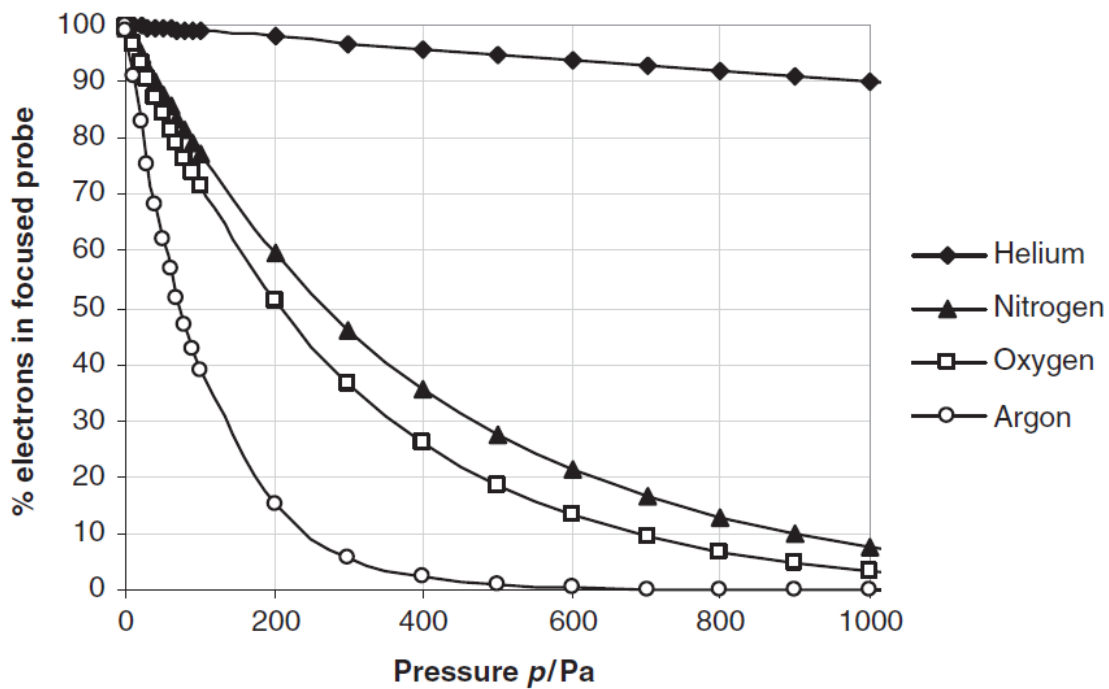


**Figure 6 :** Un électron après l'ouverture PLA1 de l'ESEM, se déplace le long de l'axe de PLA1, subit une collision à une distance entre  $z$  et  $z + dz$  sous un angle de  $\theta + d\theta$ ; il est ensuite dispersé et arrive à la surface de l'échantillon dans un espace annulaire entre  $r$  et  $r + dr$ . Dans un mode de diffusion simple où chaque point de l'échantillon excité par des électrons diffusés, émet un signal proportionnel au courant de ces électrons, la "fraction non diffusée" de l'électron le faisceau peut s'écrire [20]:

$$\frac{I}{I_0} = \exp\left(-\frac{P \times L \times \sigma_t}{K \times T}\right) \quad (\text{II.1})$$

$I / I_0$ : "fraction non diffusée" du faisceau d'électrons  $P$ : pression dans la chambre à échantillon,  $L$ : distance de travail (distance entre l'ouverture finale PLA1 (Fig.3) et la surface de l'échantillon)  $\sigma_t$ : la section efficace de diffusion est spécifique à chaque molécule de gaz  $K$ : constante de Boltzman,  $T$ : Température en Kelvin

Sur la **figure 07**, nous présentons l'évolution théorique de la "fraction non diffusée" calculée pour un faisceau d'électrons en fonction de la pression de la vapeur d'eau et de l'hélium



**Figure 07 :** Evolution en fonction de la pression de la "fraction non diffusée" calculée de l'électron primaire du faisceau dans l'hélium, l'azote, l'oxygène, l'argon pour  $E= 20$  keV et une distance de travail de 2mm [23]:

On peut remarquer une nette différence entre l'évolution de cette fraction dans chaque cas. En effet, à 2Torr (266 Pa), le pourcentage de cette fraction est d'environ 85% pour l'hélium alors qu'il est de 28% la vapeur d'eau. À 4 Torr (532 Pa), cette fraction représente plus de 50% de la fraction totale en l'hélium et est très faible dans la vapeur d'eau. Cela aura des effets évidents sur la qualité de l'image et les résultats de la microanalyse comme nous le montrerons plus loin [22,24].

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

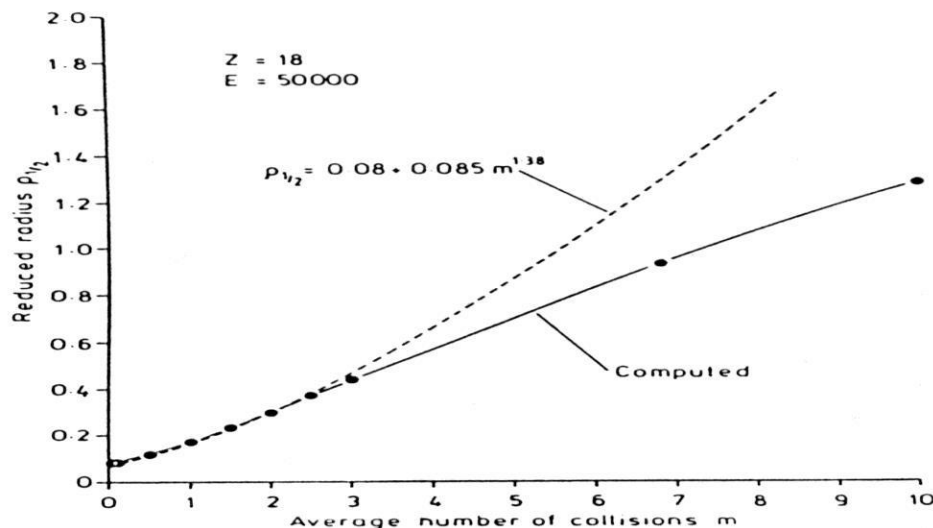
Le profil d'un faisceau infiniment fin (Le diamètre de la sonde est négligé) peut être utilement décrit en introduisant le rayon réduit défini par [25].:

$$\rho = \frac{2\pi Rr}{\lambda L} = \frac{\theta}{\theta_0} = \frac{r}{\theta_0 L} = \frac{r}{r_0} \tag{II. 2}$$

En introduisant ce changement, le profil du faisceau en fonction de  $\rho$  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  $\rho$  si tous les autres paramètres sont fixes . $\rho$  est équivalent au

nombre des unités  $r_0$  dans  $r$  avec  $r_0 = \theta_0 L$ . Il mesure le "taux de déviation". Schumacher [26] 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  $B$  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 08**.



**Figure 08** : Variation du rayon du skirt pour différents nombres moyens de diffusion [19]

La courbe obtenue à 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 se Ai une collision mais lorsque cela se produit, il en résulte un élargissement fini du faisceau d'électron. Cela est présenté sur la figure 9.

La partie de la courbe correspondant au régime d'oligo-scattering peut être décrite par la loi [20]:

$$\rho_{1/2} = 0.08 + 0.0848m^{1.38} \quad (\text{II. 3})$$

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 [27] donnent la relation :

$$r_{1/2} \approx L^2 \quad (\text{II. 4})$$

qui ne paraît pas correspondre à l'équation (II. 11). Cependant, si on utilise l'équation (II. 5) et en écrivant :

$$m = 7.243 \times 10^{22} \frac{\sigma_T}{T} P \quad (\text{II. 6})$$

On obtient l'équation finale de  $r_{0.5}$  [20]:

$$r_{1/2} = 0.0039L + 0.00155L(P.L)^{1.38} \quad (\text{II. 7})$$

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

Une relation obtenue pour Ar pour une tension d'accélération de 10 keV et à la température 293K [20]:

$$r_{1/2} = 0.0096.L + 0.0196L(P.L)^{1.78} \quad (\text{II. 8})$$

Smith et Schumacher [26,28] ont donné une formule pour calculer le skirt qui est la suivante :

$$r_{1/2} = \frac{793.19 Z}{\beta^2(E+E_0)} \left[ \frac{Z(Z+1)P}{T} \ln \frac{192\beta}{Z^{1/3}} \right]^{1/2} L^{3/2} \quad (\text{II.9})$$

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

Concernant l'élargissement du faisceau d'électron après passage dans un gaz moléculaire, Danilatos et le demi-rayon  $r_{0.5}$  pour  $N_2$  [20]:

$$r_{0.5} = \frac{0.00354L + 0.001239.P_0L}{(E + 9.778 \times 10^{-7} E^2)^{1/2}} \quad (\text{II. 10})$$

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 [20]:

$$r_{0.5} = (364Z / E)(P / T)^{1/2} L^{3/2} \quad (\text{II. 11})$$

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

Z : nombre atomique du gaz

E : énergie du faisceau, (eV)

P : pression, (Pa)

T: température, (K)

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

## II. 4. Sections efficaces de diffusions

### II. 4.1. Sections efficaces de diffusions pour les gaz monoatomiques :

Il est d'une importance fondamentale d'étudier la diffusion du faisceau d'électrons résultante la collision des électrons avec les molécules ou les atomes du gaz, ici aussi, les données expérimentales manquent pour les gaz usuels tels qu'O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> ou H<sub>2</sub>O (vapeur d'eau). 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 [20]

$$\frac{d\sigma_e}{d\Omega} = \frac{Az}{16 \left[ \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) + \sin^2\left(\frac{\theta_0}{2}\right) \right]^2} \quad (\text{Section efficace différentielle élastique}) \quad (\text{II.12})$$

$$\frac{d\sigma_i}{d\Omega} = \frac{A(\theta^2 + \theta_E^2 + 2\theta_0^2)}{(\theta^2 + \theta_E^2)(\theta^2 + \theta_E^2 + \theta_0^2)^2} \quad (\text{Section efficace différentielle inélastique}) \quad (\text{II.13})$$

$$\sigma_T = \sigma_e + \sigma_i \quad (\text{Section efficace Totale}) \quad (\text{II.14})$$

$$\text{Avec : } \theta_0 = \frac{\lambda}{2\pi R} \quad (\text{II. 15})$$

$$\theta_E = \frac{J}{4E} \quad (\text{II.16})$$

$$A = \frac{\lambda^4 z \left(1 + \frac{E}{E_0}\right)^2}{4\pi^4 a_H^2} \quad (\text{II.17})$$

$\lambda$  est la longueur d'onde de l'électron, donnée par :

$$\lambda = 1.226 \times 10^{-9} [ E(1 + 0.9778 \cdot 10^{-6} E) ]^{-0.5} \quad (\text{II.18})$$

Avec :

R : rayon de l'atome(m) .

