

## Remerciements

---

### REMERCIEMENTS

*Mes remerciements vont tout premièrement à Dieu tout puissant pour la volonté, la santé et la patience, qu'il ma donné durant toutes ces années d'études.*

*Ce travail a été principalement effectué au sein du laboratoire de Microscopie, Microanalyse de la matière et Spectroscopie Moléculaire de l'Université de Sidi Bel Abbès, dirigé par A.Kadoun, professeur à l'université de Sidi Bel Abbès, faculté des sciences exactes.*

*Je remercie infiniment mon directeur de thèse le Pr. Abd-Ed-Daïm Kadoun, pour les précieux conseils, son soutien et son optimisme à tout crin. La confiance qu'il m'a accordée, a grandement contribué à l'accomplissement de ce travail.*

*Je remercie particulièrement O. Mansour, Maître conférence à l'Université de Djelfa, pour avoir évalué mon travail de thèse. Il a été disponible et à l'écoute de mes nombreuses questions et de me faire part de son programme de MC . Cette thèse lui doit beaucoup.*

*Mes sincères remerciements s'adressent à monsieur le président du jury : le Pr. G. BASSOU de l'université de Sidi Bel-Abbès, de m'avoir fait l'honneur de présider le jury. Je tiens également à remercier, le Pr. N. CHABANE SARI de l'Université de Tlemcen et le Pr. A. ELIAS de l'Université de Saida qui ont accepté de juger ce travail.*

---

# *SOMMAIRE*

---

<b>INTRODUCTION GENERALE.....</b>	<b>1</b>
<b><u>CHAPITRE I: LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE À BALAYAGE :</u></b>	
<b>DU MEB AU MEBE</b>	
I . MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE.....	4
I.1.Historique.....	4
I.2. Principe de la microscopie électronique à balayage.....	6
I.3. Présentation d'un MEB conventionnel .....	7
I.3.1. La colonne .....	7
I.3.1. a- Le Canon à électron .....	7
I.3.1 b. Le système optique.....	9
I.3.2. La chambre à échantillon .....	9
I.3.3. Les détecteurs .....	9
I.4. Pourquoi le MEB ? .....	10
I.5. Limitations du MEB conventionnel .....	11

I.6. Surmonter les limites du MEB conventionnel.....	13
I.6. 1. Travailler à basse tension « utilisation du FEG » .....	13
I.6. 2. Utiliser le microscope électronique à balayage environnemental .....	14
<b>I.7. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE À BALAYAGE ENVIRONNEMENTAL..</b>	<b>15</b>
I.7.1.Terminologie .....	15
I.7.2.Généralités sur la MEBE.....	16
I.7.2.1. Pompage différentiel.....	17
I.7.2.2. La détection .....	21
I.7.2.2a- Le détecteur à électron rétrodiffusés (détecteur BSE).....	22
I.7.2.2b- Le détecteur à amplification gazeuse (détecteur GSED).....	22
I.7.3. Amplification par le gaz et signaux spécifiques .....	24
I.7.4. Composition du gaz et quencheurs .....	29
<b><u>CHAPITRE II: INTERACTIONS ELECTRONS-MATIERE DANS UN</u></b>	
<b><u>MEBE</u> .....</b>	<b>31</b>
II.1 Introduction.....	31
II.2 .INTERACTION ELECTRON -ECHANTILLON DANS UN MEBE...	32
II.2.1 Rappel sur les interactions .....	33
II.2.1 .1 Interaction élastique .....	33
II.2.1.2 Interaction inélastique .....	33
II .2.2. Rappel sur les principaux signaux émis dans un MEB.....	33
II. 2.2.1 Les électrons secondaires (SE) : (Secondary electron) .....	34
II.2.2.2 Les électrons rétrodiffusés : (BSE) (Backscatred electrons) .....	34
II.2.2.3 Les Rayons X (ou photons X) .....	34
II.2.3 Volume d'interaction .....	34
II.2.4. Le rendement électronique total .....	36
II. 3. INTERACTION ELECTRON -ECHANTILLON DANS UN MEBE.....	39

II.3.1 L'ionisation des gaz neutres .....	39
II.3.2. La diffusion du faisceau primaire dans le gaz .....	40
II. 4. INTERACTION ELECTRON -IONS-ECHANTILLON DANS UN MEBE.....	41
II. 4 .1 L'émission <i>SE</i> intrinsèque .....	41
II. 4 .2 Effet des charges sur l'émission secondaire .....	42
II. 4 .2.3 La neutralisation de la charge .....	42
II.5. La théorie de la diffusion d'électrons primaires dans un milieu gazeux....	43
II. 5.1. Profil du faisceau électronique .....	43
II. 5.2. Statistiques de l'interaction électron-gaz dans un MEBE:.....	45
II. 5. 3 Régime de diffusion .....	46
II. 5.4 Influence du Skirt sur la qualité d'image :.....	50
II.6. QUEL GAZ DANS LA CHAMBRE D'ANALYSE ?.....	51
II.6 .1 Environnement d'un MEBE .....	51
II.6.2 Décharges électriques dans les gaz .....	52
II.7. LES SIGNAUX DANS LE MEBE.....	53
II.8. CONCLUSION.....	54
<b><u>CHAPITRE III</u></b> : DETECTION DES ELECTRONS SECONDAIRES DANS UN MEBE .....	55
III.1 Introduction .....	55
III.2 PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DU GSED .....	55
III.2.1. Présentation .....	55
III.2.2. Modèle TGC (Townsend gas capacitor) .....	56
III.2.3 Mécanisme du claquage des gaz en MEBE .....	58
III.2.3.1.Régime de Townsend.....	59
III.2.3.2.Formation de l'avalanche .....	59
III.2.3.3. Premier coefficient d'ionisation de Townsend $\alpha$ .....	60
III.2.3.4 Deuxième coefficient d'ionisation de Townsend $\gamma$ .....	61

III.2.3.5 Claquage de Townsend ou intrinsèque .....	61
III.3. FACTEUR D'AMPLIFICATION OU LE GAIN .....	62
III.3.1 Cas d'un gaz pur .....	62
III.3.2 Cas d'un mélange de gaz.....	64
III.4.THEORIE DES SIGNAUX DETECTES DANS LE MEBE.....	64
III.4.1. L'intensité du courant .....	65
III.4.2. Calculs des coefficients d'ionisations des électrons primaires $S_{PE}$ et des électrons rétrodiffusés $S_{BSE}$ .....	65
III.5. AMPLIFICATION ELECTRONIQUE DU SIGNAL.....	67
III.5.1. Effet de la présence du gaz sur le contraste de la charge .....	68
III.5.2. Modèle analytique du bruit .....	69
III.6.ROLE DU QUENCHER .....	71
III.7.CALCUL DU RAYON DE SKIRT PAR LA METHODE DE MONTE CARLO .....	72
III.5.2. Principe de la méthode de Monte Carlo .....	73
III.8. Synthèse et conclusion .....	77
 <b><u>CHAPITRE IV: OPTIMISATION DU SIGNAL COLLECTÉ PAR LE GSED</u></b>	
IV.1. INTRODUCTION.....	82
IV.2. COEFFICIENT D'IONISATION.....	82
IV.2. 1 <i>Gaz Pur</i> .....	82
IV.2. 2. Mélanges gazeux .....	82
IV. 3 ÉTUDE DE GAIN DANS LES MELANGES D'HELIUM:.....	85
IV. 3.1 Cas des gaz purs :.....	85
IV.3.2.1 <i>Mélanges 90% (He)- 10 % (X)</i> .....	86
IV.3.2.2 <i>Mélanges 95% (He)- 5 % (X)</i> .....	87
IV.3.3 Comparaison entre les différents mélanges de gaz.....	88

IV.2.4 Calcule de gain maximum.....	92
IV. 4. AMPLIFICATION PAR LE GAZ ET SIGNAUX SPÉCIFIQUES AUX GSED..	93
IV.4.1.1 Amplification par effet cascade sous un champ électrique constant.....	93
IV.4.1.2.Variation de l'amplification électronique (Ae) en fonction de la distance ..	95
IV.4.1.3.Variation de l'amplification électronique (Ae) en fonction de la pression..	96
IV.4.2. Calcul des signaux détecté par le GSED.....	97
IV.4.2.1Contribution des différentes sources .....	97
IV.4.2.2.Variation du signal collecté en fonction de l'énergie primaire .....	98
IV.4.2.3.Variation du signal collecté en fonction de la tension .....	100
IV. 5. CALCUL DES COMPOSANTES DU BRUIT.....	103
IV.6 RESULTATS DE LA DIFFUSION PAR LES CALCULS MONTE CARLO.....	10
7	
IV.6.1 Calcul de la fraction des électrons non diffusés .....	107
IV.6.1.1.Effet de la pression, de l'énergie et la distance de travail .....	105
IV.6.1.2 Profil dans CO <sub>2</sub> .....	106
IV.6.1.2 Profil dans He.....	106
IV.6.2Variation des rayons de skirt en fonction de la pression et de l'énergie....	110
VI .7.CONCLUSION.....	112
CONCLUSION GENERALE .....	113
BIBLIOGRAPHIE.....	<b>115</b>

# INTRODUCTION GENERALE

---

La microscopie électronique à balayage (MEB ou SEM en anglais pour Scanning Electron Microscopy) est une technique d'observation de la topographie de surface. En mode conventionnel (High Vacuum), les observations sont limitées aux objets conducteurs ou dont la surface est, au préalable, métallisée. En mode environnemental (MEBE ou ESEM en anglais), travailler à haute pression (jusqu'à 30 Torr), permet de répondre à de nombreux besoins tels que l'observation des matériaux non conducteurs : papier, polymère, tissu, ciment produit pharmaceutiques etc... ou des matériaux dans leur état naturel sans préparation : organismes vivants, objets biologiques dans leur état naturel; matériaux archéologiques ne supportant aucune préparation préalable; poudres, huiles, liquides, mais aussi l'observation de matériaux dans un environnement expérimental donné comme par exemple les phénomènes d'oxydation, de recristallisation, de dissolution, ou encore de fusion.

Lorsqu'on effectue des analyses chimiques ou topographiques des échantillons non conducteurs dans le MEBE, le gaz introduit au voisinage de l'échantillon réduit les effets de charges : des ions positifs vont être créés lors des collisions inélastiques entre les électrons et les molécules de gaz. Ces ions viennent neutraliser les charges négatives à la surface de l'échantillon, au fur et à mesure de leur apparition. Ceci permet de s'affranchir de l'étape de métallisation de la surface à observer. Une deuxième utilité de la présence de gaz réside dans son utilisation comme milieu amplificateur du signal des électrons secondaires. Les détecteurs des électrons secondaires dans les MEBE (GSED pour Gaseous Secondary Electron Detector) sont d'ailleurs construits sur ce principe.

Cependant, la présence des espèces gazeuses dans la chambre d'analyse n'est pas sans inconvénients. Ainsi cette présence provoque sur le trajet du faisceau d'électrons, un élargissement du faisceau (skirt) à cause des collisions des électrons avec les molécules de gaz. Quel que soit le type de MEBE utilisé, la qualité des images, de contraste, de résolution, la précision de l'analyse X, demeurent intimement liés à la minimisation de ce skirt. D'autre part, à haut gain, la multiplication gazeuse utilisée dans l'amplification du signal par le détecteur des électrons secondaires, peut diverger et atteindre alors un régime de claquage qui peut s'avérer destructif. Tout le problème dans les MEBE consiste alors dans le choix d'un environnement gazeux qui évite ce claquage lors de l'amplification tout en favorisant l'ionisation afin d'équilibrer la charge surfacique et en réduisant le rapport signal/bruit (par un skirt minimum), ce qui influe positivement sur la qualité des images et la précision de la microanalyse. Ceci constitue l'objectif de cette thèse.

Des études antérieures menées au sein de notre laboratoire ont montré que l'hélium est le meilleur candidat du point de vue de la minimisation du skirt. Cependant, à cause de son fort potentiel d'ionisation, ce gaz ne permet pas une neutralisation optimale de la charge surfacique excédentaire. Pour cela, il a été proposé l'ajout d'une faible proportion d'un autre gaz à faible potentiel d'ionisation afin d'augmenter le taux de production d'ions positifs

susceptibles d'assurer la neutralisation de la charge surfacique de l'échantillon. Cette étude est poursuivie dans le cadre de cette thèse, en mettant l'accent sur le rôle amplificateurs des mélanges choisis et leur efficacité.

L'utilisation de gaz rares (He, Ne, Ar, Kr, Xe) comme un environnement gazeux et pour la détection est appropriée pour plusieurs raisons. D'une part, un gaz noble possède peu d'états excités, l'ionisation est donc favorisée devant l'excitation. D'autre part, la probabilité de recombinaison entre un électron et un ion est faible et pour empêcher la multiplication gazeuse de diverger à haut gain, on ajoute au gaz noble une certaine quantité de molécules gazeuses. Ces gaz, dits quencher, possèdent de nombreux états excités non radiatifs (vibration, rotation, excitation) et/ou des niveaux d'énergie plus bas que le gaz noble. Ces gaz permettent donc d'absorber les photons ultraviolets indésirables, dont l'énergie est dissipée dans des états non radiatifs. Les quenchers jouent donc un rôle primordial dans le bon fonctionnement du détecteur et permettent d'obtenir de longs plateaux d'efficacité en fonction de la tension appliquée.

Ce travail de thèse s'intéresse essentiellement à la description de l'interaction entre les électrons secondaires et les atomes/molécules du gaz et le matériau à analyser dans la chambre d'analyse d'un MEBE. Il est donc d'une importance primordiale de :

- 1/ Connaître les fondements théoriques du phénomène d'interaction électron secondaires -gaz
- 2/ Définir l'influence de différents paramètres sur les signaux détectés par le GSED. L'interprétation du contraste de l'image peut être facilitée par l'optimisation de l'amplification. Plusieurs auteurs ont étudié l'amplification et le comportement de divers milieux gazeux purs en MEBE, mais pas dans le mélange gazeux. C'est ce à quoi ce travail se propose de contribuer.

Le premier chapitre de ce mémoire décrit l'histoire de la microscopie électronique à balayage et son développement au cours du temps, ainsi que le principe de microscopie électronique à balayage sous pression de gaz en rappelant brièvement les principes de base de la microscopie électronique, et en mettant l'accent sur l'observation d'échantillons hydratés dans les microscopes électroniques à balayage environnementaux, donnant lieu à des images inédites et spectaculaires.

Dans le deuxième chapitre, l'interaction électron-gaz est décrite en détail. L'important processus de transfert du faisceau primaire de la zone où règne le vide poussé vers la chambre d'analyse qui se trouve à plus haute pression y est décrit. Les équations de base y sont rappelées.

Le troisième chapitre est principalement axé sur la description physique des événements entourant la formation du signal et le principe de l'ionisation des molécules de gaz. Il décrit également la théorie appliquée pour quantifier d'amplification par le gaz, les signaux et le rapport signal/bruit et donne une description de l'approche théorique utilisée qui est par ailleurs en accord avec des résultats expérimentaux de la littérature, ce qui valide cette approche et nous permet d'utiliser les formules théoriques proposées. Dans ce chapitre, nous exposons également le principe de la méthode de Monte Carlo que nous utiliserons pour



simuler les trajectoires électronique dans les gaz de la chambre d'analyse du MEBE et pour calculer les rayons de skirt.