J : énergie d'ionisation (ev)

E : énergie du faisceau électronique (en eV)

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

$$a_H = 5.29 \cdot 10^{-11} \text{m} \text{ (rayon de Bohr)} \quad R = \left[ f_e(0) \cdot \frac{a_H}{2Z} \right]^{0.5}$$

$f_e(0)$  : étant l' amplitude de la diffusion atomique pour un angle de diffusion égale à zéro (Ibers and vainstein1962)[20]

| Atome | Z | J (eV) | $f_e(0)(10^{-10} \text{m})$ |
|-------|---|--------|-----------------------------|
| O     | 8 | 13.62  | 2.01                        |
| H     | 1 | 13.6   | 0.529                       |
| N     | 7 | 14.53  | 2.2                         |
| He    | 2 | 24.59  | 0.445                       |

**Tableau 1.** Valeurs du numéro atomique Z , énergie d'ionisation J et l'amplitude de diffusion  $f_e(0)$  pour quelque gaz monoatomique .[20].

#### II. 4.2. Sections efficaces de diffusions pour les gaz moléculaires

La section efficace de diffusion totale d'une molécule n'est pas simplement la somme de sections élastiques et inélastiques. Des effets supplémentaires sont présents en raison à la liaison des atomes dans les molécules, car la région extérieure est principalement responsable de la diffusion aux plus petits angles dans le cas d'une diffusion cohérente, la section efficace différentielle élastique s'écrit :

$$\left( \frac{d\sigma_e}{d\Omega} \right) = \sum n \sum_j f_n(\theta) f_j \frac{\text{Sin}(s \cdot r_{nj})}{s \cdot r_{nj}} \quad (\text{II.19}) \quad \text{avec } s =$$

$$\frac{4\pi \text{Sin}\left(\frac{\theta}{2}\right)}{\lambda} \quad (\text{II. 20})$$



$$|f_n(\theta)|^2 = \left( \frac{d\sigma_e}{d\Omega} \right)_A \tag{II.21} \text{ avec}$$

les conditions suivant :

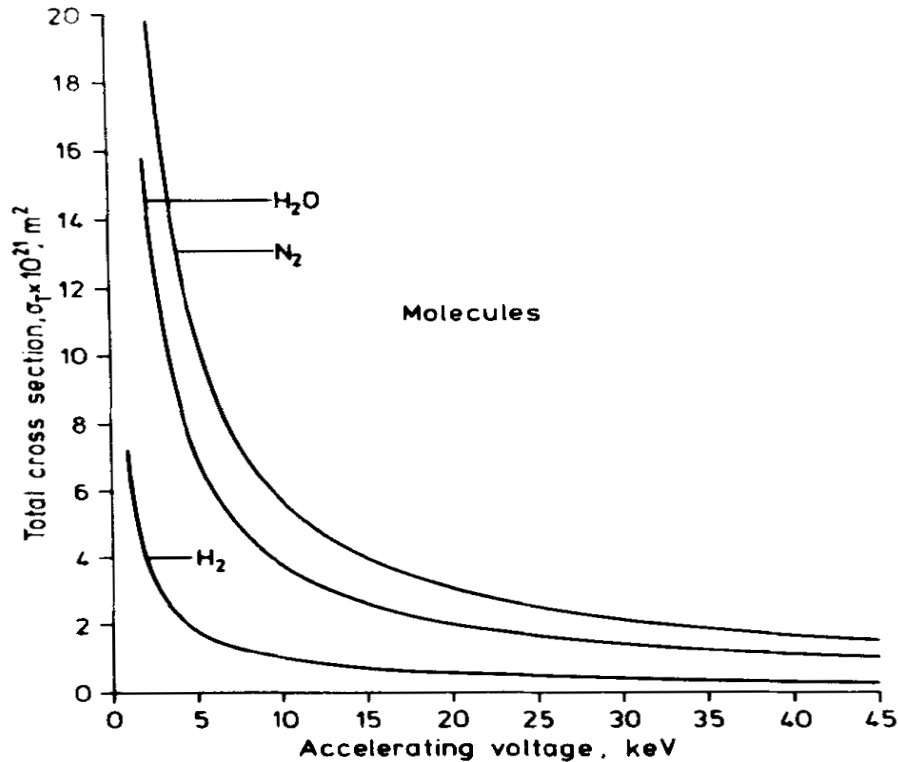
$$\frac{2\pi d_0}{\lambda} \gg 1 \text{ et } d_0 \gg r_m$$

la fonction  $f_n(\theta)$  est l'amplitude de diffusion pour un angle de diffusion égale à  $\theta$  et  $r_{nj}$  est la distance entre les centre de diffusion de l'atome  $n$  et l'atome  $j$ .

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.

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.

$$\frac{d\sigma_i}{d\Omega} = \sum_j \frac{d\sigma_{ij}}{d\Omega} \tag{II.22}$$



**Figure 09 :** La section efficace totale de quelque gaz moléculaire en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons primaire [20].

La figure 09 montre trois sections efficaces de diffusion en fonction de l'énergie du faisceau primaire pour  $N_2$ ,  $H_2O$ ,  $H_2$  obtenus en utilisant la théorie énoncée plus haut. Ils ont

également été choisis parce qu'ils sont des gaz couramment employés dans VPSEM. On peut voir que la section efficace de diffusion  $N_2$  est la plus grande, suivis par  $H_2O$ , en dépit de la théorie classique montrant que  $H_2O$  a le plus grand diamètre suivie par  $N_2$ . Les diamètres de  $N_2$  et  $H_2O$  sont de  $3,75 \text{ \AA}$  et de  $4,60 \text{ \AA}$ , respectivement [24].

### III. Méthode de Monte-Carlo et trajectoires électroniques dans les gaz

#### III. 1. Introduction

La méthode de Monte-Carlo, utilisée fréquemment pour modéliser les phénomènes aléatoires, est appliquée dans notre cas pour calculer les trajectoires des électrons du faisceau au cours de son parcours dans la chambre d'analyse du HPSEM. On en déduit simultanément les différents paramètres qui résultent de l'interaction électron-gaz, tel que le nombre moyen de collision, la fraction des électrons non diffusés, l'élargissement du faisceau. Le principe repose sur un tirage statistique d'événements.

En effet, après chaque collision entre électron primaire et atome du gaz, la direction de l'électron primaire et son énergie sont modifiées. Entre deux événements, la moyenne du trajet rectiligne est appelée "libre parcours moyen" (noté  $\lambda_e$ ).

#### III. 2. La méthode de Monte-Carlo

La vraie naissance de la méthode de Monte-Carlo est liée à l'apparition des premiers ordinateurs et à leur utilisation dans le cadre des projets du département de défense des Etats Unis dans les années 40-50 en vue de la conception des premières bombes atomiques. L'un des premiers articles sur le sujet fut publié en 1949 . Les précurseurs de ces méthodes s'appellent Ulam , Von Neumann , Metropolis[28] ,...

On désigne par le vocable générique de « méthode de Monte-Carlo » toute méthode numérique utilisant le tirage au hasard des nombres aléatoires dans un ensemble de valeurs équiprobables, d'une manière analogue au jeu de roulette dans laquelle cette dernière s'arrête sur une case libre au hasard parmi un ensemble de cases qui ont une probabilité égale à sortir.

##### III. 2. 1. Les nombres pseudo-aléatoires

On entend par suite de nombres pseudo-aléatoires, toute suite constructible dont les propriétés statistiques sont proches de celles de la suite  $(x_1, x_2, \dots)$  où les  $x_i$  sont des variables aléatoires indépendantes de la loi uniforme sur  $[0,1]$ . La génération d'une suite de nombres pseudo-aléatoires suit plusieurs distributions parmi lesquelles nous citons :

- La distribution rectangulaire.
- La distribution non rectangulaire.

**III. 2. 2. La distribution rectangular:**

La formule la plus utilisée pour générer les nombres aléatoires par la distribution uniforme est [29]:  $x_i = (a * x_{i-1} + c) \text{mod}[m]$  (III. 1)

$i$  : variable entière positive différente de zéro

$a, c, m$  : variables entières positives différentes de zéro.

Nous remarquons que la séquence est périodique et que  $x_i$  reste toujours inférieur à  $m$  quel que soit  $i$ , ce qui signifie que la période de génération n'excède jamais la valeur de  $m$ .

L'utilité de cette distribution est de générer des nombres pseudo aléatoires,  $r_i$  uniformes, compris entre 0 et 1 en utilisant la relation suivante :

$$r_i = \frac{x_i}{m} . \quad \text{(III. 2)}$$

Si ces suites ont un comportement suffisamment erratique pour que la suite de leur termes puissent être considérée comme aléatoire, elles présentent le principal problème suivant : lorsque l'on retombe sur une valeur déjà atteinte ( $x_n = x_{n+k}$ ) alors tout le reste de la suite se déroule à l'identique ( $x_{n+j} = x_{n+k+j}$ ).il faut donc entre autres s'assurer que la période de notre suite est raisonnablement grande. A cet égard, les générateurs de nombres pseudo-aléatoires intégrés dans les ordinateurs sont souvent insuffisants pour les besoins de la simulation. Pour certains, la période est de l'ordre de 65000 alors que le nombre de termes peut dépasser un million [30, 31].

Un générateur de nombres pseudo-aléatoires pour simuler n'importe quel phénomène physique doit posséder les propriétés suivantes :

- Bonne propriété physique.
- Efficacité.
- Longue période.
- Reproductibilité

**III.2. 2.1. Théorème (Carmikhael 1910) :**

Un générateur modulateur possède une période  $(m-1)$  si les conditions suivantes sont vérifiées :

- (i)  $m$  est un nombre premier.