Le quatrième chapitre est consacré au calcul des coefficients d'ionisation, du gain maximum du gaz  $M_{SEM_{max}}$  et au calcul des signaux détectés par le GSED dans les gaz purs et leurs mélanges. Un descriptif quantitatif est présenté sur ce qui se produit lorsque différents gaz sont utilisés, et nous examinons comment la concentration du gaz monoatomique ou moléculaire influe sur le taux d'amplification. Les rayons du skirt, et les fractions d'électrons non déviés sont alors systématiquement déterminés par l'application de la méthode de Monte Carlo au cas (mélange gazeux) qui nous intéresse. A partir de là, nous tenterons de dégager le meilleur compromis afin d'assurer une bonne neutralisation de la charge surfacique des échantillons tout en dégradant le moins possible le rapport signal/bruit des détecteurs.

---

## LA MICROSCOPE ELECTRONIQUE À BALAYAGE : DU MEB AU MEBE

---

Ce chapitre décrit l'histoire de la microscopie électronique à balayage et son développement au cours du temps, du dispositif conventionnel à l'avènement de la microscopie environnementale.

### I. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE

#### I.1. Historique:

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 1931, Ruska et son équipe de recherche à Berlin travaillent sur le développement de la microscopie électronique. Ils sont très surpris en apprenant que même en utilisant les électrons, la résolution peut être limitée par une longueur d'onde. Mais ils découvrent ensuite avec l'équation de de Broglie que les longueurs d'onde associées aux électrons sont plus petites que celle de la lumière utilisée en microscopie optique, et cela d'au moins cinq ordres de grandeur. Pour cette raison, ils considèrent que les microscopes utilisant des électrons devraient montrer une résolution meilleure que ceux fonctionnant avec la lumière, et décident de ne pas abandonner leurs recherches à ce sujet. En 1932, Knoll et Ruska s'intéressent à l'estimation de la limite de résolution d'un microscope électronique. En faisant l'hypothèse que la formule exprimant la résolution limite en microscopie optique est toujours valable pour les ondes associées aux électrons, ils remplacent la longueur d'onde de la lumière par celle des électrons à 75 keV. La limite théorique ainsi obtenue est de 0,22 nm, une valeur atteinte expérimentalement seulement 40 ans plus tard. Bien que ces calculs prouvent qu'en se plaçant à très fort grossissement, il est possible d'atteindre une résolution bien meilleure que celle de la microscopie optique (**Ruska, 1986**), il reste encore de nombreuses limites techniques à franchir du point de vue pratique. Le premier appareil doté d'un système de balayage a été

conçu en 1935 par M. Knoll, lors des travaux sur les tubes cathodiques de téléviseur pour la Telefunken Company, le grandissement atteint ne dépassait pas un facteur de 10. (Figure. I.1).

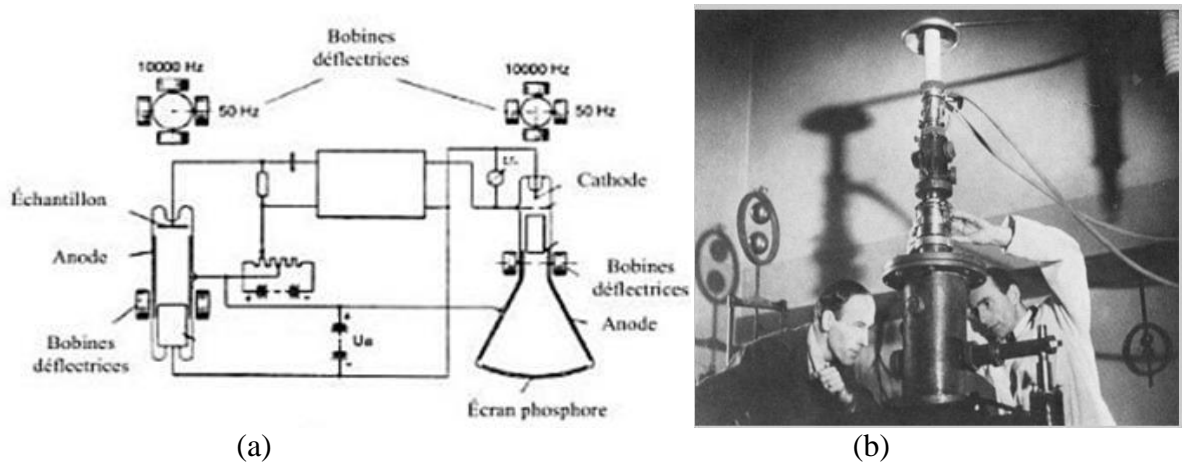


Figure. I.1 : (a) Schéma de principe du premier appareil conçu en 1935 par Knoll  
 (b) Photographie de Ernest Ruska et Max Knoll (1931)  
**(Knoll, 1935).**

Knoll a obtenu les premières images scannées des électrons de la surface d'un solide **(Knoll, 1935)**

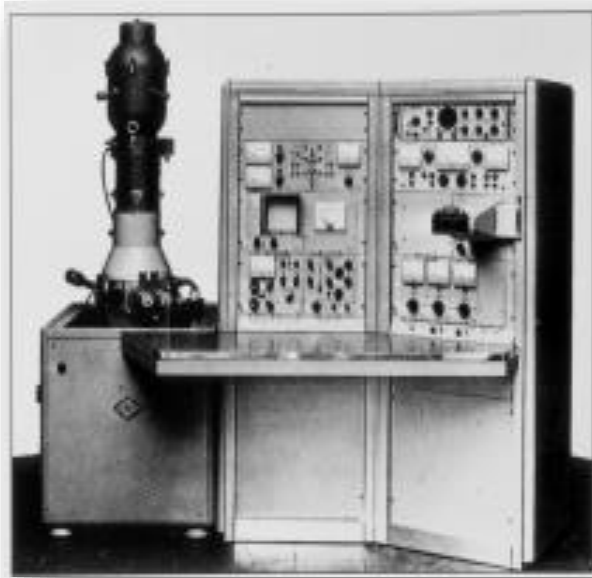
Trois ans plus tard, M. Von Ardenne (1938) équipe de bobines de balayage un microscope en transmission ayant une taille de sonde sub-micronique, mais abandonne ses travaux avec l'arrivée de la seconde guerre mondiale. Le premier microscope électronique à balayage pour échantillons massifs est développé en 1942 aux Etats-Unis par Zworykin et son équipe de RCA.

Le balayage était obtenu par le déplacement électromécanique de l'échantillon. Le canon à électrons est alors situé dans la partie basse de la chambre à échantillon, configuration qui sera abandonnée car elle présentait le risque de voir tomber l'échantillon dans la colonne, les résultats peu encourageants font que la RCA n'a pas donné suite à ces projets **(Brisset, 2008).**

Le développement du SEM a été repris en 1948 par Oatley à université de Cambridge. Oatley commence la construction d'un microscope basé sur celui de Zworykin. Suite à ces travaux, Smith (1956) montre que le traitement du signal peut améliorer la qualité des micrographies obtenues. Il introduit l'amplification non linéaire du signal et améliore le système de balayage. D'autre part, il est un des premiers à insérer un stigmatiseur dans le SEM, en vue de corriger les imperfections de symétrie cylindrique des lentilles.

En 1960, Everhart et Thornley améliorent considérablement le système de détection des électrons secondaires. Un nouveau détecteur est créé, désigné comme le « détecteur Everhart-Thornley ». Il est constitué d'une grille polarisée positivement, d'un scintillateur permettant de convertir les électrons en photons, et d'un guide de lumière transférant directement les photons à un photomultiplicateur (**Goldstein, 2003**).

En 1963, Pease et Nixon mettent en commun toutes ces avancées dans un même instrument : le *SEM V*, qui comprend trois lentilles magnétiques et un détecteur Everhart-Thornley. Ce microscope est le prototype du premier *SEM* commercial développé en 1965 : le *Stereoscan Mark I* de *Cambridge Scientific Instruments* (**Breton, 1999**) voir Figure (I.2).



**Figure I.2 :** *Le premier microscope électronique à balayage disponible dans le commerce, Stereoscan Mk1, 1965.*

## **I.2. Principe de la microscopie électronique à balayage:**

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

Un microscope électronique à balayage est un type de microscope qui utilise un faisceau de particules d'électrons pour « illuminer » un échantillon et en créer une image très agrandie. Les microscopes électroniques ont un plus grand pouvoir de résolution et une plus grande profondeur de champ que les microscopes optiques qui utilisent des rayonnements électromagnétiques et peuvent obtenir des grossissements beaucoup plus élevés allant jusqu'à quelque cent mille fois, alors que les meilleurs microscopes optiques sont limités à grossissement de 2000 fois. Les deux types de microscopes électroniques et optiques ont une résolution limite, imposée par la longueur d'onde du rayonnement qu'ils utilisent.

Le microscope électronique à balayage utilise des lentilles électrostatiques et électromagnétiques pour former l'image en contrôlant le faisceau d'électrons et le faire converger sur un plan particulier par rapport à l'échantillon. Ce mode est similaire à la façon dont un microscope optique utilise des lentilles en verre pour faire converger la lumière sur ou au travers de l'échantillon pour former une image.

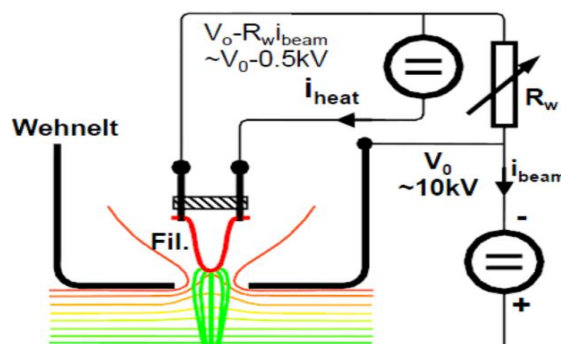
Les microscopes électroniques à balayage sont composés de 3 éléments principaux : canon à électrons, colonne électronique et détecteurs. L'ensemble est maintenu sous vide.

### I.3. Présentation d'un MEB conventionnel :

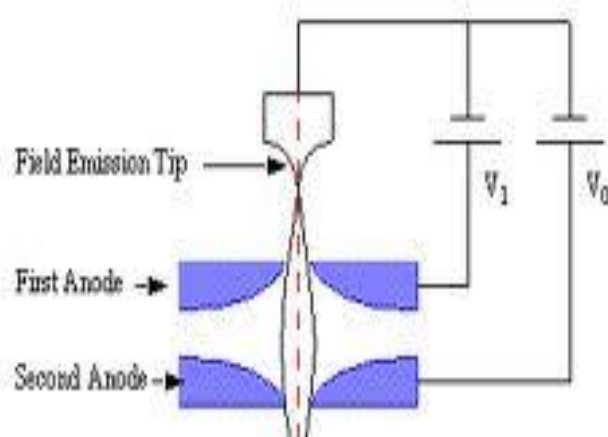
Le MEB est constitué principalement de 3 éléments :

**I.3.1. La colonne :** Elle contient le canon à électrons et le système optique (les lentilles).

**I.3.1. a- Le Canon à électron :** Les performances atteintes concernant la résolution en *SEM* sont principalement le résultat du développement de sources à brillance élevée. Les sources traditionnelles thermoélectroniques (filament de tungstène W, ou de cristal LaB<sub>6</sub> (hexa borure de lanthane) pour leur faible travail de sortie, c'est-à-dire l'énergie nécessaire pour extraire l'électron) sont toujours utilisées dans les instruments à faible coût (Fig. I.3). Elles sont peu à peu remplacées par les canons à émission de champ (FEG field emission gun) (Fig. I.4), ou à effet Schottky, qui présentent une brillance beaucoup plus importante et une dispersion en énergie moindre (elles sont donc davantage monochromatiques), comme l'illustre le tableau I.1. Leur utilisation a conduit à l'apparition des *SEM* dits « haute résolution » dans les années 1980 (Joy, 1991).



**Figure I.3 : Configuration d'un canon à émission thermoïonique :** L'électrode de Wehnelt, polarisée négativement par rapport à la cathode repousse les électrons vers celle-ci, concentre l'émission des électrons sur l'axe et régule le courant émis. A une forte résistance RW correspond une forte polarisation: le courant émis diminue ainsi que la taille de la source (cross-over).



**Figure I.4 : Configuration d'un canon à émission de champ FEG (d'après Goldstien et**  
*Une pointe monocristalline orientée très fine est placée en regard d'une électrode annulaire, et une différence de potentiel est appliquée entre les deux, de manière à créer un champ électrostatique très intense ( $10^9$  V/cm) et extraire les électrons par effet tunnel. Une deuxième électrode les accélère . Selon le cas l'émission se fait à température ambiante (FEG dit cold "froid"), ou avec une assistance thermique (FEG dit "Schottky" –Figure I.5).*

Source	Emission thermoïonique		Emission de champ	
Matériaux	Tungstène	LaB <sub>6</sub>	Schottky-FEG	Cold-FEG
Brillance réduite A/cm <sup>2</sup>	10 <sup>5</sup>	10 <sup>6</sup>	10 <sup>7</sup>	10 <sup>8</sup>
Température C°	1700-2400	1500	1500	ambiante
Taille de la source (nm)	30 000-100 000	5000-50 000	15-30	< 5

Courant d'émission( $\mu$ A)	100-200	50	50	10
Durée de vie (heure)	40-100	200-1000	>1 000	>1 000
Vide minimal (Pa)	$10^{-2}$	$10^{-4}$	$10^{-6}$	$10^{-8}$

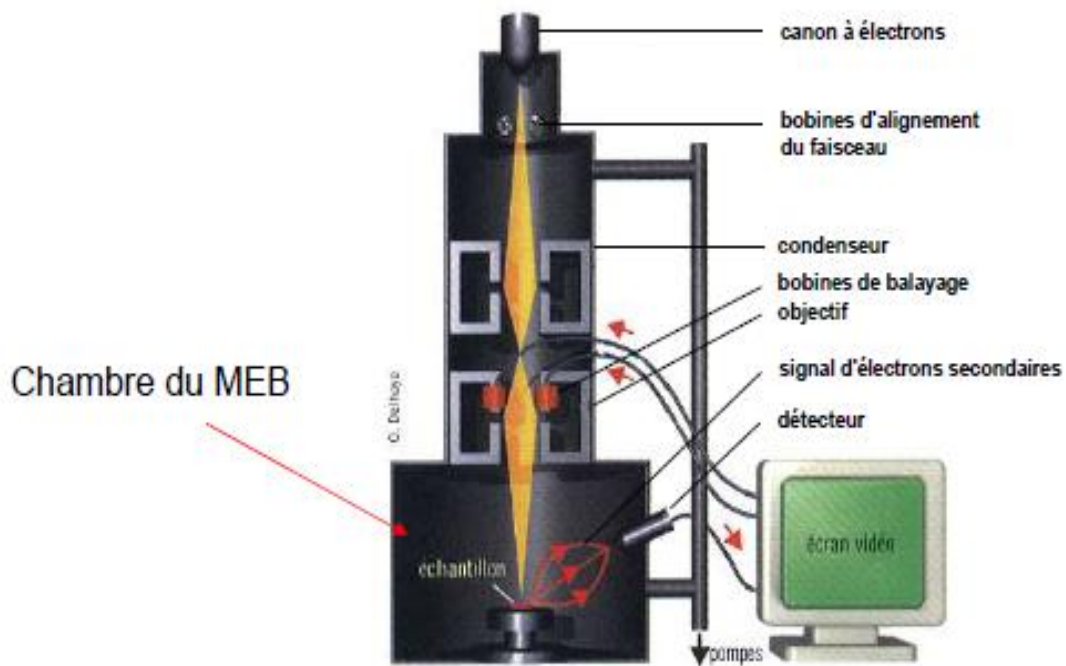
**Tableau I.1 :** Comparaison des performances de différentes sources d'électrons à 20 kV (Goldstein, 2003).