(ii) a est la racine m<sup>ie</sup>me de m c'est à dire  $a^m = 1 \pmod{m}$ .

La condition (i) est nécessaire parce que si d est un diviseur de m et si X est multiplicateur de d alors la procédure donne des multiples de m.

La constante b peut être considérée nulle, ce qui nous permet d'écrire le générateur P1 sous la forme:

$$x_i = a \cdot x_{i-1} \pmod{m}. \tag{III. 3}$$

Usuellement on utilise des constantes très grandes dans le but d'obtenir une période très grande qui est de l'ordre  $10^8$ , ou même de l'ordre  $10^{137}$  [25], ces constantes possèdent un nombre de bit qui peut atteindre la capacité maximum que peut atteindre la machine (exemple :  $a = 314125421$ ,  $b = 2^{24} = 16777216$  [30]). Pour éviter les problèmes d'"overflow" des machines, on ajoute la procédure suivante dans le générateur de nombre aléatoire P1.

$$x_i = x_i \cdot a$$

$$\text{Si } (x_i < 0) \text{ alors } x_i = x_i + m + 1. \tag{III. 4}$$

### III. 2.2.2. Distribution non rectangulaire

Souvent, comme dans le cas traité dans ce travail, on est obligé d'utiliser des nombres aléatoires  $R_n$  dont la distribution n'est pas uniforme entre a et b (a et b peuvent être infinis).

Si on peut engendrer un tel ensemble de nombre  $R_n$  la proportion de ces nombres tel que :  $x \leq R_n \leq x + dx$  vaut  $f(x) dx$ , autrement dit, la probabilité pour que  $R_n$  soit dans l'intervalle  $[x, x+dx]$  est  $f(x)dx$  :

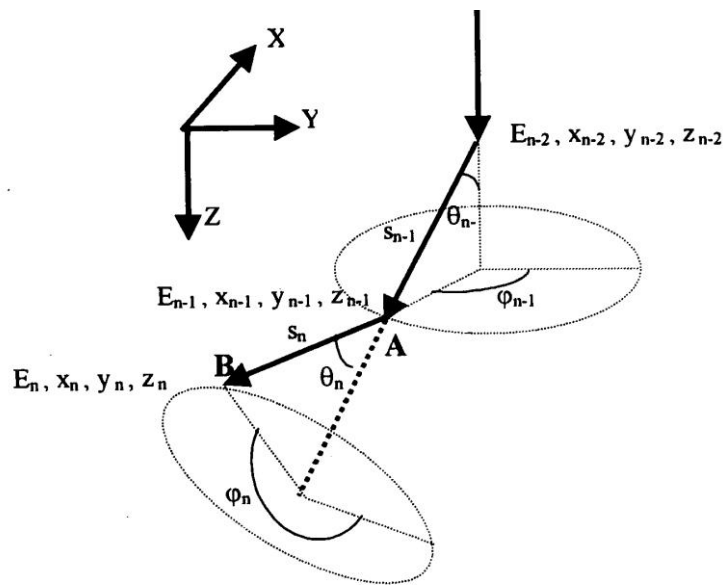
$$r = \frac{\int_a^{\theta} f(x).dx}{\int_a^b f(x).dx} \tag{III. 5}$$

Cette relation est utilisée en physique statistique microscopique pour calculer l'angle de diffusion.

### III. 3. Simulation des trajectoires électroniques par la méthode Monte-Carlo

#### III. 3. 1. Principe:

Dans notre étude, on tient compte des collisions élastiques et inélastiques pour déterminer les trajectoires des électrons et le pouvoir d'arrêt des électrons non rétrodiffusés et non transmis. La diffusion élastique décrite par la section efficace de Lenz (voir chapitre (II) ) entraîne des déflexions angulaires qui peuvent être importantes tandis que le modèle de collision inélastique ne produit seulement que des déflexions de quelques radians (de l'ordre  $10^{-3}$  radians)[4]. Ces deux types de collision influent simultanément sur le libre parcours moyen des électrons.



**Figure 10** : Élément caractéristique d'une étape de trajectoire d'un électron.

La distance entre deux chocs successifs appelée "pas" varie aléatoirement, la probabilité qu'un électron parcourt une distance  $s$  quand le libre parcours moyen est  $\lambda_e$  est donné par [29] :

$$p(s) = \frac{1}{\lambda_e} \exp\left(-\frac{s}{\lambda_e}\right) \quad (\text{III. 6})$$

La fonction de répartition s'écrit alors :

$$f(s) = \frac{\int_0^s \exp\left(-\frac{s}{\lambda_e}\right).ds}{\int_0^\infty \exp\left(-\frac{s}{\lambda_e}\right).ds} \quad (\text{III. 7})$$

En posant  $f(s)=1 - R_{n1}$  ou  $R_{n1}$  est un nombre aléatoire (fonction random) distribué uniformément sur l'intervalle] 0.1] et après intégration on obtient le pas [26]:

$$\text{pas} = - \lambda_e \cdot \text{Ln}(R_{n1}) \quad (\text{dans le cas de collision élastique}) \quad (\text{III. 8})$$

$$\text{pas} = - \lambda_i \cdot \text{Ln}(R_{n1}) \quad (\text{dans le cas de collision inélastique}) \quad (\text{III. 9})$$

avec :

$$\lambda_e \text{ Le libre parcourt moyen élastique donné par } \lambda_e = \frac{1}{\sigma_e n} \quad (\text{III. 10})$$

$$\lambda_i \text{ Le libre parcourt moyen inélastique donné par } \lambda_i = \frac{1}{\sigma_i n} \quad (\text{III. 11})$$

$\sigma_e$  :section efficace totale élastique

$\sigma_i$  :section efficace totale inélastique

$$n : \text{concentration des atome dans le gaz [20]} \quad n = 2.243 \times 10^{22} \frac{P}{T} \quad (\text{III. 12})$$

P :pression , T :température

### III. 3.2. Calcul des angles de diffusion $\theta$ et $\varphi$ :

Par définition la fonction de répartition  $F(\theta)$  de la variable aléatoire  $\theta$  est la probabilité qu'un événement diffusant conduit à un angle de diffusion  $0 \leq \theta_e \leq \theta$  [29].

$F(\theta) = \text{prob}(0 \leq \theta_e \leq \theta)$  c'est à dire:

$$F(\theta) = \frac{\int_0^\theta \sigma(\theta).2\pi. \sin \theta.d\theta}{\sigma} \quad (\text{III.13})$$

Après développement du calcul, on trouve que la fonction de répartition est donnée par l'équation suivante:

$$F(\theta) = a.(1+a) \cdot \left[ \frac{1}{a} - \frac{1}{\sin^2 \frac{\theta}{2} + a} \right] \quad (\text{III. 14})$$

$$\text{Avec } a = \sin^2\left(\frac{\theta_0}{2}\right)$$

Et pour :

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

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

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

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

$$\sin^2 \frac{\theta}{2} = \frac{a \cdot R_{n2}}{1 + a - R_{n2}} \quad (\text{III. 15})$$

L'angle azimutal (voir figure 10) est ensuite obtenu par simple tirage d'un nombre aléatoire  $R_{n3}$  distribué uniformément sur l'intervalle  $]0, 1]$

$$\varphi = 2\pi \cdot R_{n3}. \quad (\text{III. 16})$$

### III. 3.3. Trajectoires de l'électron:

La trajectoire de l'électron dans le gaz est de forme brisée. Il nous faut déterminer la position spatiale de chaque nœud et la valeur de l'énergie correspondante (voir fig 10).

#### III. 3.3.1. Condition initiale :

Les coordonnées initiales de l'électron à l'entrée de la cible est donnée par :

$$\begin{cases} X = 0 \\ Y = 0 \\ Z = 0 \end{cases} \quad (\text{III. 17})$$

#### III. 3.3.2. Coordonnées de l'électron

Le parcours de l'électron dans le volume du gaz est divisé en plusieurs étapes : A l'étape  $n$ , l'énergie  $E_n$  de l'électron fixe la section efficace de diffusion totale et donc le pas noté  $S_n$ , tandis que les sections efficaces différentielles de diffusion échantillonnent l'angle  $\theta_n$  de déviation.



Après que l'électron entre en interaction avec la cible au point A (**figure 10**), il change de direction et il s'enfonce dans le volume du gaz tout en cédant une partie de son énergie.

Si l'électron subit une interaction au point B après avoir parcouru le trajet  $S_n$ , les coordonnées du point B sont calculés par rapport à celles de A (figure 10) suivant les relations [29] :

$$\begin{cases} x_n = x_{n-1} + s_n \cdot C_n^x \\ y_n = y_{n-1} + s_n \cdot C_n^y \\ z_n = z_{n-1} + s_n \cdot C_n^z \end{cases} \quad \text{(III.18)}$$

Les facteurs  $C_n^x, C_n^y$  et  $C_n^z$  représente les cosinus directeurs du vecteur AB :

$$\begin{cases} C_n^x = C_{n-1}^x \cdot \cos(\theta_n) + V_1 \cdot V_3 + C_{n-1}^y \cdot V_2 \cdot V_4 \\ C_n^y = C_{n-1}^y \cdot \cos(\theta_n) + V_4 \cdot (C_{n-1}^z \cdot V_1 - C_{n-1}^x \cdot V_2) \\ C_n^z = C_{n-1}^z \cdot \cos(\theta_n) + V_2 \cdot V_3 + C_{n-1}^y \cdot V_1 \cdot V_4 \end{cases} \quad \text{(III. 19)}$$

Avec :

$$\begin{cases} V_1 = \frac{C_{n-1}^x}{C_{n-1}^z} \cdot \sin(\varphi_n) \\ V_2 = -\frac{C_{n-1}^x}{C_{n-1}^z} \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{C_{n-1}^x}{C_{n-1}^z}\right)^2}} \\ V_3 = \cos(\varphi_n) \\ V_4 = \sin(\varphi_n) \end{cases} \quad \text{(III. 20)}$$