### **I.3.1 b. Le système optique:**

La colonne est composée généralement de deux lentilles dites condenseurs et d'une troisième lentille dite objectif, (figure I.6). Toutes les trois sont électromagnétiques, la fonction de cette colonne est de faire l'image de cross-over (environ  $20\mu\text{m}$ ) en un spot, de quelques nanomètres sur l'échantillon.

**I.3.2. La chambre à échantillon :** La chambre, partie intégrante de la colonne, permet l'introduction d'échantillons, parfois volumineux .Une platine porte objet située à l'intérieur de la chambre permet la fixation de l'échantillon et son déplacement selon trois axes X,Y et Z et de sa rotation et son basculement. En principe le prix du microscope est proportionnel à la taille de la chambre, car plus l'échantillon est grand et plus les amplitudes de mouvements de la platine doivent être importants ce qui conduit à des platines de grande taille plus onéreuses. Avec l'augmentation du volume de la chambre, c'est également l'augmentation des moyens de pompage qui accroissent le prix du microscope:

**I.3.3. Les détecteurs :** Les détecteurs et le dispositif de visualisation, lui-même couplé à la colonne par le système de balayage. La figure I.6 représente un schéma de principe du microscope électronique à balayage.



**Figure I.6** Schéma de principe du microscope électronique à balayage.

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

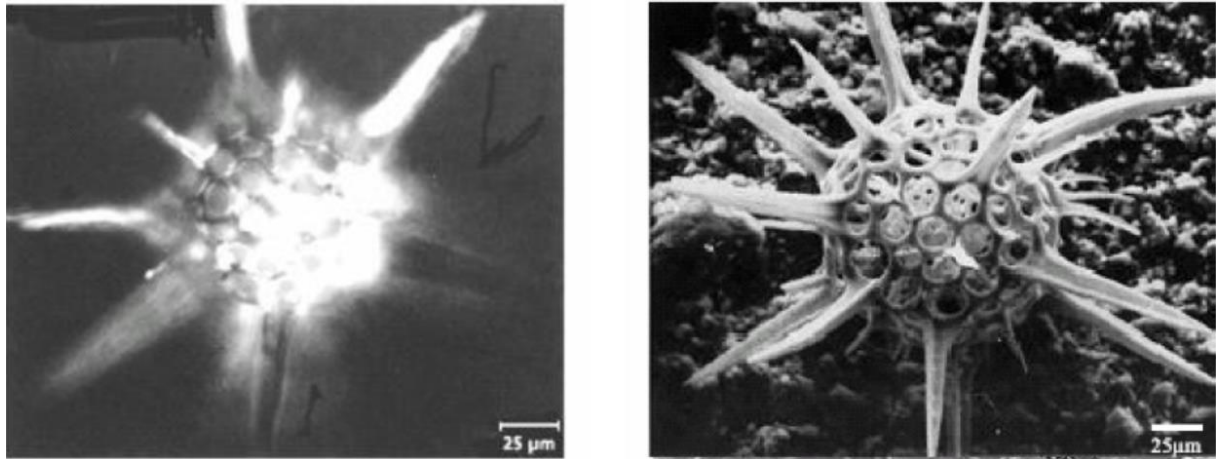
#### **I.4. Pourquoi le MEB ?**

Une des caractéristiques principales du MEB est sa haute résolution qui peut être de l'ordre du nm. Une autre caractéristique essentielle de cet appareil est la possibilité de visualisation en 3 dimensions grâce à la grande profondeur de champ et à l'effet de relief procuré par les signaux d'électrons secondaires et rétrodiffusés. Ces deux caractéristiques sont excellemment illustrées par la figure I.7, qui montre deux images comparées d'un même objet, prise en microscopie optique et en MEB.

(a)

(b)





**Figure I.7:** *Micrographies comparées d'un micro-organisme (Stokes, 2008)*  
*(Plancton marin-adiolarian Trochodiscus longispinus).*

*a) Image obtenue au microscope optique*

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

La Microscopie Electronique à balayage est basée sur l'interaction entre les électrons du faisceau incident et l'échantillon. La détection des signaux émis (électrons secondaires, rétrodiffusés et transmis, photons X) permet d'obtenir des informations sur la morphologie, la structure et la composition chimique de l'échantillon. Après interaction du faisceau incident avec la matière de l'échantillon, on obtient différents signaux exploitables pour l'analyse de l'échantillon (électrons secondaires et rétrodiffusés, électrons transmis, électrons Auger, rayons X ...) (Figure I.6). Dans le MEB, le faisceau balaye la surface de l'échantillon et le balayage est synchronisé avec celui du faisceau d'un tube cathodique. Les signaux présentant le plus d'intérêt sont les électrons secondaires et les électrons rétrodiffusés

### **I.5. Limitations du MEB conventionnel :**

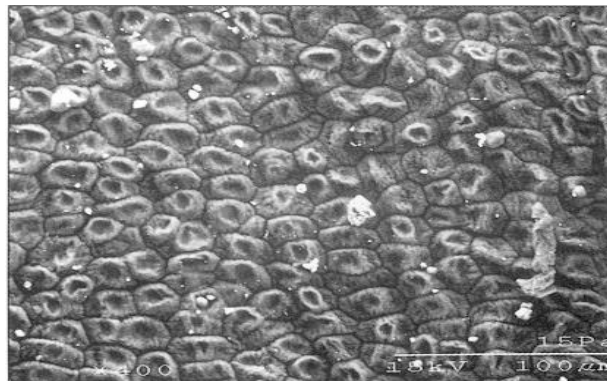
Dans son principe, la microscopie électronique à balayage « conventionnelle », impose deux contraintes majeures à l'échantillon à étudier :

- qu'il soit conducteur électrique.
- qu'il puisse être mis sous vide. Une pression inférieure à (ou de l'ordre de)  $10^{-3}$  Pa est maintenue tout au long du parcours des électrons, depuis le canon jusqu'à l'échantillon.

Cet appareil trouve ses limites lorsque la métallisation de matériaux isolants ou fragiles n'est pas souhaitée. Dans ces conditions de vide, les charges négatives apportées par le faisceau, lorsqu'elles ne sont pas évacuées par conduction électrique, s'accumulent en surface

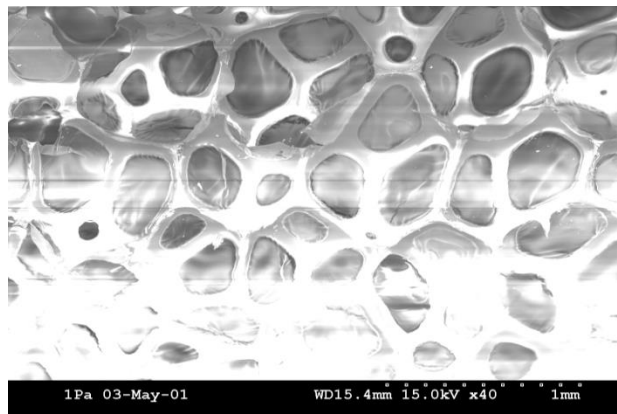
de l'échantillon et perturbent l'émission des électrons secondaires, et part suite, l'image obtenue. Ceci restreint le champ d'applications essentiellement aux échantillons métalliques, ou bien requiert des préparations d'échantillons telles que la métallisation pour les isolants, la fixation, la déshydratation et les techniques de cryogénies pour les échantillons biologiques; etc.

Par exemple, l'observation de cellules vivantes est impossible sans préparation préalable (déshydratation de la cellule sans détérioration des tissus) (figure I.8).



**Figure I.8 :**Dégradation de l'état de l'échantillon , Rétrécissement des cellules (Peau de banane 15 kV) (**Brisset, 2008**)

Les échantillons isolants sont donc préalablement rendus conducteurs par dépôt d'une fine couche métallique, qui permet l'évacuation de la charge statique accumulée en surface, montrée sur la figure I.9.



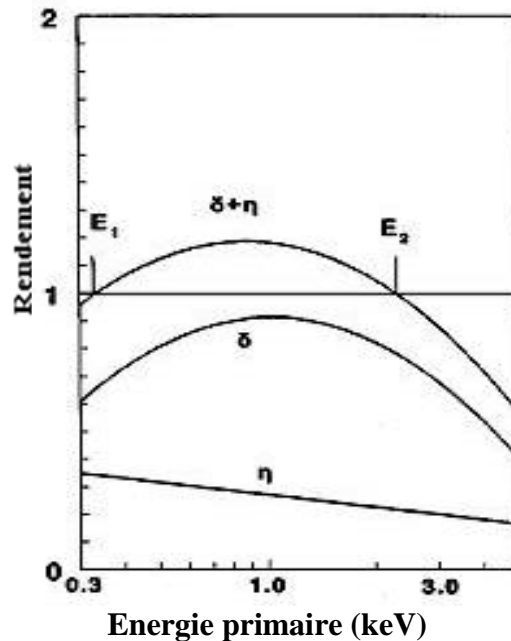
**Figure I.9.** Effet de charge (mousse de polymère)

## **I.6. Surmonter les limites du MEB conventionnel :**

Deux solutions permettent de surmonter les limitations du MEB :

### I.6. 1. Travailler à basse tension « utilisation du FEG » :

L'image de base du MEB est formée à partir d'un mélange en proportions variables des signaux d'électrons secondaires et rétrodiffusés. Le Rendement total, et le rendement d'émission en électrons secondaires ( $\delta$ ), et en électrons rétrodiffusés ( $\eta$ ) en fonction de l'énergie primaire sont présentés dans la figure I.10



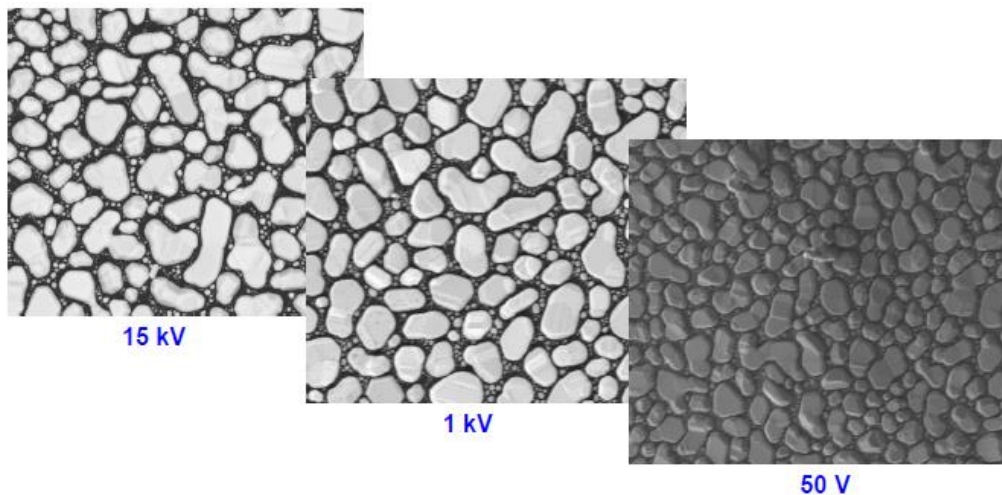
**Figure I. 10 :** Rendement d'émission total, en électrons secondaires ( $\delta$ ), et en électrons rétrodiffusés( $\eta$ ) en fonction de l'énergie primaire (Xiaohu Tang,2004)

On observe un maximum de l'intensité émise aux énergies primaires faibles, avec des valeurs de  $E_1$  et  $E_2$  comprises entre 300 eV et quelques keV (1 à 3 keV, valeur qui est en fonction de la nature de l'échantillon, et de la brillance du faisceau), suivi d'une décroissance régulière aux énergies primaires supérieures. La valeur  $\delta + \eta$  est le rendement total d'émission (secondaires+ rétrodiffusés), la valeur  $\delta + \eta = 1$  correspondant à l'équilibre entre charges apportées par le faisceau et charges émises, le courant échantillon étant alors nul. Donc en abaissant l'énergie du faisceau d'électrons de quelque keV, l'image obtenue n'est plus affectée par les effets de charge.

Le développement des canons à effet de champ avec leur forte brillance aux faibles tensions d'accélération a rendu possible, dans de bonnes conditions, l'observation des échantillons isolants sans métallisation préalable. Par contre, les rayons X habituellement

utilisés pour la microanalyse ne sont pas excités (**M.Répoux,C. Mathieu**) dans [François Brisset 2008].

Cependant, cette technique ne permet toujours pas de visualiser des surfaces contenant des éléments volatiles telles que des surfaces biologiques. En outre, si l'échantillon n'est pas homogène, les valeurs de E1 et E2 ne seront pas bien définies, ce qui rend cette méthode inopérante dans ce cas. Figure I.11 montre les problèmes de travailler à basse tension : la perte de résolution , et de la difficulté d'interpréter les informations des images (**Cazaux , 1999**).



**Figure I.12** : Image de grain d'or sur carbone.

Afin de remédier à ce problème, une solution a été développée et exposée dans le paragraphe qui suit.

## **I.6. 2. Utiliser le microscope électronique à balayage environnemental :**

L'introduction d'un gaz au voisinage de l'échantillon est une autre manière de réduire les effets de charges : des ions positifs vont être créés lors des collisions inélastiques entre les électrons et les molécules de 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 optique du microscope sous vide secondaire.

Augmenter la pression résiduelle élargit fortement le domaine d'applications du MEB puisqu'en plus les échantillons isolants, il devient possible d'observer sans préparations des

échantillons à fort taux de dégazage, des échantillons biologiques dans leur état naturel, et des échantillons humides.

Les microscopes électroniques à balayage sous pression contrôlée permettent de maintenir l'échantillon sous une pression pouvant atteindre quelques milliers de Pa tout en conservant une pression de l'ordre  $10^{-3}$  Pa dans la colonne. [M. Répoux, C. Mathieu 2008]

Dans ce qui suit, nous allons nous intéresser plus en détail à ce type de microscope puisque le système de détection, objet des travaux de cette thèse, concerne ce microscope.