### III.3.3.3 Pouvoir d'arrêt

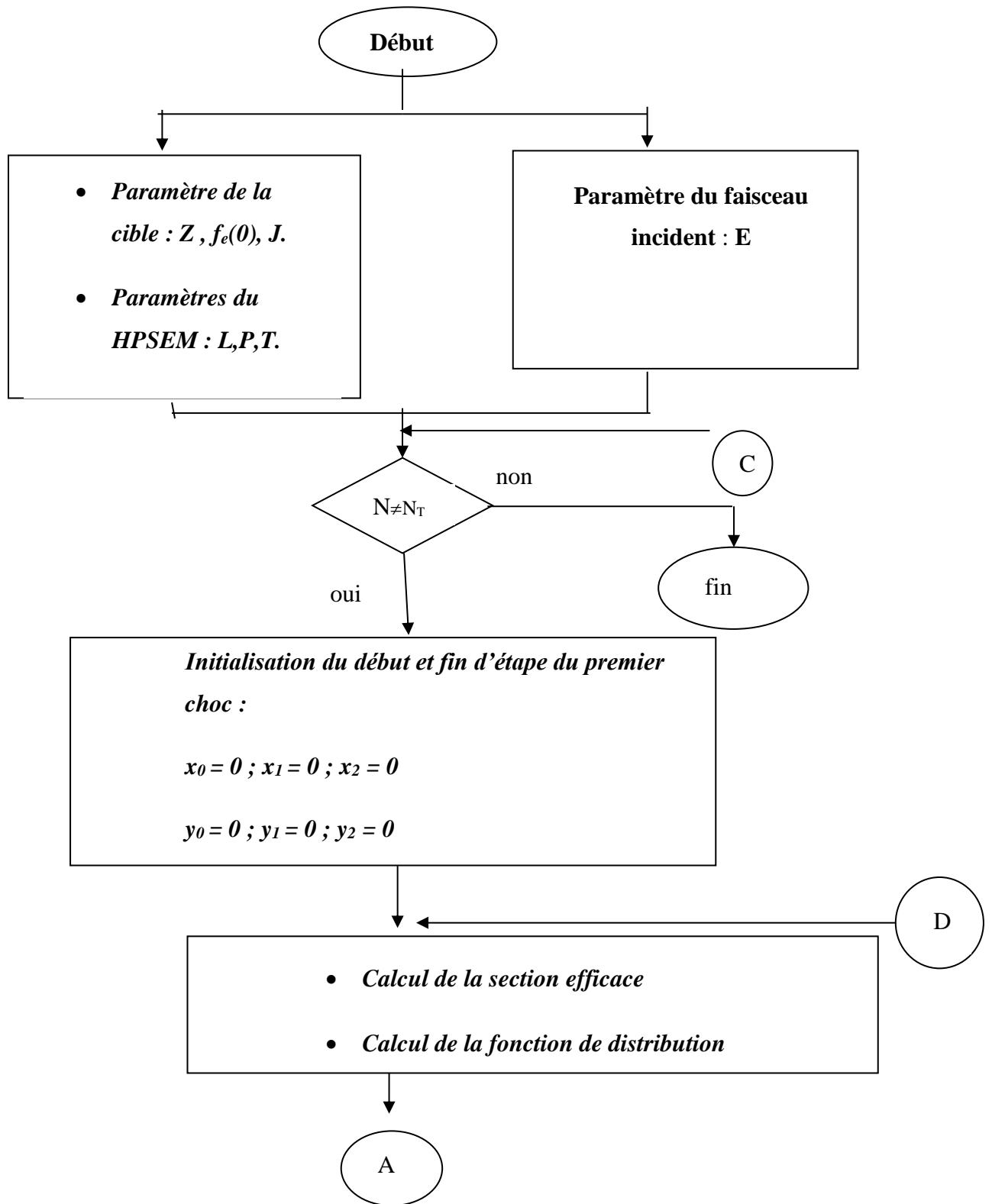
Avant de réitérer ces opérations pour une nouvelle étape, l'énergie de l'électron est réduite du premier potentiel d'ionisation. Si l'énergie résiduelle est inférieure au premier potentiel d'ionisation, l'électron va perdre son énergie sous forme de dissociation ou de vibration des molécules dans le gaz. Ces énergies sont très difficiles à obtenir, la seule information qu'on a pour ces énergies, c'est que les sections efficaces qui leur correspondent apparaissent pour des énergies très faibles (qui sont de l'ordre de l'énergie du premier potentiel d'ionisation), ce qui nous pousse à considérer ce dernier comme le seuil d'énergie que peut atteindre l'énergie de l'électron avant de se perdre dans le gaz où il va se recombiner avec les ions du gaz.

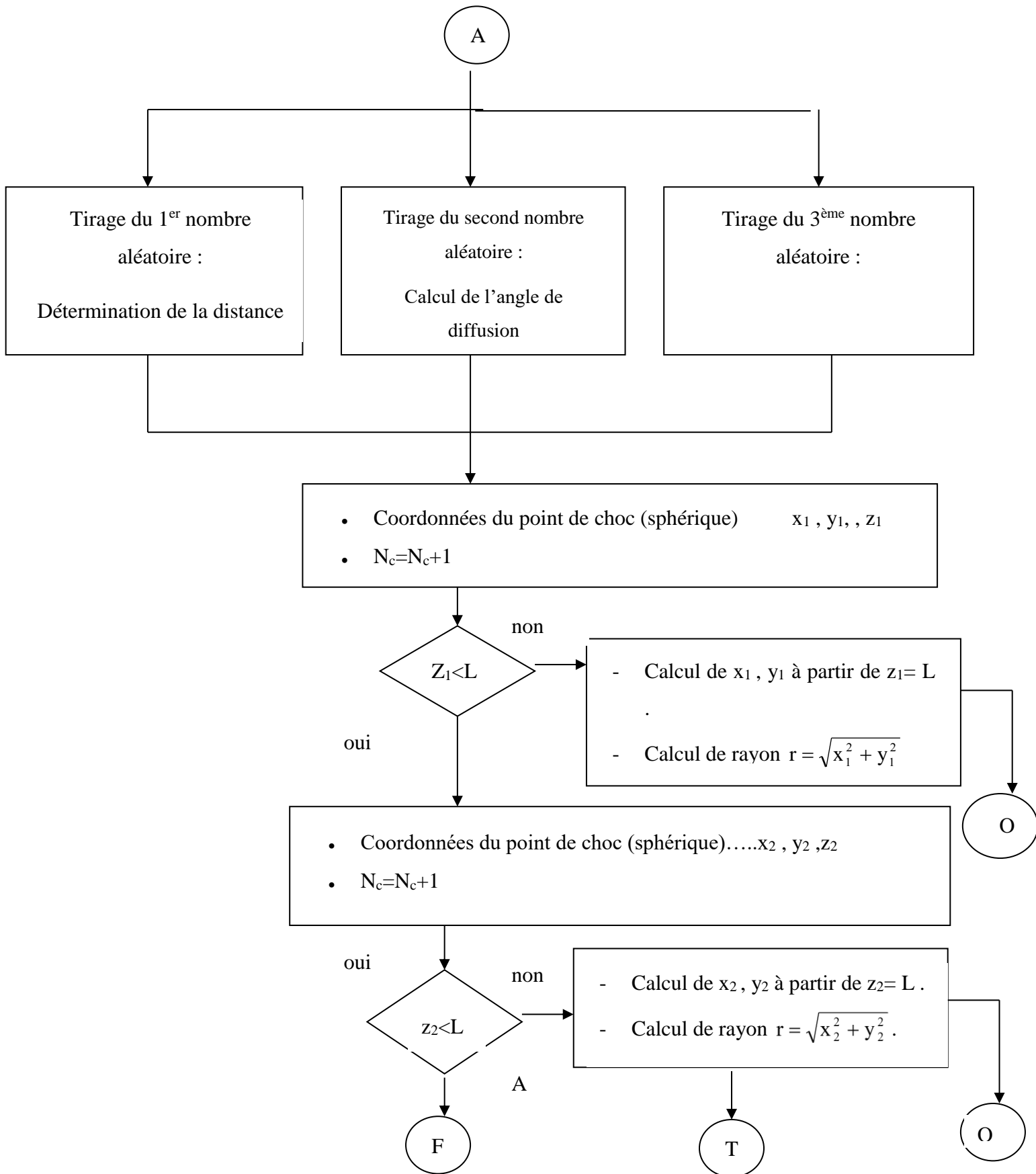
**III.3.4. Organigramme de la simulation :**

Sur la figure 11, est représenté l'organigramme de notre programme de simulation des trajectoires électroniques dans n'importe quel gaz monoatomique, diatomique, ou moléculaire, ainsi que les rayons de l'élargissement qui contiennent un certain pourcentage des électrons qui ont subi des diffusions en pénétrant dans le gaz par rapport au nombre total des électrons incidents.

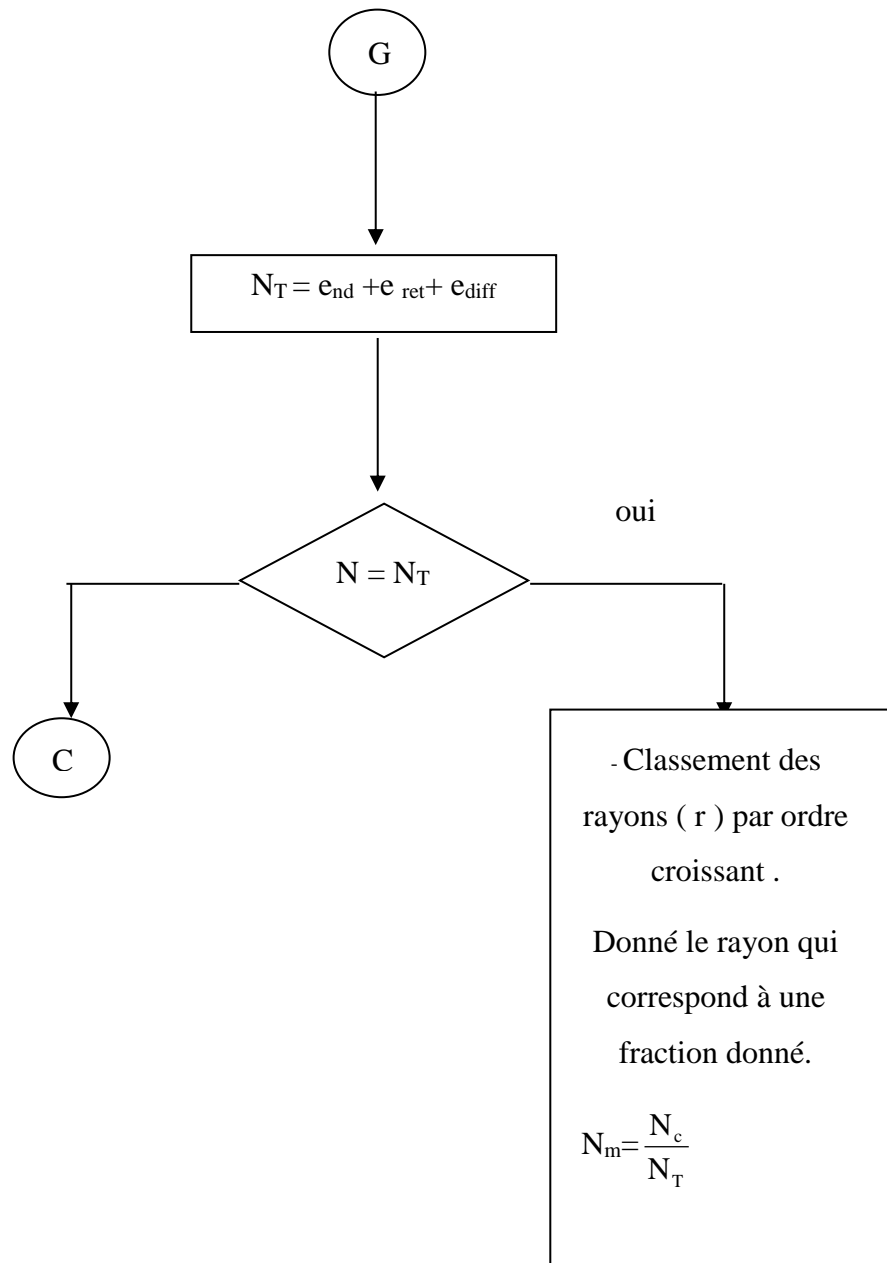
Nous avons adopté les notations suivantes :

- $e_{\text{ret}}$  : électron rétrodiffusé.
- $e_{\text{nd}}$  : électron non diffusé.
- $e_{\text{diff}}$  : électron diffusé.
- $N_T$  : nombre total d'électrons.
- $N_c$  : nombre de choc.
- $N$  : nombre d'électrons calculés.









**Figure 11 :** Organigramme de simulation des trajectoires électroniques et calcul des rayons de skirt par la méthode Monte-Carlo

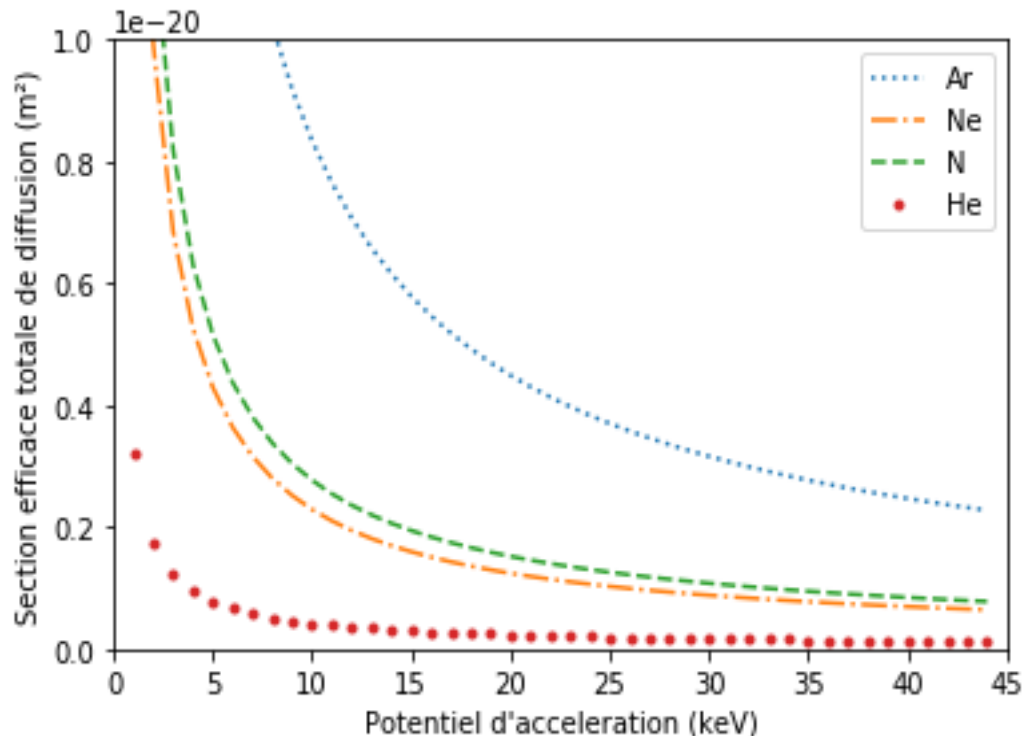
## IV .Application à L'interaction électron-gaz dans le HPSEM

### IV.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous avons calculé la variation de la section efficace totale de diffusion de la vapeur d'eau en fonction de l'énergie. Ensuite, nous l'avons utilisé dans le programme élaboré et décrit au chapitre précédent afin de tracer les trajectoires des électrons dans la chambre échantillon du HPSEM qui contient la vapeur d'eau comme gaz de neutralisation. Les rayons de skirt sont calculés en parallèle par le même programme. Ces calculs sont obtenus pour différentes températures du gaz et différentes énergies du faisceau d'électrons primaires. Ensuite nous avons comparé les résultats obtenus avec la littérature.

### IV.2. Calcul des sections efficaces diffusions

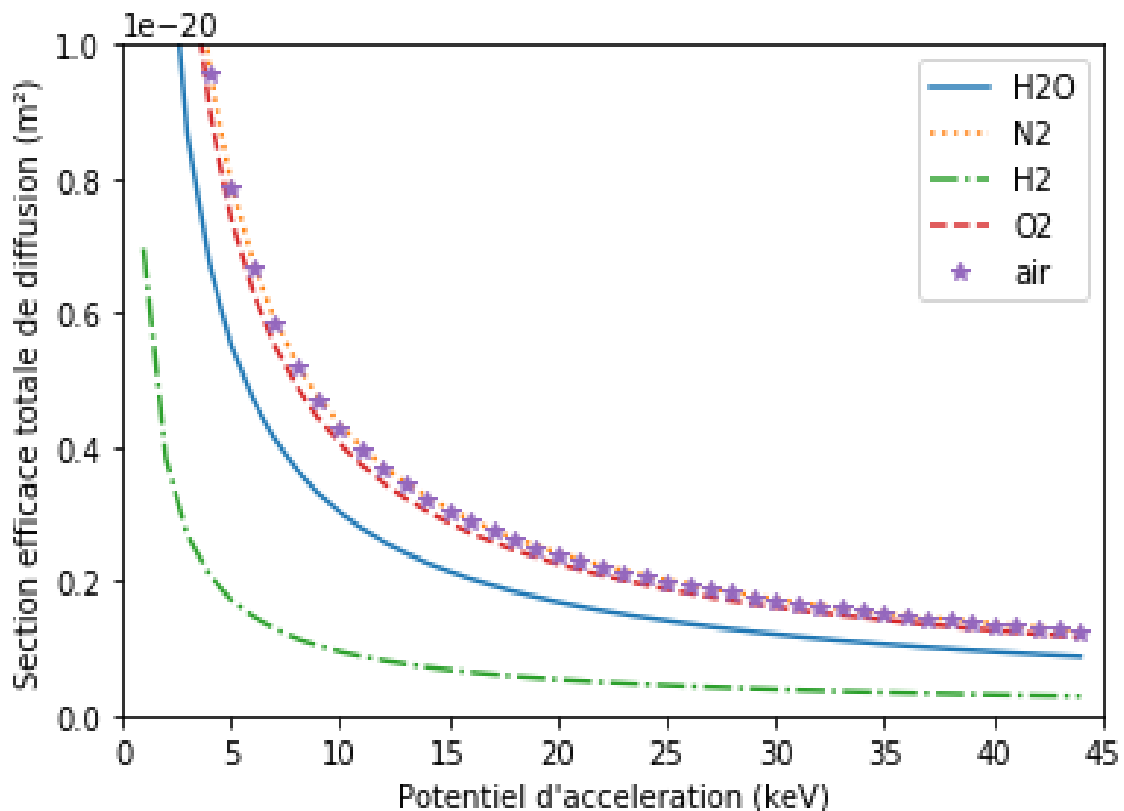
Pour calculer la variation des sections efficaces de diffusions de la vapeur d'eau en fonction de l'énergie (les expressions (II. 12) et (II. 13) et (II. 14)), nous avons procéder en premier temps au calcul des variations de la section efficace de diffusion totale pour les gaz monoatomiques. Les résultats des calculs numériques sont montrés sur la figure (12).



**Figure (12) :** Variation de la section efficace totale de diffusion en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons primaires pour les gaz monoatomiques

Les résultats de ces calculs sont en parfaite accord avec les résultats par Danilatos [20]. On remarque que l'ordre de classement de ces courbes dépend du numéro atomique des atomes du gaz, et une nette diminution de la section efficace de diffusion totale lorsque l'énergie du faisceau d'électrons primaire augmente

Pour la variation des sections efficaces des gaz moléculaires en fonction de l'énergie. Les résultats des calculs numériques sont montrés sur la figure (13).