## **I.7. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE À BALAYAGE ENVIRONNEMENTAL :**

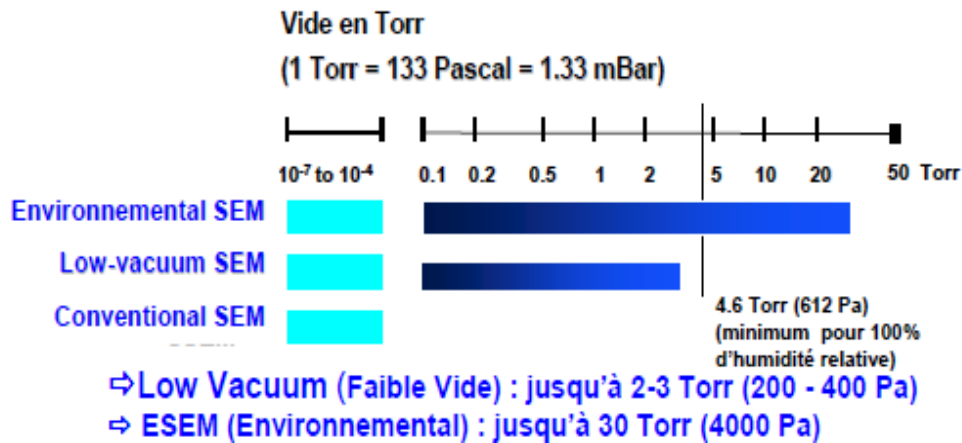
### **I.7.1.Terminologie**

Le Microscope Electronique à Balayage à haute pression (HPSEM), ou Environnemental (MEBE ou ESEM en anglais) à la différence des microscopes électroniques conventionnels possède une chambre d'analyse, à température et à pression variables, qui lui permet d'opérer pour toutes les applications qui nécessitent l'observation de la topographie d'un échantillon dans son état naturel. En effet, les échantillons pourront être hydratés, huileux ou isolants et l'observation ne nécessitera aucune préparation et donc aucune dégradation de leurs surfaces. Toutefois, l'application du MEBE ne s'arrête pas là, car un domaine qui lui est propre est l'observation in situ d'organismes vivants ou de phénomènes physico-chimiques avec la possibilité de faire varier la pression, le type de gaz et la température.

Nous utiliserons volontairement la terminologie de microscopie électronique à balayage environnementale qui regroupe les différents acronymes couramment utilisés qui sont :

- Microscopie électronique à balayage environnementale (ESEM) MEBE.
- Microscopie électronique à balayage à pression contrôlée (CPSEM).
- Microscopie électronique à balayage à haute pression à bas vide (low vacuum SEM).
- Microscopie électronique à balayage à pression variable (VPSEM) dans (Répoux et al., 2008)

Le point commun entre toutes ces microscopies est d'avoir une pression importante dans la chambre d'analyse et des procédés de détection des électrons spécifiques dans ces conditions particulières. La figure I.12 présente les gammes d'utilisation en pression de ces microscopes.



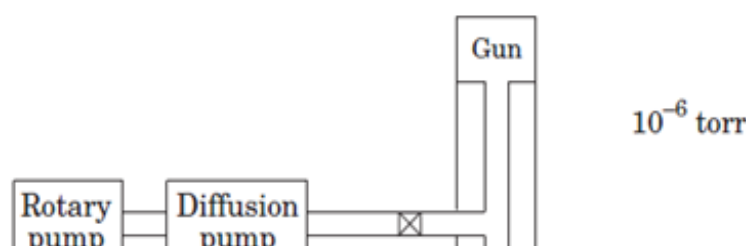
**Figure I.12 :** Gamme d'utilisation des MEB à haute pression.

## I.7.2. Généralités sur la MEBE :

### I.7.2.1. Pompage différentiel :

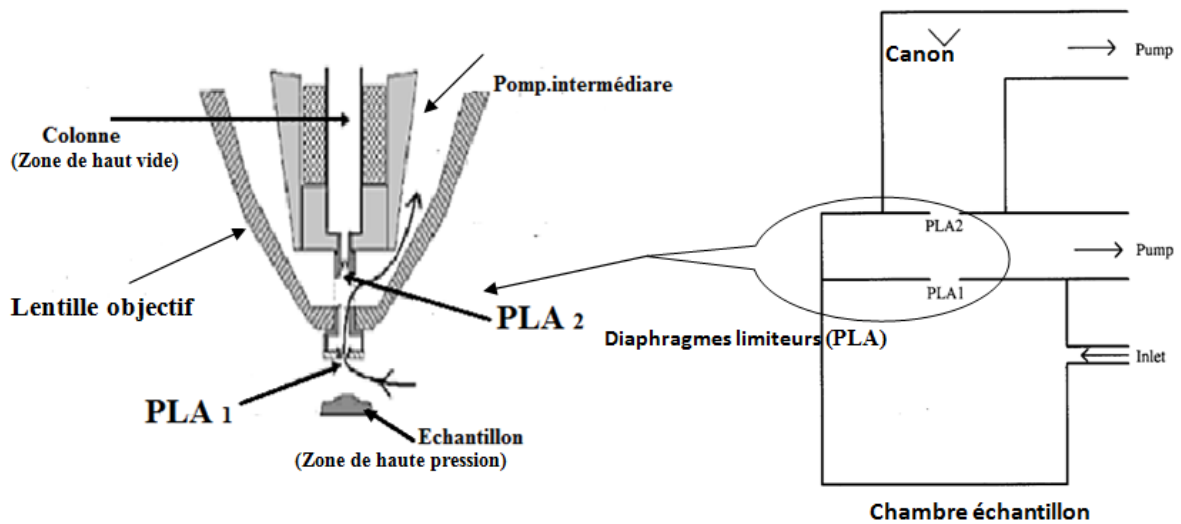
Le développement Microscopie électronique à balayage environnementale est liée à la volonté d'éliminer la nécessité de maintenir un haut vide dans les microscopes électroniques. En effet, pour certains échantillons délicats, ce haut vide engendre des restrictions concernant les méthodes de préparation et les conditions d'imagerie. Très tôt dans l'histoire de la microscopie électronique, des études sont menées en vue de permettre l'observation d'échantillons dans un état plus proche de leur état naturel. Dans les années 1950, des expériences s'intéressent aux systèmes de pompage différentiel, à la création de chambres environnementales, et au développement de microscopes équipés de diaphragmes limitant les remontées de pression (Danilatos, 1994).

Comme dans les MEB conventionnels, le HPSEM comprend une région qui doit être maintenue sous un vide de  $10^{-6}$  Torr, au niveau du canon à électrons selon que celui-ci est un canon à effet de champ ou à filament de tungstène, et de l'ordre de  $10^{-5}$  Torr dans la colonne, elle peut atteindre suivant les modèles du microscopes des valeurs allant de  $10^{-2}$  à 30 Torr dans la chambre échantillon. Ceci est rendu possible grâce à un ou plusieurs diaphragmes limiteurs de pression et à un pompage assuré au-dessus et au-dessous de chaque diaphragme. C'est le principe de pompage différentiel, figure (I.13).



**Figure I.13** : Schéma d'un exemple de pompage différentiel dans un MEBE.  
(Thiel, 1998).

Un diaphragme limiteur de pression est en général situé à l'extrémité de la lentille finale, le plus près possible de l'échantillon (environ 2mm) figure( I.14).



**Figure I.14** : Schéma des 2 diaphragmes limiteurs de pression au bas de la lentille objectif (Danilatos, 1994).

Depuis environ les années 50, les chercheurs ont conduit des expériences avec un pompage différentiel, ouverture limitée "chambres environnementales" pour le TEM, tandis

que d'autres ont travaillé avec des réservoirs scellés par un film mince, avec une fenêtre transparente aux électrons (voir, par exemple, Swift et Brown, 1970; Parsons, 1975 dans [\(Stokes, 2008\)](#)). Puis, en 1970, Lane a démontré l'utilisation d'une ouverture limitée dans la chambre d'un MEB, et aborda la conception d'un "environmental control stage", ainsi que la notion de section efficace de diffusion et de libre parcours moyen des électrons dans différents gaz, y compris l'hydrogène, l'oxygène, l'azote et les gaz nobles, et a démontré aussi la stabilité de l'imagerie de l'eau liquide.

Pendant ce temps, Robinson, Moncrieff et d'autres dans les années 70 ont travaillé sur le développement d'un MEB capable de maintenir une forte pression tout en assurant le contrôle de l'image, par l'adaptation de la chambre d'analyse elle-même du MEB ([Robinson, 1975](#)). Une image stable d'eau liquide a également été montrée par Robinson lors du Congrès international sur la Microscopie Electronique (ICEM 8) à Canberra, en Australie (Robinson, 1974). Il travaillait sur une modification du JEOL JSM 2 SEM, ayant un système d'ouverture (PLA) de 100  $\mu\text{m}$  pour séparer la région du haut vide contenant la source d'électrons de celle de la chambre d'échantillon, à une pression plus élevée. La pression maximale de vapeur d'eau était 665 Pa (5 torr), et l'eau liquide a été maintenue par un refroidissement de la chambre et un réservoir d'eau glacé autour de l'échantillon. Un détecteur à l'état solide, d'électrons rétrodiffusés (ESB) a été utilisé, avec une résolution raisonnable allant jusqu'à un grossissement de 2000x. La présence du système d'ouverture avait réduit le taux de balayage du faisceau d'électrons ainsi que le champ de vision était limité, et le minimum était un grossissement de 100x ([Robinson, 1996](#)). À cette époque, l'objectif était l'observation des spécimens biologiques, sans recours à la préparation. Il avait d'ailleurs observé que l'imagerie d'objets non isolants à des pressions au-dessus de  $\sim 10$  Pa, semble réduire les effets de charges. L'explication se concentre sur l'idée que le film d'eau liquide a été responsable de l'octroi de cette conductivité. Bien sûr, cela ne pouvait pas expliquer pourquoi l'imagerie avec des gaz autres que l'eau a un effet similaire.

Moncrieff et al. (1978) avaient proposé que les collisions entre les électrons et les molécules de gaz, entraînent la production d'ions positifs (voir Von Engel, 1965), et leurs attractions vers la charge négative de l'échantillon, qui était le mécanisme observé de la neutralisation de la charge excédentaire, (références citées dans [\(Stokes, 2008\)](#)).

Moncrieff et ses collègues de travail ont calculé la valeur et les effets de la diffusion des électrons primaires par l'azote (Moncrieff et al., 1979) dans [\(Stokes, 2008\)](#). Une conclusion



importante de ce travail est que, bien que certains électrons primaires étaient diffusés quelque dizaines de milliers de microns loin de leur trajectoire initiale, les électrons formant la sonde du faisceau ont maintenu le même diamètre dans la zone d'impact que celui constitué en vide poussé. Cependant, la diffusion des électrons réduit le courant total de la sonde, tout en ajoutant une composante uniforme au bruit de fond.

En 1978, Robinson a commencé à commercialiser cette nouvelle technologie avec son entreprise ETP 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 lancé WET SEM.

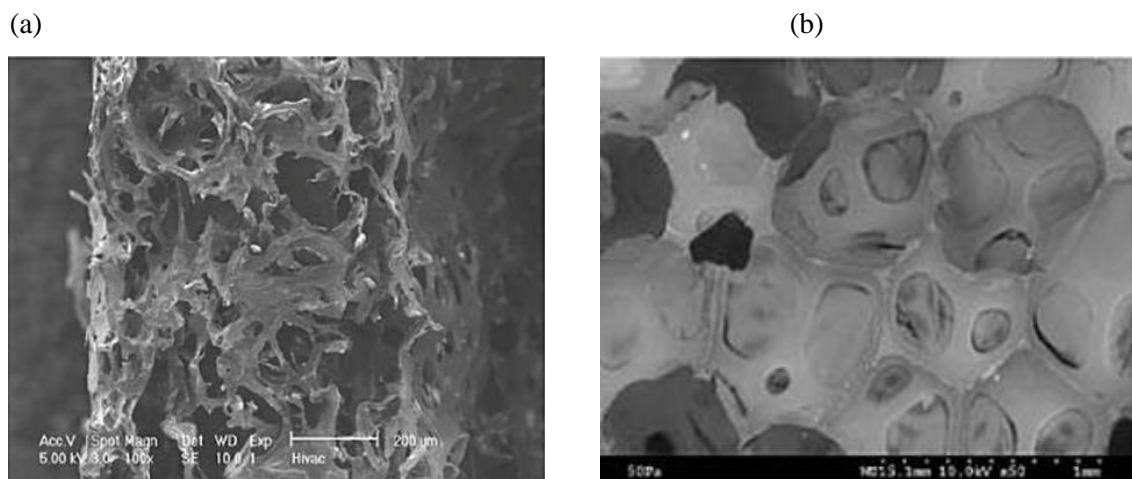
En fin de compte, Robinson et ses collaborateurs ont travaillé à des températures et des pressions physiologiques. L'observation de l'eau liquide à la température du corps (~ 37°C) nécessite une pression de vapeur d'eau au-dessus de 6,65 kPa (50 torr) et d'une distance de travail ne dépassant pas 0,5 mm. Comme il devient physiquement difficile ou impossible de travailler avec un spécimen hydraté, aussi proche du système d'ouverture (PLA), ces critères définissent la limite supérieure de la pression. Maintenant, afin de maintenir la différence de pression entre deux zones séparées par une seule PLA, pour une chambre à une pression de 6,65 kPa, la taille d'ouverture devrait être ramenée à ~ 13 µm (Robinson, 1996 dans [Debbie J Stokes ,2008]). Il en résulte une très grande restriction du champ de vision. Par conséquent, pour améliorer la situation, Danilatos et Robinson (1979) ont introduit deux systèmes d'ouvertures (2 PLA) avec trois zones de pompage différentiels. Au même temps, Shah et de Beckett (1979) (dans [Debbie J Stokes ,2008]) 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 (1980) (Stokes, 2008) ont construit le même prototype en utilisant un système Stereoscan Mk II de Cambridge.

Les étapes importantes qui ont suivi, ont eu lieu dans les années 1980, lorsque Danilatos, travaillait avec Electroscan (microscope électronique à balayage environnementale). L'ESEM avait une limite de pression de 2,66 kPa (20 torr) avec un détecteur d'électrons secondaires (SE) intégré qui pourrait être utilisé dans un milieu gazeux , en utilisant l'ionisation par cascade d'électrons secondaires (Danilatos 1990b dans [Debbie J Stokes ,2008]).

Dans les années 1990, d'autres instruments commençaient à être disponibles. Il s'agit du faible vide, (LVSEM, JEOL); naturel SEM (NSEM, Hitachi); SEM à environnement contrôlé (ECO SEM, 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 contrôlée, CPSEM, a été présenté par Philips Electron Optics. Au cours de cette même année, Philips a acquis Electroscan et son groupe ESEM technology, et par la suite fusionné avec le FEI, qui est connue sous le nom de FEI Company en 2002 (Stokes, 2008) .

L'amélioration de la qualité de l'image est bien illustrée par la figure I.15, sous vide et sous pression de vapeur d'eau.(A.Jadin ) dans (Danilatos, 1990).



**Figure I.15** : Observation d'une éponge (Danilatos, 1990).

- a) en haut vide, contraste acceptable, mais la structure de l'échantillon est complètement détruite.
- b) sous vapeur d'eau et pression plus élevée ,afin de réduire le séchage de l'échantillon.

### I.7.2.2. La détection :

Dans le mode vide poussé, les détecteurs d'électrons standards sont : détecteurs d'électrons secondaires de type Everhart thornley; et d'électrons rétrodiffusés (détecteur à semi conducteurs (diode) ; (détecteurs à scintillateurs)

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

Il convient de noter qu'il existe plusieurs approches différentes pour la détection du signal dans le HPSEM, 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 (Danilatos 1989a ; Farley et Shah, 1991 ; Mohan et al. 1998 )
- Collecte du signal d'électrons secondaires amplifié par le gaz (Danilatos, 1990a ; Thiel et al.1997 ; Toth et al.2006 )
- Luminescence du gaz le signal photonique obtenu est amplifié par un photomultiplicateur (Danilatos, 1989b ; Morgan et al, 2000).
- Utilisation d'un détecteur d'électrons secondaires conventionnel de type Everhart-Thornley modifié séparé physiquement de la haute pression régnant dans la chambre d'échantillon (Jacka et al 2003; Slowko 2006 ).