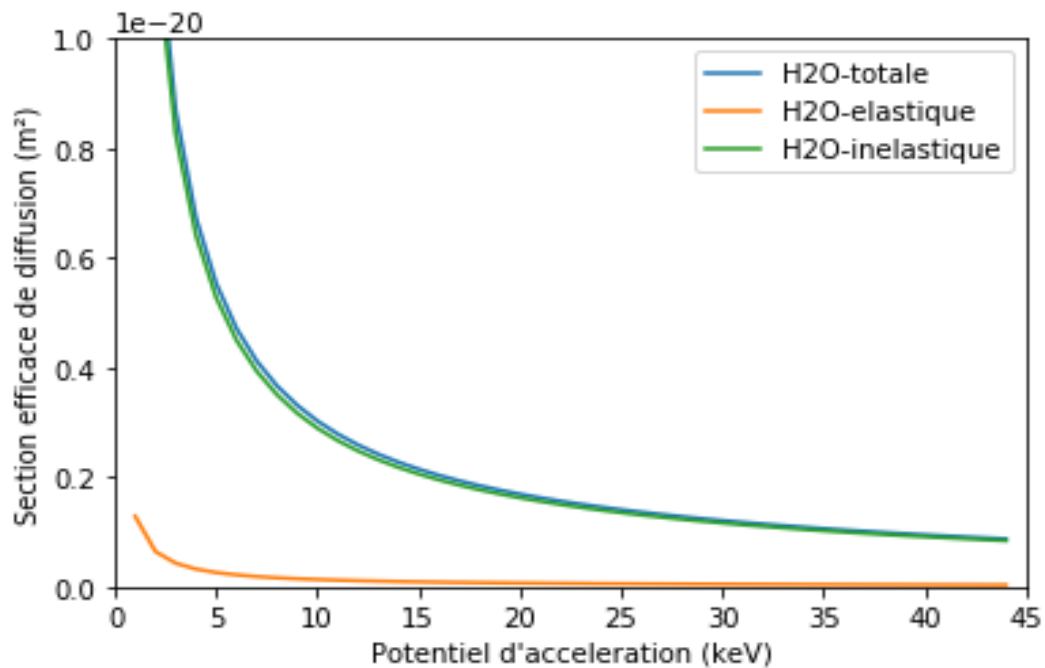


**Figure (13)** : Variation de la section efficace totale de diffusion en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons primaires pour les gaz moléculaires.

Les résultats des calculs obtenus sont aussi en parfaite accord avec les calculs obtenus par Danilatos **figure (09)**. Sur cette figure on voit que l'ordre de classement des sections efficaces en fonction de l'énergie est proportionnel au numéro atomique moyen des molécules, et aussi une diminution de la section efficace de diffusion totale lorsque l'énergie du faisceau primaire augmente. On remarque aussi que section efficace totale de diffusion de la vapeur d'eau est faible par rapport aux autres gaz moléculaires ce qui le favorise à être utilisé comme un gaz de neutralisation dans le HPSEM par rapport aux autres gaz.



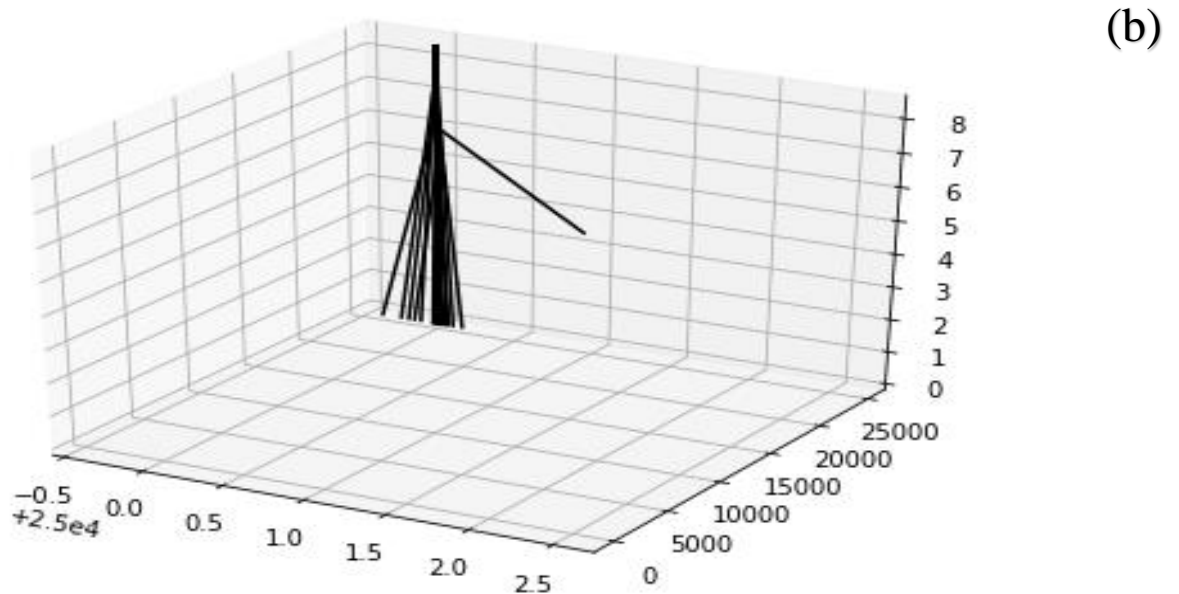
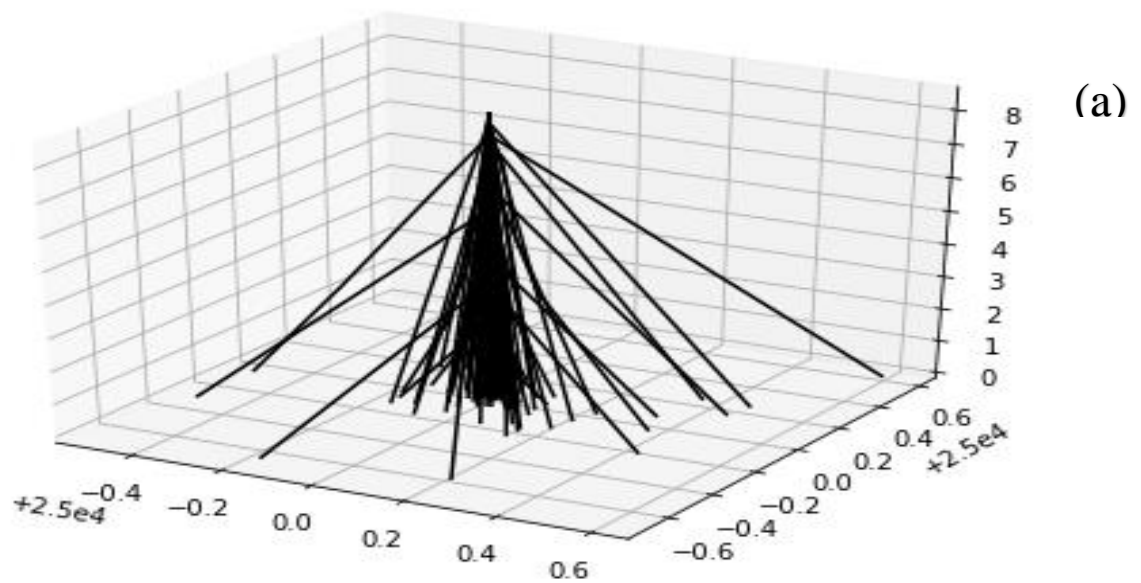
Sur la figure (14), On a tracé les sections efficaces de diffusion totale, élastique et inélastique de la vapeur d'eau en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons primaires. On remarque la section efficace de diffusion inélastique est importante par rapport à la section efficace de diffusion élastique.



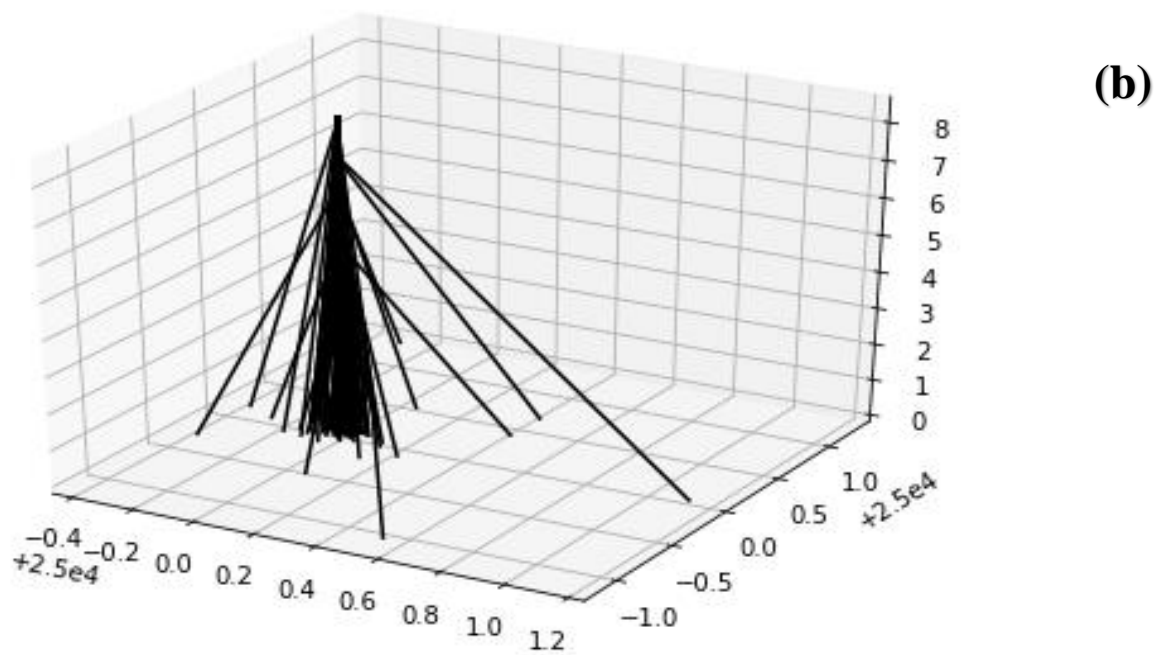
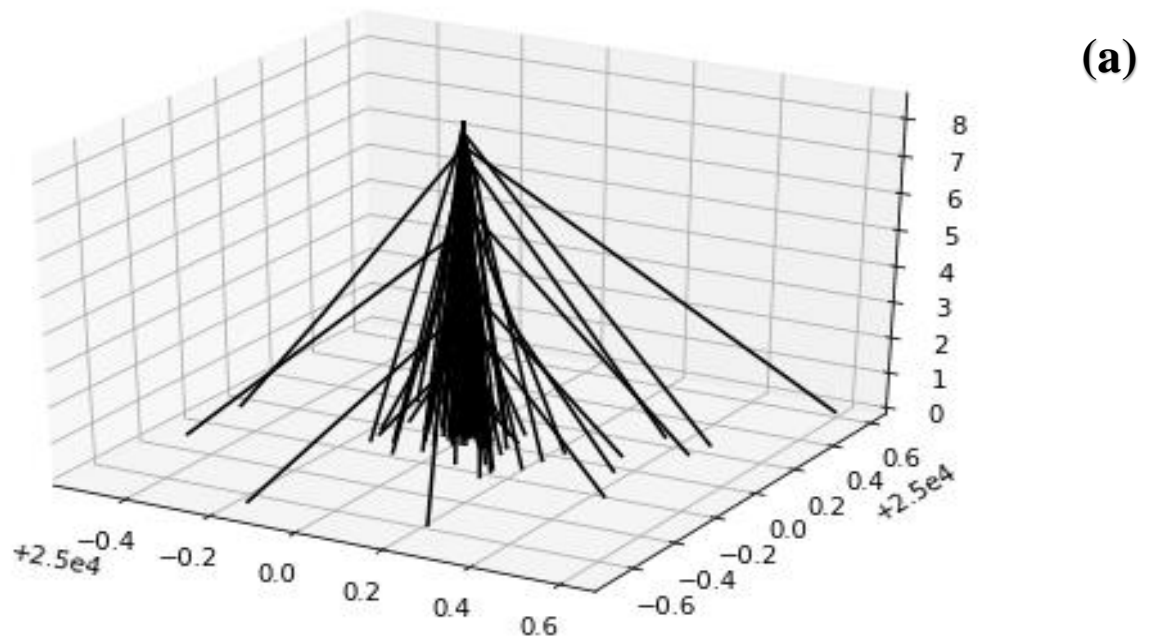
**Figure (14) :** Variation de la section efficace totale de diffusion en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons primaires pour les gaz moléculaires.

### IV.3. Calculs des trajectoires électroniques

Nous présentons dans cette partie les calculs des trajectoires électroniques obtenus pour différents paramètres tels que la pression et la température :



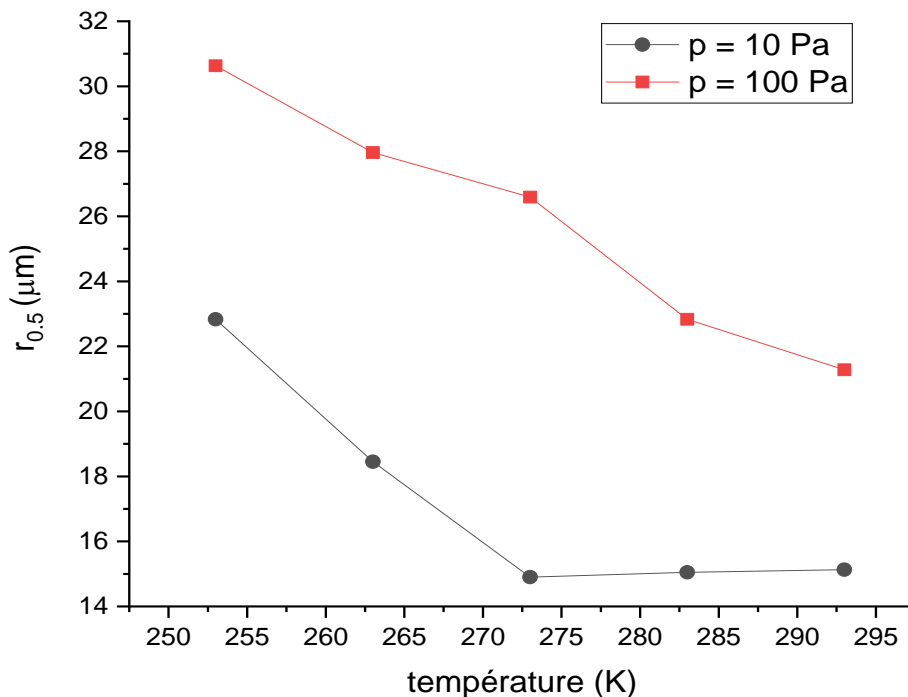
**Figure (15)** : Trajectoires électroniques calculés dans la vapeur d'eau pour  $E = 10$  keV,  $L = 8.6$  mm et une température de  $(-20^{\circ}\text{C})$  et pour 200 électrons avec une pression de 100 Pa pour l'image (a) et 10 Pa pour l'image (b)



**Figure (16)** : Trajectoires électroniques calculés dans la vapeur d'eau pour  $E = 10\text{ keV}$ ,  $L = 8.6\text{ mm}$ ,  $P = 100\text{ Pa}$  et pour 200 électrons avec une température de  $(-20\text{ °C})$  pour l'image (a) et  $(0\text{ °C})$  pour l'image (b)

## IV.4. Calcul des rayons de skirt

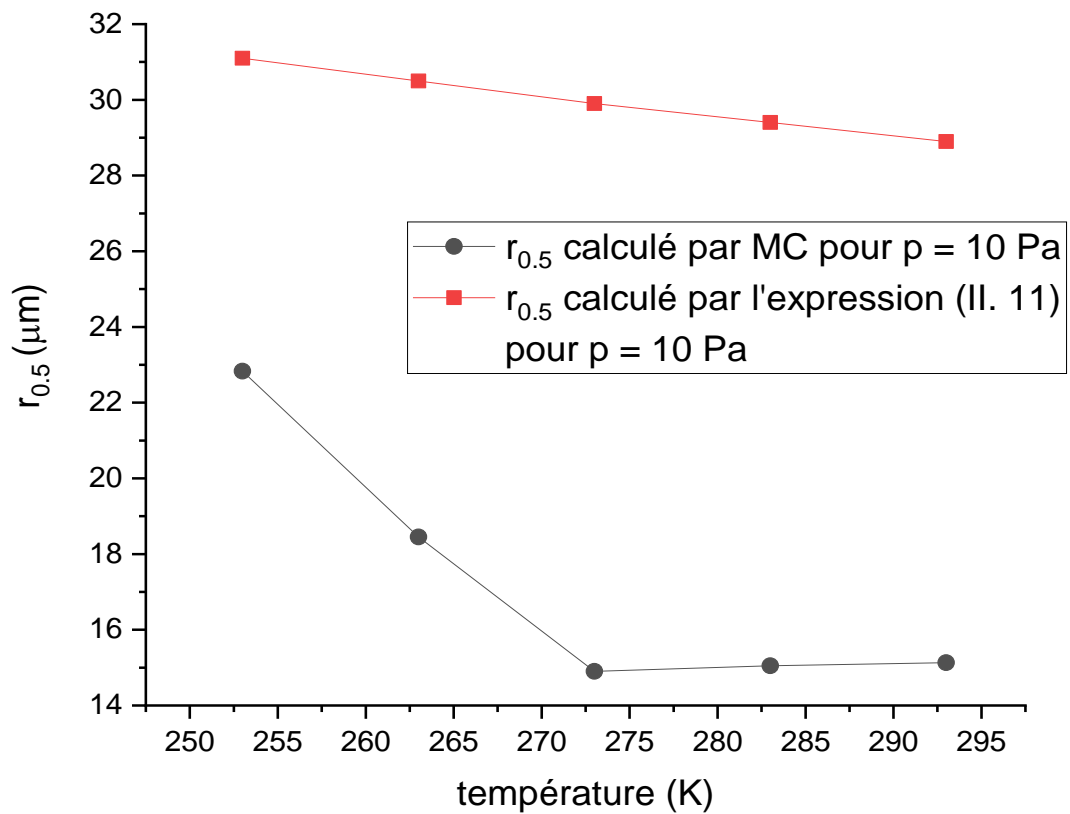
Dans la **figure (17)** nous présentons les résultats des calculs des rayons de skirt obtenus pour des températures variantes entre (-20°C et 20°C) (253 K et 293 K dans les figures) et pour les pressions de 10 Pa et 100 Pa. Les autres paramètres choisis pour ces calculs sont : l'énergie du faisceau primaire de 10 keV, la distance de travail 8.6 mm et le nombre des trajectoires est de 200 .



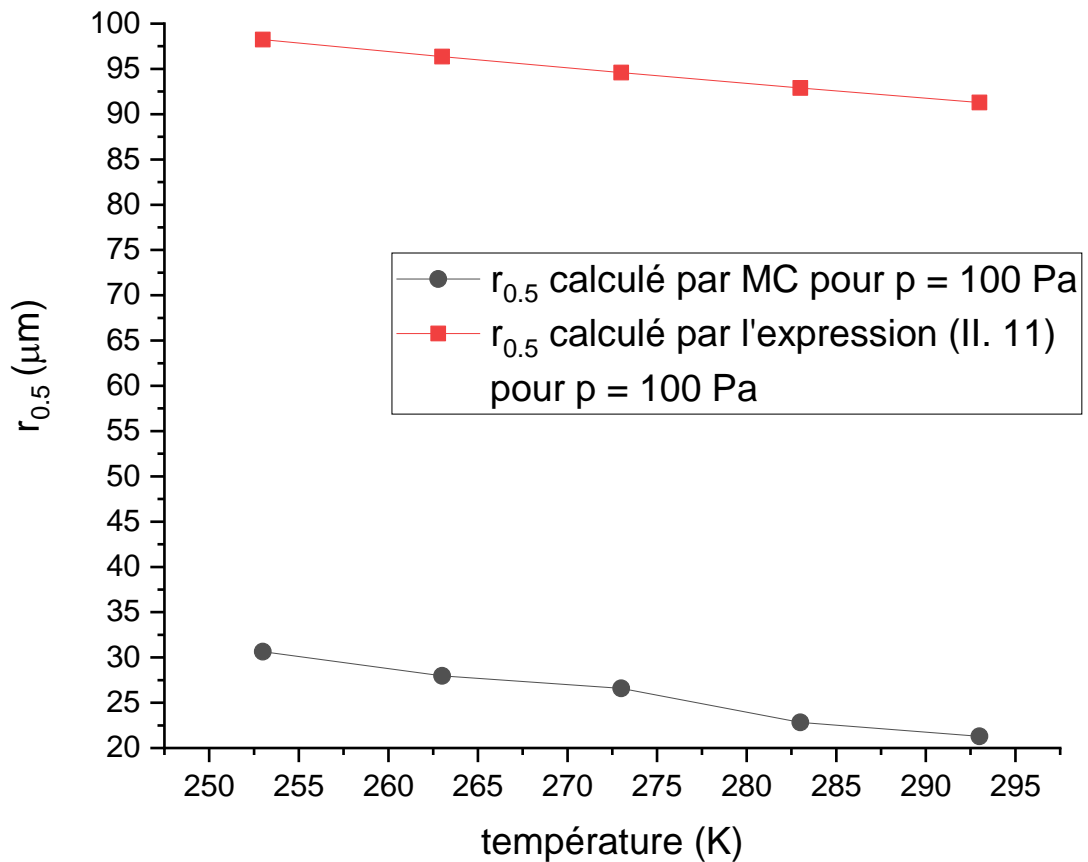
**Figure (17)** : Variation du rayon de skirt calculé en fonction de la température pour la vapeur d'eau et pour les pressions de 10 et 100 Pa et pour  $E = 10\text{keV}$ ,  $L=8.6\text{ mm}$  et pour 200 électrons

Sur cette figure on remarque que le rayon de skirt est important à basse température, et qu'il diminue avec l'augmentation de la température. On remarque aussi que l'augmentation de la pression fait aussi augmenter le rayon de skirt.