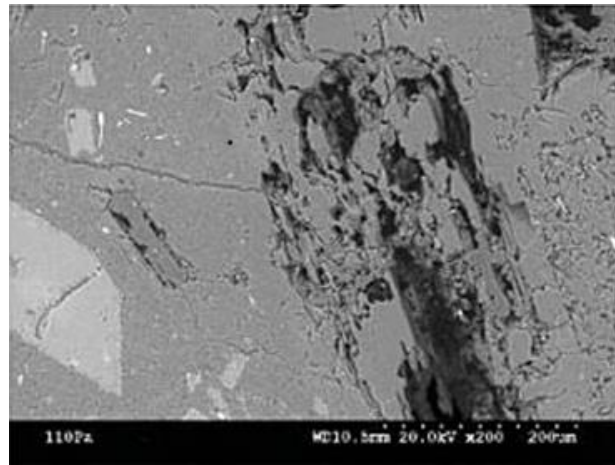
Parmi ces méthodes nous séparons ci-dessous les détecteurs à électrons rétrodiffusés et ceux à électrons secondaires:

#### **a- Le détecteur à électron rétrodiffusés (détecteur BSE)**

Robinson (**Danilatos et al., 1979**) a montré qu'il était possible d'éliminer les phénomènes de charges en introduisant une petite quantité de vapeur dans la chambre d'analyse et qu'il était possible d'obtenir une image d'échantillon isolant en utilisant les électrons rétrodiffusés. Pour cela, il a mis au point un détecteur d'électrons rétrodiffusés avec un grand angle de collection.

Le choix des électrons rétrodiffusés se justifie par leur grande énergie leur permettant de passer à travers le gaz. On ne tient pas compte de l'interaction gaz – électrons. Dans les

conditions de haute pression, l'image obtenue avec l'emploi de détecteur d'électrons rétrodiffusés s'interprète comme en mode conventionnel. (Figure I.16) :



**Figure I.16** : Image d'une pierre polie isolante obtenue à partir des électrons rétrodiffusés avec le détecteur Robinson 110Pa 20kv

#### **b- Le détecteur à amplification gazeuse (détecteur GSED):**

Ce détecteur a été développé par Danilatos (**Danilatos, 1990**). Le principe de ce détecteur est basé sur le phénomène d'avalanche créé par l'ionisation du gaz en présence d'un champ électrique. Des électrons secondaires et rétrodiffusés sont générés et sous l'action du champ électrique, ils sont attirés par l'électrode positive. S'ils sont suffisamment énergétiques, et comme le libre parcours moyen est très faible devant la distance entre les deux plaques, ils vont se multiplier en ionisant le gaz entraînant une amplification en cascade.

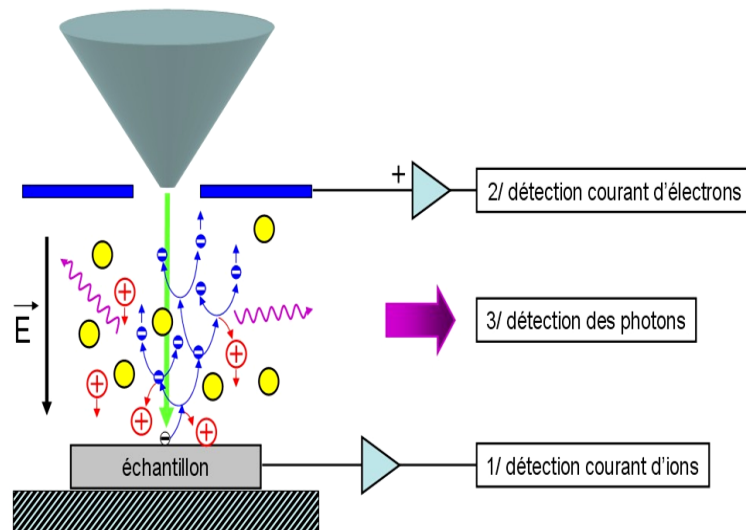
Les électrons produits dans le gaz sont appelés des électrons secondaires environnementaux et ils sont collectés par l'électrode positive. Les ions positifs générés durant le processus de collision sont attirés à la surface de l'échantillon et servent à éliminer l'excès de charge.

On distinguera plusieurs types de détecteurs correspondants aux différents mesures qui peuvent être effectuées lorsqu'une électrode est polarisée positivement est placée à proximité de l'échantillon (figure I.17) :

1-mesure du courant échantillon, dont la valeur dépend fortement du courant d'ions créés dans le processus d'avalanche.

2-mesure des électrons arrivant sur l'anode, fonction du courant créé dans le processus d'avalanche.

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

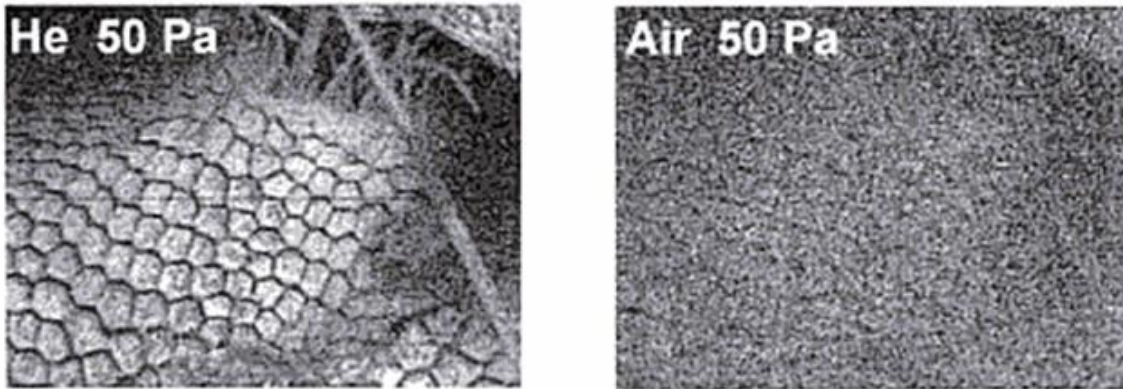


**Figure I.17 :**(a) Les différents signaux détectés résultants de l'amplification par avalanche dans le gaz résiduel ( **Brisset, 2008**).

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

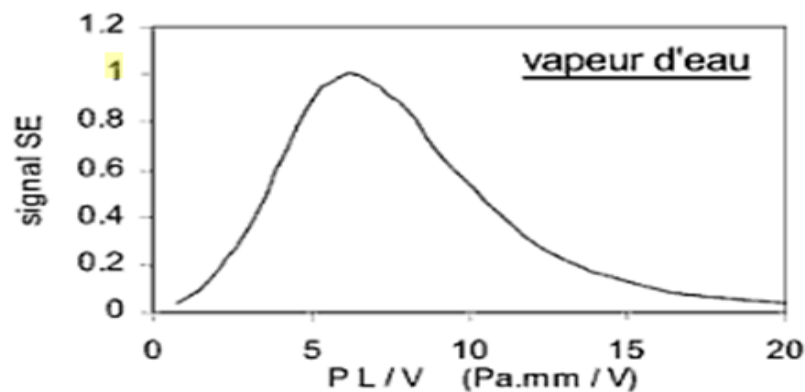
### **I.7.3. Amplification par le gaz et signaux spécifiques:**

L'ionisation du gaz est très importante dans le MEBE car les particules de gaz ionisées sont utilisées pour neutraliser la surface de l'échantillon pendant l'observation. Toutefois, comme le montre Danilatos (**Danilatos et al., 1979**), l'efficacité de l'ionisation du gaz dépendra beaucoup de la nature du gaz utilisé, comme on peut le voir sur la figure I.18.



**Figure I.18:** Influence de la nature du gaz, hélium et de l'air –images obtenues avec le détecteur d'électrons rétrodiffusées BSE, à 1.5 kV et une distance de travail de 10mm  
(Danilatos et al, 1979)

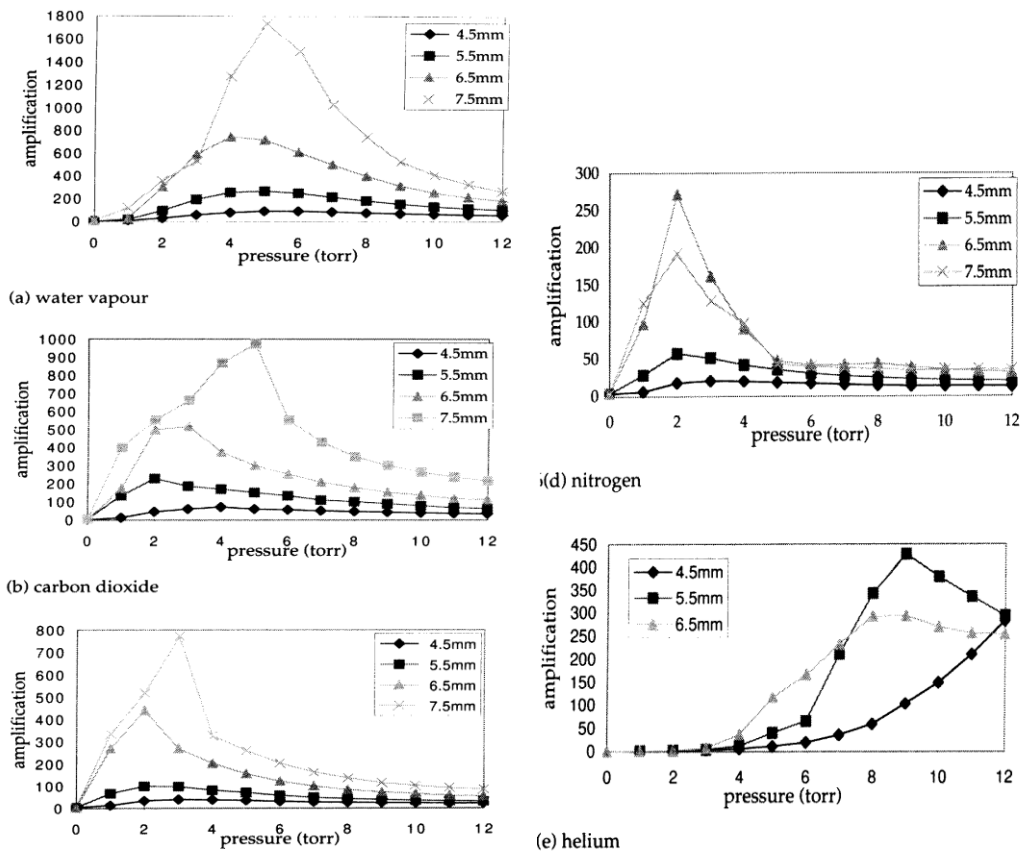
Thiel (Thiel, 1997) donne une courbe universelle du signal électronique établie avec différentes valeurs de distances de travail, de tensions appliquées et de pressions qui montre que l'amplification passe par un maximum pour une valeur de  $PL/V$  égale à 6.5 Pa.mm/V (figure I.19).



**figure I.19 :** Courbe universelle du signal électronique en fonction de  $PL/V$   
pour la vapeur d'eau

La plupart des gaz présentent un pic d'amplification qui dépend de la nature du gaz, de la pression de gaz, de la tension de polarisation du détecteur et de la distance détecteur-échantillon. Il faut noter que la vapeur d'eau présente le meilleur pic d'amplification justifiant ainsi le choix de son utilisation dans la microscopie environnementale, ensuite c'est le dioxyde de carbone, et l'hélium en dernier, la figure I.20 (Fletcher ,1997) montre la

dépendance de l'amplification sur la pression pour cinq gaz (a) vapeur d'eau, (b) CO<sub>2</sub>, (c) NO<sub>2</sub>, (d) N<sub>2</sub>, (e) hélium, pour différentes distances ,(énergie 20keV, et champ de 66.7 V/ mm)



**Figure I.20.** Evolution de l'amplification avec la pression à différentes tensions d'accélération pour cinq gaz (énergie 20keV, distance échantillon-détecteur 6.5 mm, et polarisation du détecteur 350 V): a) vapeur d'eau, b) dioxyde de carbone, c) oxyde d'azote, d) azote, e) hélium ( **Fletcher,1997**).

Les auteurs concluent que la vapeur d'eau permet d'obtenir le maximum d'amplification quelles que soient la tension d'accélération et la pression partielle utilisées. Il est intéressant de remarquer que le maximum de ces courbes d'amplification pour la vapeur d'eau est situé à une pression généralement comprise entre 4 et 5 Torr. La vapeur d'eau est le gaz le plus utilisé en *MEBE*, en raison de son efficacité pour l'amplification du signal par le gaz, ainsi que de ses propriétés thermodynamiques, ce qui conduit à des images

de bonne qualité et une stabilité pour de nombreux objets hydratés.

Cependant, comme le montre la figure I.21, selon le modèle de calcul utilisé, il existe des divergences dans les travaux sur le gain d'amplification pour la vapeur d'eau.

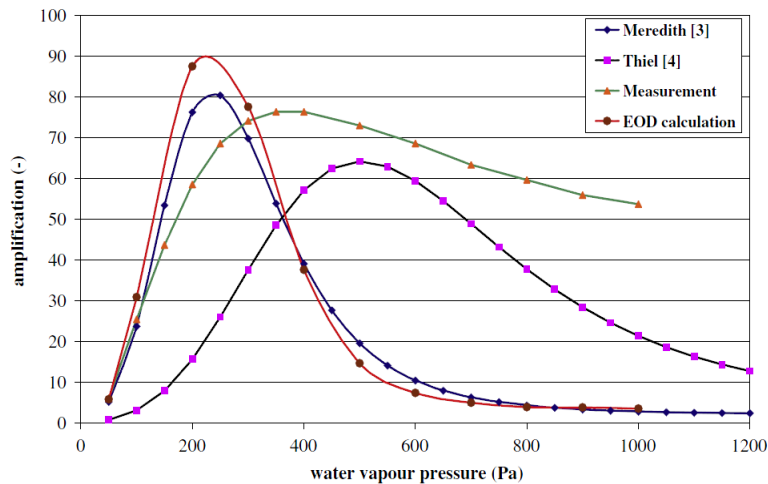


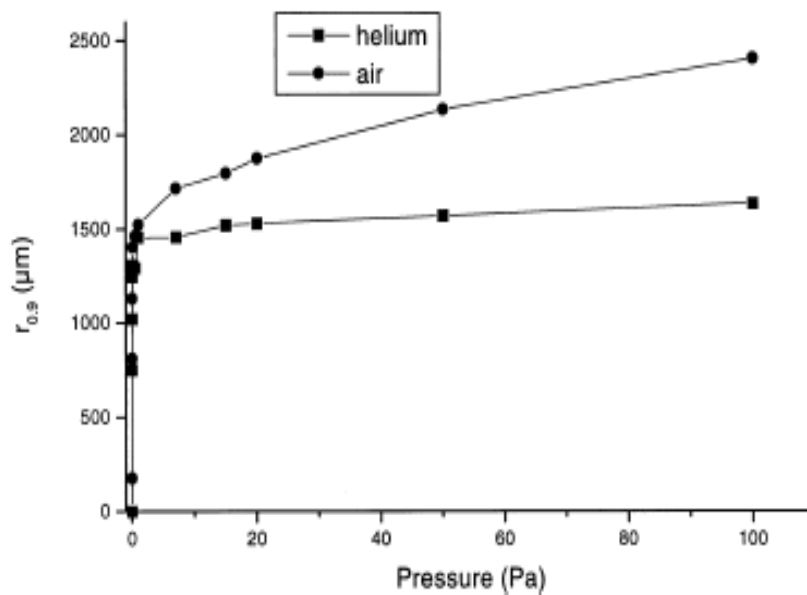
Fig. 5. Dependence of signal amplification obtained from the numerical models published by Meredith et al. [6] and Thiel et al. [8], calculated by the program EOD and measurement on the water vapor pressure (accelerating voltage 20 kV, probe current 25 pA, gas path length 6 mm, ionization detector 300 V, water vapor environment).

Figure I. 21. Gain calculé pour la vapeur d'eau, comparé au gain expérimental (Nedela, 2011)

Notons que la gamme d'énergie nécessaire pour ioniser la plupart des gaz est inférieure à 100 eV. Or les tensions d'accélération utilisées dans le MEBE sont souvent de l'ordre de quelques dizaines de kilos électron volt. Ce n'est donc pas uniquement le faisceau d'électrons primaires qui va ioniser le gaz mais ce sont, aussi et surtout, les électrons secondaires (~50eV) issus de l'échantillon qui vont ioniser les entités de gaz qui à leur tour vont neutraliser la charge à la surface de l'échantillon. Ceci contribue également à l'amplification du signal d'électrons secondaires.

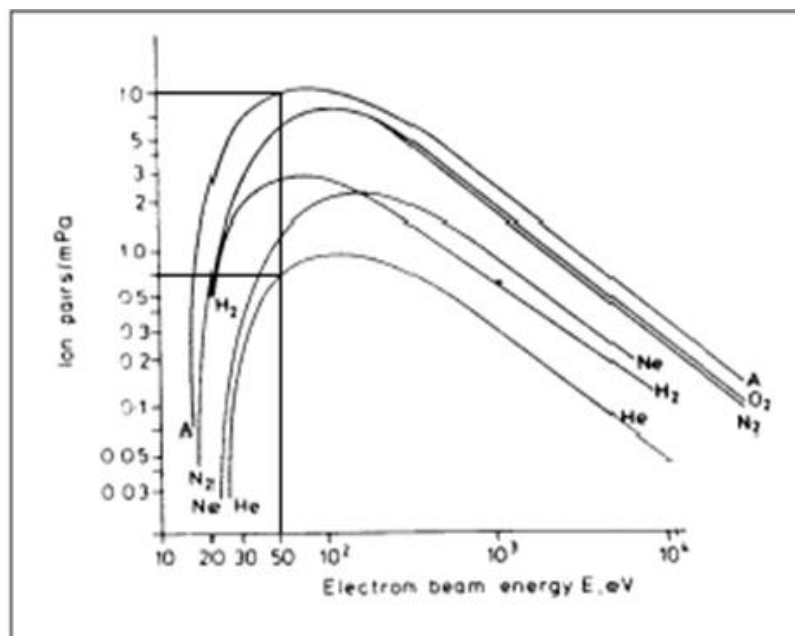
Ainsi, l'utilisation d'un gaz tel que l'hélium, (figure I.22), qui diffuse peu les électrons ; et qui est peu ionisé (figure I.23), rendra difficile la neutralisation de la surface de l'échantillon aux basses pressions. Ce type de gaz nécessitera de monter en pression pour augmenter la concentration des atomes dans la chambre d'analyse afin de produire suffisamment d'atomes ionisés.





**Figure I.22** : Rayon de diffusion (Skirt) en fonction de la pression ,pour l'He ,et l'aire .

(Kadoun et al., 2003)



**Figure I.23** : Evolution de l'ionisation de gaz en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons, en ordonnée est reporté le nombre de paires d'ions par mètre et par Pa (Danilatos, 1988).

En effet, on observe que l'hélium est un gaz très difficile à ioniser et que pour des électrons secondaires possédant une énergie de 50 eV, on aura formation que de 0,75 paires d'ions par mètre et par pascal. C'est à dire que dans le MEBE à 2Torr et avec une distance de travail de 19 mm, on ne formera qu'environ 4 paires d'ions. Alors qu'avec l'argon dans les mêmes conditions on formera 50,5 paires d'ions. Il faudra augmenter la pression d'hélium jusqu'à environ 27 Torr afin d'obtenir 50,5 paires d'ions formés dans les mêmes conditions. Et on observe le même comportement pour les ionisations réalisées par le faisceau d'électrons primaires. Enfin, on soulignera que plus l'énergie des électrons augmente, moins ils ioniseront le gaz de façon satisfaisante.

#### I.7.4. Composition du gaz et quencheurs :

L'utilisation de gaz rares (He, Ne, Ar, Kr, Xe) comme un environnement gazeux et pour la détection de particules est appropriée pour plusieurs raisons. D'une part, un gaz noble possède peu d'états excités, l'ionisation est donc favorisée devant l'excitation. D'autre part, la probabilité de recombinaison entre un électron et un ion est faible. L'Hélium est très souvent employé en microanalyse. L'utilisation de gaz rares présente toutefois certains inconvénients. Les gaz nobles ne permettent pas d'atteindre des gains élevés pour deux raisons :

- Les photons UV émis peuvent, par effet photoélectrique avec le métal constituant les électrodes, provoquer l'émission d'électrons qui génèrent une nouvelle avalanche.

- Les ions de gaz rares qui migrent vers la cathode sont neutralisés par extraction d'un électron. Le bilan énergétique est équilibré par l'émission d'un photon ou d'un électron secondaire qui peuvent également induire de nouvelles avalanches. Le détecteur atteint alors un régime de claquage qui peut s'avérer destructif. Pour empêcher la multiplication gazeuse de diverger à haut gain, on ajoute au gaz noble une certaine quantité de molécules gazeuses polyatomiques. Ces gaz, dits *quencher*, possèdent de nombreux états excités non radiatifs (vibration, rotation, excitation) à des niveaux d'énergie plus bas que le gaz noble. Ces gaz polyatomiques permettent donc d'absorber les photons ultraviolets indésirables, dont l'énergie est dissipée dans des états non radiatifs. Les quencheurs jouent donc un rôle primordial dans le bon fonctionnement du détecteur et permettent d'obtenir de longs plateaux d'efficacité en fonction de la tension des pistes d'anode.

Cependant, la procédure ultime pour neutraliser la charge électrique est de former le nombre exact d'ions positifs dans le gaz. En fait, éliminer la charge négative ne dépend pas forcément de la pression du gaz, car il y a plusieurs façons de faire pour équilibrer l'excès des charges négatives avec les ions positifs sans augmenter la pression:

- La tension du détecteur GSED (Gaseous secondary electron device) peut être ajustée pour équilibrer la quantité d'ions positifs contre la charge négative (**Carlton et al., 2004**).

- Cela dépend également du produit (pression) x (distance) ou Pxd, où, lorsque la pression diminue (moins d'un 1 torr), nous pouvons augmenter la distance échantillon /électrode en proportion inverse et de maintenir une quantité équivalente entre la charge négative et les ions positifs (**Danilatos, 1993a**)

-La présence d'un gaz qui possède une électronégativité élevée peut favoriser le processus d'ionisation et augmenter la quantité d'ions positifs (**Mansour et al., 2009**).

Pour cette raison, le but de notre travail est de comparer l'amplification et le taux d'ionisation, de quelques gaz et leurs mélanges, on a utilisé le modèle d'amplification de B.Thiel, ce modèle décrit les processus de formation des signaux dans un environnement de gaz à haute pression et démontre l'influence des paramètres tels que l'énergie primaire du faisceau, la distance de travail, la pression, la nature de gaz utilisé

---

## LA MICROSCOPE ELECTRONIQUE À BALAYAGE : DU MEB AU MEBE

---

Ce chapitre décrit l'histoire de la microscopie électronique à balayage et son développement au cours du temps, du dispositif conventionnel à l'avènement de la microscopie environnementale.

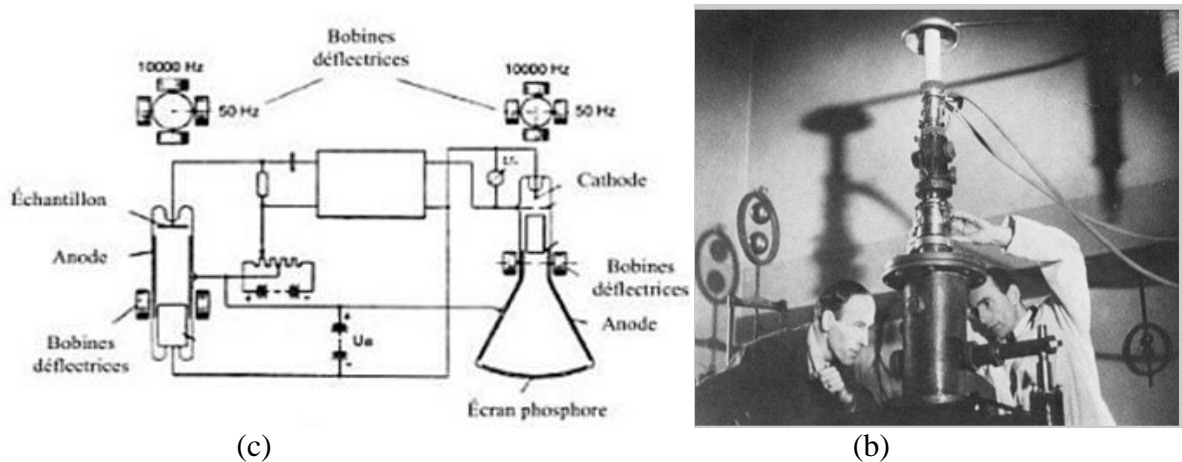
### I. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE

#### I.1. Historique:

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 1931, Ruska et son équipe de recherche à Berlin travaillent sur le développement de la microscopie électronique. Ils sont très surpris en apprenant que même en utilisant les électrons, la résolution peut être limitée par une longueur d'onde. Mais ils découvrent ensuite avec l'équation de de Broglie que les longueurs d'onde associées aux électrons sont plus petites que celle de la lumière utilisée en microscopie optique, et cela d'au moins cinq ordres de grandeur. Pour cette raison, ils considèrent que les microscopes utilisant des électrons devraient montrer une résolution meilleure que ceux fonctionnant avec la lumière, et décident de ne pas abandonner leurs recherches à ce sujet. En 1932, Knoll et Ruska s'intéressent à l'estimation de la limite de résolution d'un microscope électronique. En faisant l'hypothèse que la formule exprimant la résolution limite en microscopie optique est toujours valable pour les ondes associées aux électrons, ils remplacent la longueur d'onde de la lumière par celle des électrons à 75 keV. La limite théorique ainsi obtenue est de 0,22 nm, une valeur atteinte expérimentalement seulement 40 ans plus tard. Bien que ces calculs prouvent qu'en se plaçant à très fort grossissement, il est possible d'atteindre une résolution bien meilleure que celle de la microscopie optique (**Ruska, 1986**), il reste encore de nombreuses limites techniques à franchir du point de vue pratique. Le premier appareil doté d'un système de balayage a été

conçu en 1935 par M. Knoll, lors des travaux sur les tubes cathodiques de téléviseur pour la Telefunken Company, le grandissement atteint ne dépassait pas un facteur de 10. (Figure. I.1).



(c) Schéma de principe du premier appareil conçu en 1935 par Knoll  
 (d) Photographie de Ernest Ruska et Max Knoll (1931)  
**(Knoll, 1935).**

Knoll a obtenu les premières images scannées des électrons de la surface d'un solide **(Knoll, 1935)**

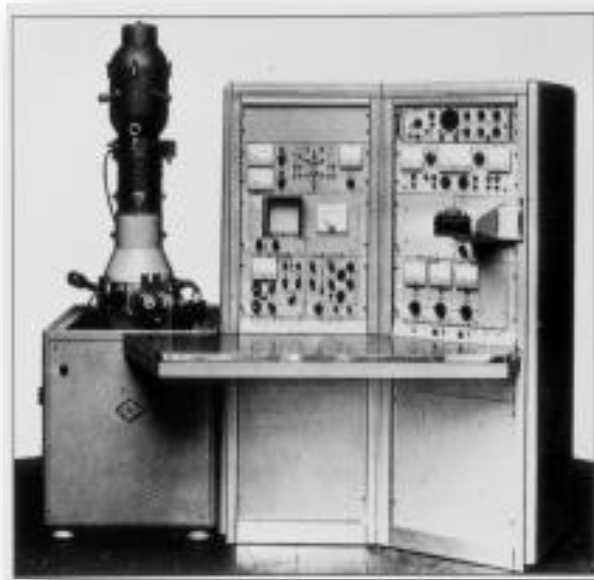
Trois ans plus tard, M. Von Ardenne (1938) équipe de bobines de balayage un microscope en transmission ayant une taille de sonde sub-micronique, mais abandonne ses travaux avec l'arrivée de la seconde guerre mondiale. Le premier microscope électronique à balayage pour échantillons massifs est développé en 1942 aux Etats-Unis par Zworykin et son équipe de RCA.

Le balayage était obtenu par le déplacement électromécanique de l'échantillon. Le canon à électrons est alors situé dans la partie basse de la chambre à échantillon, configuration qui sera abandonnée car elle présentait le risque de voir tomber l'échantillon dans la colonne, les résultats peu encourageants font que la RCA n'a pas donné suite à ces projets **(Brisset, 2008).**

Le développement du SEM a été repris en 1948 par Oatley à université de Cambridge. Oatley commence la construction d'un microscope basé sur celui de Zworykin. Suite à ces travaux, Smith (1956) montre que le traitement du signal peut améliorer la qualité des micrographies obtenues. Il introduit l'amplification non linéaire du signal et améliore le système de balayage. D'autre part, il est un des premiers à insérer un stigmatiseur dans le SEM, en vue de corriger les imperfections de symétrie cylindrique des lentilles.

En 1960, Everhart et Thornley améliorent considérablement le système de détection des électrons secondaires. Un nouveau détecteur est créé, désigné comme le « détecteur Everhart-Thornley ». Il est constitué d'une grille polarisée positivement, d'un scintillateur permettant de convertir les électrons en photons, et d'un guide de lumière transférant directement les photons à un photomultiplicateur (**Goldstein, 2003**).

En 1963, Pease et Nixon mettent en commun toutes ces avancées dans un même instrument : le *SEM V*, qui comprend trois lentilles magnétiques et un détecteur Everhart-Thornley. Ce microscope est le prototype du premier *SEM* commercial développé en 1965 : le *Stereoscan Mark I* de *Cambridge Scientific Instruments* (**Breton, 1999**) voir Figure (I.2).



**Figure I.2 :** *Le premier microscope électronique à balayage disponible dans le commerce, Stereoscan Mk1, 1965.*

## **I.2. Principe de la microscopie électronique à balayage:**

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

Un microscope électronique à balayage est un type de microscope qui utilise un faisceau de particules d'électrons pour « illuminer » un échantillon et en créer une image très agrandie. Les microscopes électroniques ont un plus grand pouvoir de résolution et une plus grande profondeur de champ que les microscopes optiques qui utilisent des rayonnements électromagnétiques et peuvent obtenir des grossissements beaucoup plus élevés allant jusqu'à quelque cent mille fois, alors que les meilleurs microscopes optiques sont limités à un grossissement de 2000 fois. Les deux types de microscopes électroniques et optiques ont une résolution limite, imposée par la longueur d'onde du rayonnement qu'ils utilisent.