Sur les **figures (18)** et **(19)** nous présentons une comparaison entre les rayons de skirt calculés par la méthode de Monte-Carlo et celles calculés par l'expression Danilatoss.



**Figure (18)** : Présentation des courbes de la variation du rayon de skirt en fonction de la température obtenues par le calcul des trajectoires par la méthode de Monté-carlo et par le calcul par l'expression de Danilatos pour  $P = 10$  Pa,  $E = 10$  keV, et  $L = 8.6$  mm



**Figure (19)** : Présentation des courbes de la variation du rayon de skirt en fonction de la température obtenues par le calcul des trajectoires par la méthode de Monté-carlo et par le calcul par l'expression de Danilatos pour  $P = 100$  Pa,  $E = 10$  keV,  $L = 8.6$  mm

On remarque sur ces figures un écart entre les rayons de skirt calculés par la méthode de Monté-Carlo et celles calculés par l'expression (II. 11). Cette écart devient de plus en plus important lorsque la pression augmente. Cet écart est dû aux approximations utilisées pour obtenir l'expression de Danilatos qui consiste à considérer seulement les angles de collisions élastiques et de négliger les collisions inélastiques et qui sont prédominantes pour la vapeur d'eau.

## *Conclusion*

---

La méthode de Monté-Carlo décrit bien le comportement du faisceau d'électrons primaires avec les atomes du gaz après qu'il pénètre dans la chambre échantillon avec une certaine énergie. L'étude du paramétré de la température dans les calculs des trajectoires par la méthode de Monté-Carlo montre que le rayon de skirt augmente avec l'abaissement de la température de la vapeur d'eau, ce qui nécessite l'ajustement d'autres paramètres par les calculs par la méthode de Monté-Carlo pour minimiser le skirt, comme l'énergie du faisceau d'électrons ou la pression u gaz ou la distance de travail. L'approximation proposé par Danilatos pour calculer le rayon de skirt est valable pour les gaz dans lesquels les collisions élastiques sont prédominantes.

L'étude de l'interaction électron-vapeur d'eau montre que la vapeur d'eau peut être considérée comme un bon choix du gaz à être placée dans la chambre échantillon du HPSEM pour son faible cout d'un côté et pour son faible section efficace de collision.

## *Reference bibliographiques*

---

- [1] Knoll, M. (1935). Aufladepotential und Sekundäremissionselektronenbestrahlter Ko<sup>o</sup>. *Z. Phys.*, **16**, 467–475.
- [2] Farley, A.N. & Shah, J.S. (1990a) Primary considerations for image enhancement in high-pressure scanning electron microscopy. Part 1. *J. Microsc.* **158**, 379-389.
- [3] Farley, A.N. & Shah, J.S. (1990b) Primary considerations for image enhancement in high-pressure scanning electron microscopy. Part 2. *J. Microsc.* **158**, 389-401.
- [4]. Danilatos, G. D. *Scanning Microscopy*, Vol.4, (1990) pages 799\_823.  
"Equation of charge distribution in the environmental scanning electron microscope (ESEM)".
- [5] Durkin, Rand Shah, J.S. *Journal of microscopy* .vol.169.pt1.January1993.pp.33\_51.  
"Amplification and noise in high\_pressure scanning electron microscopy".
- [6] Moncrief, D.A, Barker.P.R, Robinson.V.N.E. *J.Phys.D:Appl.Phys.*, Vol.12,(1979).printed in Great Britain." Electron scattering by gas in the scanning electron microscope".
- [7] Danilatos,GD,1990e.Equation of charge distribution in the environmental scanning electron microscope (ESEM).*Scanning Microscopy* 4,799-823
- [8] D. A. Moncrief, V. N. E Robinson, L. B Harris, *J.Appl.Phys*, 11, 180, (1978)  
"Charge neutralisation of insulating surfaces in the SEM by gas ionisation."
- [9] G. D. Danilatos, *Micron and Microscopica Acta*, 14, 307, (1983)
- [10] Danilatos,GD,1990.Theory of Gaseous Detector Device in the Environmental Scanning Electron Microscope ,in:Peter,W.H.(Ed.).*Advances in Electronics and Electron physics*. Academic Press,pp1-102.
- [11] Fletcher,Theil,Donald,1999.Signal components in the environmental scanning electron microscope. *Microscopy* 196,26-34.
- [12] Thiel ,B,L.,Toth,M.,Schroemges,R,P,M.,Scholtz,J,J.,vanVeen,G.,Knowles,W,R.,2006.Two-stage gas amplifier for ultrahigh resolution low vacuum scanning electron microscopy. *Review of Scientific Instruments* 77,033705-033707.
- [13] Toth, M .,Knowles, Knowles,W,R., Thiel, B,L 2006. Secondary electron imaging of non conductors with nanometer resolution .*Applied Physics Letters*.88. 1-3.
- [14] Slowko,W.,2001.secondary electron detector with a micro-porous plate for environmentalESM.*Vacuum* 63, 457-461.
- [15] Slowko,W.,2003.Electron signal acquisition in HPSEM.*Vacuum* 70, 157 -162.



## ***Reference bibliographiques***

---

- [16] Jirak, J., Cernoch, P., Nedela, V., Spinka, J., 2008. Scintillation SE Detector for variable Pressure Scanning Electron Microscope, in: Luysberg, M., Tillmann, K., Weirich, T., (Eds.), EMC 2008 14 Th European Microscopy Congress 1- 5 September 2008 ,
- [17] Robinson, V.N., E., 1975. A wet stage modification to a scanning electron microscope. *Journal of Microscopy* 103,71- 77.
- [18] Danilatos, G.D., 1985. Design and construction of an atmospheric or environmental ESM. (Part3), *Scanning* 7,26- 42.
- [19] Robertson, Gauvin, R., Finich, J., 2005. Application of charge contrast Imaging in mineral characterization. *Minerals Engineering* 18,343-352.
- [20] Danilatos, G.D. (1988): Foundations of environmental scanning electron microscopy. *Advances in electronics and electron physics*, 71,109-250.
- [21] Belkhorissat, R., Kadoun, A., Khelifa, B., Mathieu, C. (2004). The effect of beam diameter on the electron skirt in a high pressure scanning electron microscope, *Micron* 35 (7), 543-547.
- [22] Khouchaf, L., Vestaraete, J., 2004. Electron scattering by gas in the environmental scanning electron microscope (ESEM): Effect on the image quality and on the X ray microanalysis. *Journal de physique IV*, 237.
- [23] Debbie J. Stokes, (2006), *Principle and Practice of Variable Pressure / Environmental Scanning Electron Microscopy VP/ESEM*. Wiley.
- [24] 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 Abbès. (these hafsi zoulikha)
- [25] Schumacher, B. W. (1968). Ontario Research Foundation Physics Research report, 6604.
- [26] Reimer, L., Gilde, H., Sommer, K. H. (1970). *Optik*, 30, 590 .
- [27] Smith, R. C., Schumacher, W B (1974). Extended working range for electron beams in atmosphere. *Nuclear instrument and methods*; 118, 13-91.
- [28] Metropolis, N. and Ulam, S.M. *J. Amer. Statist. Assoc.*, 44: 335-349. (1949),. "The Monte-Carlo Method."
- [29] M. Derras. "Simulation et corrélation du courant EBIC par la méthode de Monte-Carlo: Application à une cellule solaire" Mémoire de magister, Université de Sidi Bel Abbès, (1996).
- [30] Dieter W. Heermann. (1989) "Computer Simulation Methods in theoretical physics". Springer-Verlag.

## *Reference bibliographiques*

---

[31] Gauvin, R. *Scanning..* Vol 21, 388-393 (1999) "Somme Theoretical Considerations on X-Ray Microanalysis in the Enviromental or Variable Pressure Scanning Electron Microscope".

## **Résumé**

Le microscope électronique à balayage à haute pression (HPSEM). Est une nouvelle dimension de la microscopie électronique à balayage qui permet d'analyser les échantillons dans un milieu gazeux. Cependant cette analyse, 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. L'objectif de la recherche rapportés ici sont les suivants : étudier par la méthode Monte Carlo l'effet de la température sur la trajectoire et l'élargissement de faisceau d'électrons primaires ( skirt ) dans la vapeur d'eau .

## **Summary**

The high pressure scanning electron microscope (HPSEM). Is a new dimension of scanning electron microscopy which allows samples to be analyzed in a gaseous medium. However, this analysis meets a major challenge with regard to the diffusion of the primary electron beam by the atoms / molecules of the gaseous medium. This phenomenon of diffusion (skirt) leads to the appearance of several artefacts beyond those which are familiar in a conventional SEM. The main artefact recognized is the degradation of the spatial resolution which is delimited by the volume of interaction. The research objectives reported here are as follows: to study by the Monte Carlo method the effect of temperature on the trajectory and the broadening of primary electron beam (skirt) in water vapor.

**Les mots clés:** HPSEM, skirt