Le microscope électronique à balayage utilise des lentilles électrostatiques et électromagnétiques pour former l'image en contrôlant le faisceau d'électrons et le faire converger sur un plan particulier par rapport à l'échantillon. Ce mode est similaire à la façon dont un microscope optique utilise des lentilles en verre pour faire converger la lumière sur ou au travers de l'échantillon pour former une image.

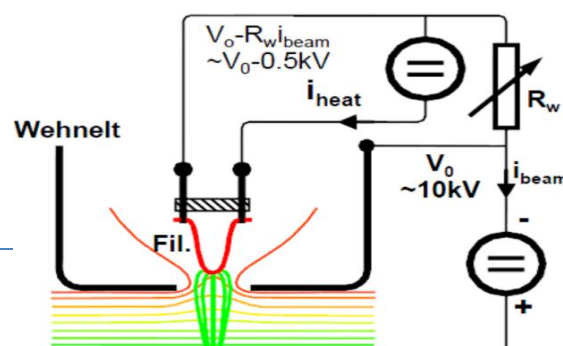
Les microscopes électroniques à balayage sont composés de 3 éléments principaux : canon à électrons, colonne électronique et détecteurs. L'ensemble est maintenu sous vide.

### I.3. Présentation d'un MEB conventionnel :

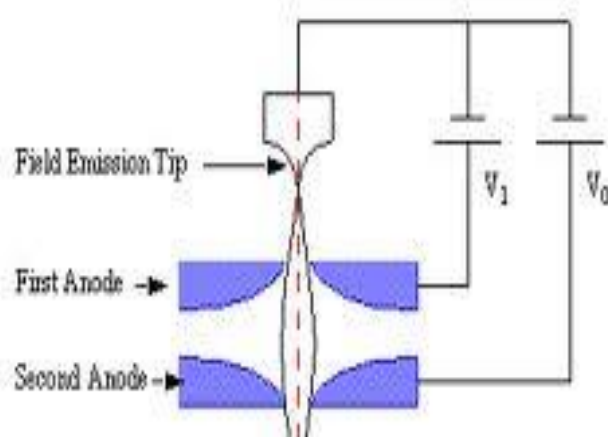
Le MEB est constitué principalement de 3 éléments :

**I.3.1. La colonne :** Elle contient le canon à électrons et le système optique (les lentilles).

**I.3.1. a- Le Canon à électron :** Les performances atteintes concernant la résolution en *SEM* sont principalement le résultat du développement de sources à brillance élevée. Les sources traditionnelles thermoélectroniques (filament de tungstène W, ou de cristal LaB<sub>6</sub> (hexa borure de lanthane) pour leur faible travail de sortie, c'est-à-dire l'énergie nécessaire pour extraire l'électron) sont toujours utilisées dans les instruments à faible coût (Fig. I.3). Elles sont peu à peu remplacées par les canons à émission de champ (FEG field emission gun) (Fig. I.4), ou à effet Schottky, qui présentent une brillance beaucoup plus importante et une dispersion en énergie moindre (elles sont donc davantage monochromatiques), comme l'illustre le tableau I.1. Leur utilisation a conduit à l'apparition des *SEM* dits « haute résolution » dans les années 1980 (Joy, 1991).



**Figure I.3 : Configuration d'un canon à émission thermoïonique :** L'électrode de Wehnelt, polarisée négativement par rapport à la cathode repousse les électrons vers celle-ci, concentre l'émission des électrons sur l'axe et régule le courant émis. A une forte résistance RW correspond une forte polarisation: le courant émis diminue ainsi que la taille de la source (cross-over).



**Figure I.4 : Configuration d'un canon à émission de champ FEG (d'après Goldstien et**  
*Une pointe monocristalline orientée très fine est placée en regard d'une électrode annulaire, et une différence de potentiel est appliquée entre les deux, de manière à créer un champ électrostatique très intense ( $10^9$  V/cm) et extraire les électrons par effet tunnel. Une deuxième électrode les accélère . Selon le cas l'émission se fait à température ambiante (FEG dit cold "froid"), ou avec une assistance thermique (FEG dit "Schottky" –Figure I.5).*

Source	Emission thermoïonique		Emission de champ	
Matériaux	Tungstène	LaB <sub>6</sub>	Schottky-FEG	Cold-FEG
Brillance réduite A/cm <sup>2</sup>	10 <sup>5</sup>	10 <sup>6</sup>	10 <sup>7</sup>	10 <sup>8</sup>
Température C°	1700-2400	1500	1500	ambiante
Taille de la source (nm)	30 000-100 000	5000-50 000	15-30	< 5



Courant d'émission( $\mu$ A)	100-200	50	50	10
Durée de vie (heure)	40-100	200-1000	>1 000	>1 000
Vide minimal (Pa)	$10^{-2}$	$10^{-4}$	$10^{-6}$	$10^{-8}$

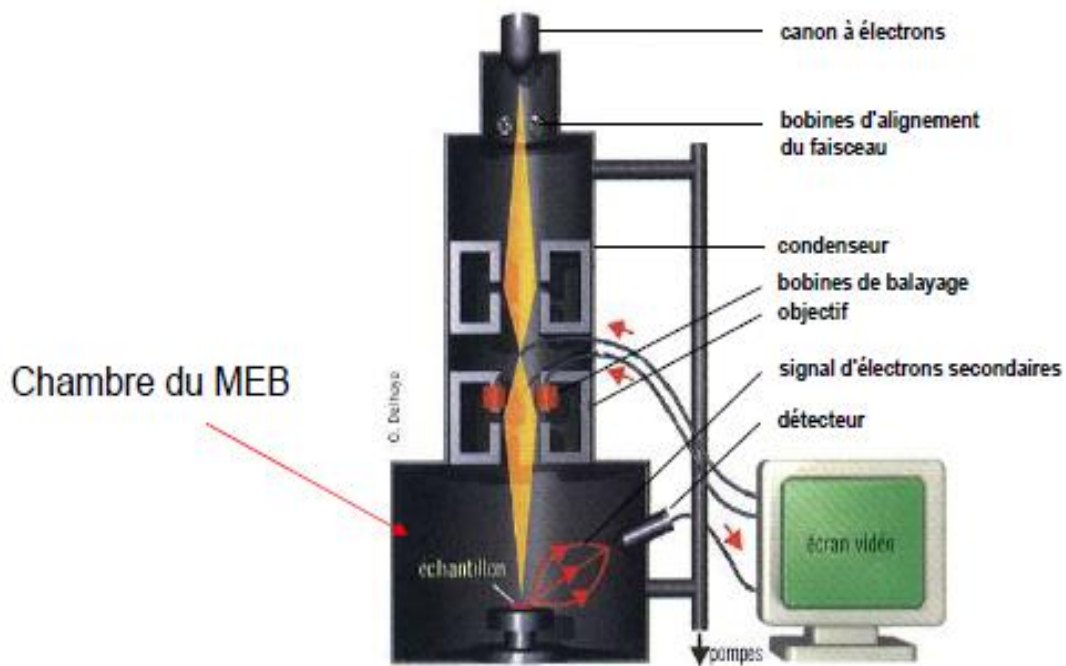
**Tableau I.1 :** Comparaison des performances de différentes sources d'électrons à 20 kV (Goldstein, 2003).

### **I.3.1 b. Le système optique:**

La colonne est composée généralement de deux lentilles dites condenseurs et d'une troisième lentille dite objectif, (figure I.6). Toutes les trois sont électromagnétiques, la fonction de cette colonne est de faire l'image de cross-over (environ  $20\mu\text{m}$ ) en un spot, de quelques nanomètres sur l'échantillon.

**I.3.2. La chambre à échantillon :** La chambre, partie intégrante de la colonne, permet l'introduction d'échantillons, parfois volumineux .Une platine porte objet située à l'intérieur de la chambre permet la fixation de l'échantillon et son déplacement selon trois axes X,Y et Z et de sa rotation et son basculement. En principe le prix du microscope est proportionnel à la taille de la chambre, car plus l'échantillon est grand et plus les amplitudes de mouvements de la platine doivent être importants ce qui conduit à des platines de grande taille plus onéreuses. Avec l'augmentation du volume de la chambre, c'est également l'augmentation des moyens de pompage qui accroissent le prix du microscope:

**I.3.3. Les détecteurs :** Les détecteurs et le dispositif de visualisation, lui-même couplé à la colonne par le système de balayage. La figure I.6 représente un schéma de principe du microscope électronique à balayage.



**Figure I.6** Schéma de principe du microscope électronique à balayage.

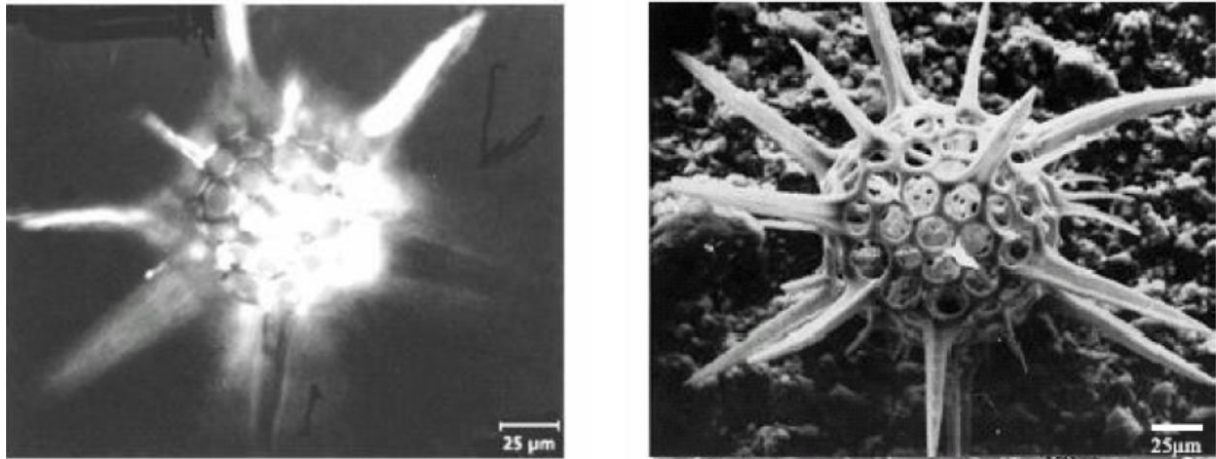
Le MEB est souvent équipé d'un système d'analyse X qui permet une analyse chimique locale. La disponibilité du balayage dans le MEB offre en outre, la possibilité de réaliser des images X traduisant la distribution spatiale des espèces atomiques de l'objet sur la profondeur activée par la sonde. Pour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

#### **I.4. Pourquoi le MEB ?**

Une des caractéristiques principales du MEB est sa haute résolution qui peut être de l'ordre du nm. Une autre caractéristique essentielle de cet appareil est la possibilité de visualisation en 3 dimensions grâce à la grande profondeur de champ et à l'effet de relief procuré par les signaux d'électrons secondaires et rétrodiffusés. Ces deux caractéristiques sont excellemment illustrées par la figure I.7, qui montre deux images comparées d'un même objet, prise en microscopie optique et en MEB.

(a)

(b)



**Figure I.7:** *Micrographies comparées d'un micro-organisme (Stokes, 2008)*  
*(Plancton marin-adiolarian Trochodiscus longispinus).*

*a) Image obtenue au microscope optique*

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

La Microscopie Electronique à balayage est basée sur l'interaction entre les électrons du faisceau incident et l'échantillon. La détection des signaux émis (électrons secondaires, rétrodiffusés et transmis, photons X) permet d'obtenir des informations sur la morphologie, la structure et la composition chimique de l'échantillon. Après interaction du faisceau incident avec la matière de l'échantillon, on obtient différents signaux exploitables pour l'analyse de l'échantillon (électrons secondaires et rétrodiffusés, électrons transmis, électrons Auger, rayons X ...) (Figure I.6). Dans le MEB, le faisceau balaye la surface de l'échantillon et le balayage est synchronisé avec celui du faisceau d'un tube cathodique. Les signaux présentant le plus d'intérêt sont les électrons secondaires et les électrons rétrodiffusés

### **I.5. Limitations du MEB conventionnel :**

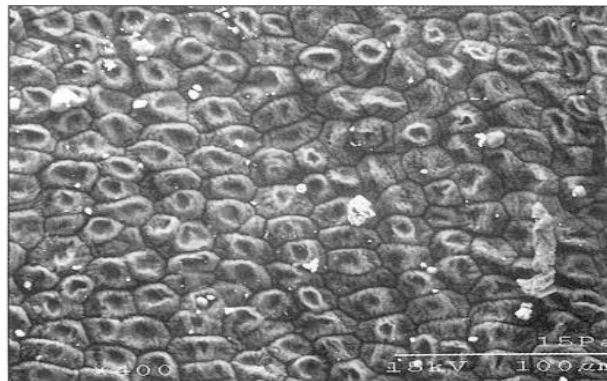
Dans son principe, la microscopie électronique à balayage « conventionnelle », impose deux contraintes majeures à l'échantillon à étudier :

- qu'il soit conducteur électrique.
- qu'il puisse être mis sous vide. Une pression inférieure à (ou de l'ordre de)  $10^{-3}$  Pa est maintenue tout au long du parcours des électrons, depuis le canon jusqu'à l'échantillon.

Cet appareil trouve ses limites lorsque la métallisation de matériaux isolants ou fragiles n'est pas souhaitée. Dans ces conditions de vide, les charges négatives apportées par le faisceau, lorsqu'elles ne sont pas évacuées par conduction électrique, s'accumulent en surface

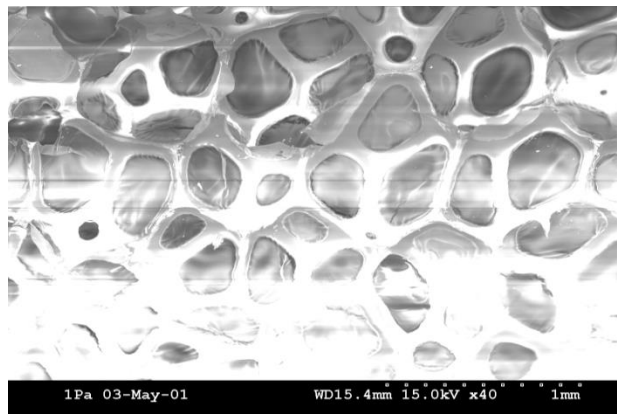
de l'échantillon et perturbent l'émission des électrons secondaires, et part suite, l'image obtenue. Ceci restreint le champ d'applications essentiellement aux échantillons métalliques, ou bien requiert des préparations d'échantillons telles que la métallisation pour les isolants, la fixation, la déshydratation et les techniques de cryogénies pour les échantillons biologiques; etc.

Par exemple, l'observation de cellules vivantes est impossible sans préparation préalable (déshydratation de la cellule sans détérioration des tissus) (figure I.8).



**Figure I.8 :**Dégradation de l'état de l'échantillon , Rétrécissement des cellules (Peau de banane 15 kV) (**Brisset, 2008**)

Les échantillons isolants sont donc préalablement rendus conducteurs par dépôt d'une fine couche métallique, qui permet l'évacuation de la charge statique accumulée en surface, montrée sur la figure I.9.



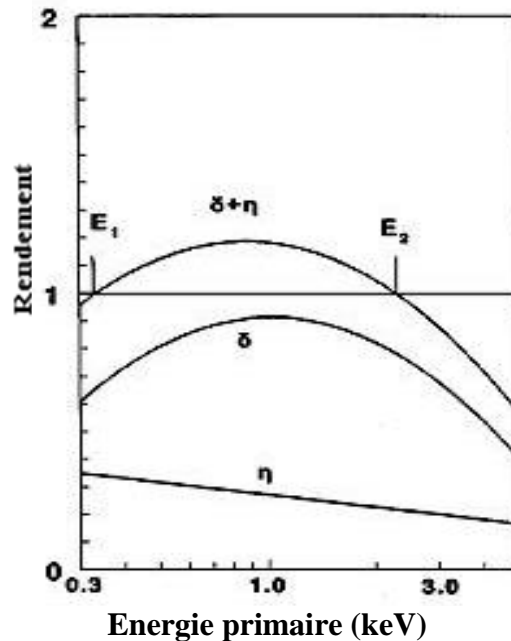
**Figure I.9.** Effet de charge (mousse de polymère)

## **I.6. Surmonter les limites du MEB conventionnel :**

Deux solutions permettent de surmonter les limitations du MEB :

### I.6. 1. Travailler à basse tension « utilisation du FEG » :

L'image de base du MEB est formée à partir d'un mélange en proportions variables des signaux d'électrons secondaires et rétrodiffusés. Le Rendement total, et le rendement d'émission en électrons secondaires ( $\delta$ ), et en électrons rétrodiffusés ( $\eta$ ) en fonction de l'énergie primaire sont présentés dans la figure I.10



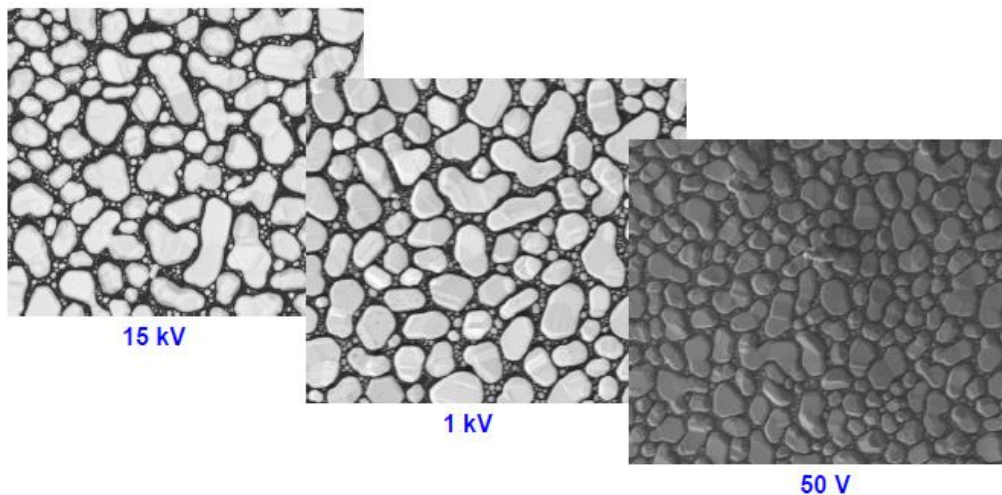
**Figure I. 10 :** Rendement d'émission total, en électrons secondaires ( $\delta$ ), et en électrons rétrodiffusés ( $\eta$ ) en fonction de l'énergie primaire (Xiaohu Tang, 2004)

On observe un maximum de l'intensité émise aux énergies primaires faibles, avec des valeurs de  $E_1$  et  $E_2$  comprises entre 300 eV et quelques keV (1 à 3 keV, valeur qui est en fonction de la nature de l'échantillon, et de la brillance du faisceau), suivi d'une décroissance régulière aux énergies primaires supérieures. La valeur  $\delta + \eta$  est le rendement total d'émission (secondaires + rétrodiffusés), la valeur  $\delta + \eta = 1$  correspondant à l'équilibre entre charges apportées par le faisceau et charges émises, le courant échantillon étant alors nul. Donc en abaissant l'énergie du faisceau d'électrons de quelque keV, l'image obtenue n'est plus affectée par les effets de charge.

Le développement des canons à effet de champ avec leur forte brillance aux faibles tensions d'accélération a rendu possible, dans de bonnes conditions, l'observation des échantillons isolants sans métallisation préalable. Par contre, les rayons X habituellement

utilisés pour la microanalyse ne sont pas excités (**M.Répoux,C. Mathieu**) dans [François Brisset 2008].

Cependant, cette technique ne permet toujours pas de visualiser des surfaces contenant des éléments volatiles telles que des surfaces biologiques. En outre, si l'échantillon n'est pas homogène, les valeurs de E1 et E2 ne seront pas bien définies, ce qui rend cette méthode inopérante dans ce cas. Figure I.11 montre les problèmes de travailler à basse tension : la perte de résolution , et de la difficulté d'interpréter les informations des images (**Cazaux , 1999**).



**Figure I.12** : Image de grain d'or sur carbone.

Afin de remédier à ce problème, une solution a été développée et exposée dans le paragraphe qui suit.

## **I.6. 2. Utiliser le microscope électronique à balayage environnemental :**

L'introduction d'un gaz au voisinage de l'échantillon est une autre manière de réduire les effets de charges : des ions positifs vont être créés lors des collisions inélastiques entre les électrons et les molécules de 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 optique du microscope sous vide secondaire.

Augmenter la pression résiduelle élargit fortement le domaine d'applications du MEB puisqu'en plus les échantillons isolants, il devient possible d'observer sans préparations des



échantillons à fort taux de dégazage, des échantillons biologiques dans leur état naturel, et des échantillons humides.

Les microscopes électroniques à balayage sous pression contrôlée permettent de maintenir l'échantillon sous une pression pouvant atteindre quelques milliers de Pa tout en conservant une pression de l'ordre  $10^{-3}$  Pa dans la colonne. [M. Répoux, C. Mathieu 2008]

Dans ce qui suit, nous allons nous intéresser plus en détail à ce type de microscope puisque le système de détection, objet des travaux de cette thèse, concerne ce microscope.

## **I.7. MICROSCOPIE ELECTRONIQUE À BALAYAGE ENVIRONNEMENTAL :**

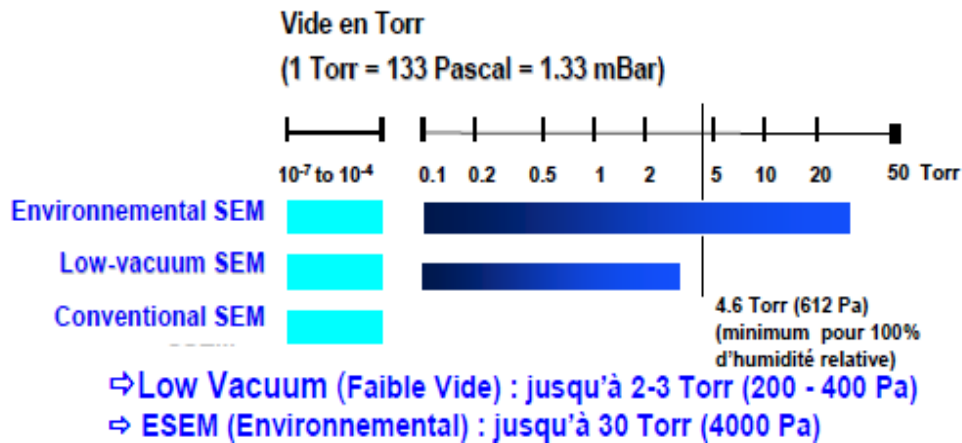
### **I.7.1.Terminologie**

Le Microscope Electronique à Balayage à haute pression (HPSEM), ou Environnemental (MEBE ou ESEM en anglais) à la différence des microscopes électroniques conventionnels possède une chambre d'analyse, à température et à pression variables, qui lui permet d'opérer pour toutes les applications qui nécessitent l'observation de la topographie d'un échantillon dans son état naturel. En effet, les échantillons pourront être hydratés, huileux ou isolants et l'observation ne nécessitera aucune préparation et donc aucune dégradation de leurs surfaces. Toutefois, l'application du MEBE ne s'arrête pas là, car un domaine qui lui est propre est l'observation in situ d'organismes vivants ou de phénomènes physico-chimiques avec la possibilité de faire varier la pression, le type de gaz et la température.

Nous utiliserons volontairement la terminologie de microscopie électronique à balayage environnementale qui regroupe les différents acronymes couramment utilisés qui sont :

- Microscopie électronique à balayage environnementale (ESEM) MEBE.
- Microscopie électronique à balayage à pression contrôlée (CPSEM).
- Microscopie électronique à balayage à haute pression à bas vide (low vacuum SEM).
- Microscopie électronique à balayage à pression variable (VPSEM) dans (Répoux et al., 2008)

Le point commun entre toutes ces microscopies est d'avoir une pression importante dans la chambre d'analyse et des procédés de détection des électrons spécifiques dans ces conditions particulières. La figure I.12 présente les gammes d'utilisation en pression de ces microscopes.



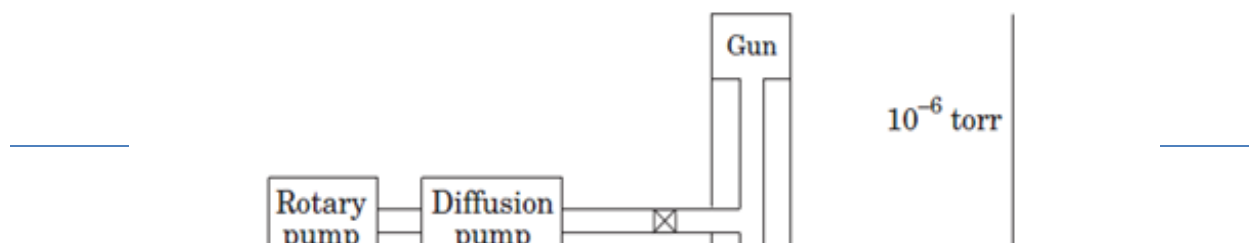
**Figure I.12 :** Gamme d'utilisation des MEB à haute pression.

## I.7.2. Généralités sur la MEBE :

### I.7.2.1. Pompage différentiel :

Le développement Microscopie électronique à balayage environnementale est liée à la volonté d'éliminer la nécessité de maintenir un haut vide dans les microscopes électroniques. En effet, pour certains échantillons délicats, ce haut vide engendre des restrictions concernant les méthodes de préparation et les conditions d'imagerie. Très tôt dans l'histoire de la microscopie électronique, des études sont menées en vue de permettre l'observation d'échantillons dans un état plus proche de leur état naturel. Dans les années 1950, des expériences s'intéressent aux systèmes de pompage différentiel, à la création de chambres environnementales, et au développement de microscopes équipés de diaphragmes limitant les remontées de pression (Danilatos, 1994).

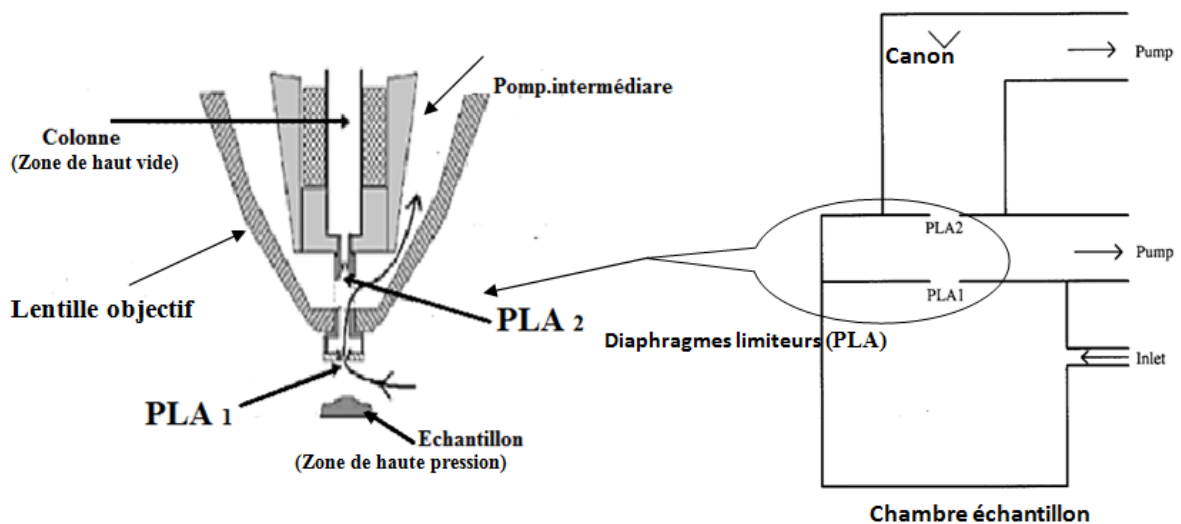
Comme dans les MEB conventionnels, le HPSEM comprend une région qui doit être maintenue sous un vide de  $10^{-6}$  Torr, au niveau du canon à électrons selon que celui-ci est un canon à effet de champ ou à filament de tungstène, et de l'ordre de  $10^{-5}$  Torr dans la colonne, elle peut atteindre suivant les modèles du microscopes des valeurs allant de  $10^{-2}$  à 30 Torr dans la chambre échantillon. Ceci est rendu possible grâce à un ou plusieurs diaphragmes limiteurs de pression et à un pompage assuré au-dessus et au-dessous de chaque diaphragme. C'est le principe de pompage différentiel, figure (I.13).





**Figure I.13** : Schéma d'un exemple de pompage différentiel dans un MEBE.  
(Thiel, 1998).

Un diaphragme limiteur de pression est en général situé à l'extrémité de la lentille finale, le plus près possible de l'échantillon (environ 2mm) figure( I.14).



**Figure I.14** : Schéma des 2 diaphragmes limiteurs de pression au bas de la lentille objectif (Danilatos, 1994).

Depuis environ les années 50, les chercheurs ont conduit des expériences avec un pompage différentiel, ouverture limitée "chambres environnementales" pour le TEM, tandis

que d'autres ont travaillé avec des réservoirs scellés par un film mince, avec une fenêtre transparente aux électrons (voir, par exemple, Swift et Brown, 1970; Parsons, 1975 dans [\(Stokes, 2008\)](#)). Puis, en 1970, Lane a démontré l'utilisation d'une ouverture limitée dans la chambre d'un MEB, et aborda la conception d'un "environmental control stage", ainsi que la notion de section efficace de diffusion et de libre parcours moyen des électrons dans différents gaz, y compris l'hydrogène, l'oxygène, l'azote et les gaz nobles, et a démontré aussi la stabilité de l'imagerie de l'eau liquide.

Pendant ce temps, Robinson, Moncrieff et d'autres dans les années 70 ont travaillé sur le développement d'un MEB capable de maintenir une forte pression tout en assurant le contrôle de l'image, par l'adaptation de la chambre d'analyse elle-même du MEB ([Robinson, 1975](#)). Une image stable d'eau liquide a également été montrée par Robinson lors du Congrès international sur la Microscopie Electronique (ICEM 8) à Canberra, en Australie (Robinson, 1974). Il travaillait sur une modification du JEOL JSM 2 SEM, ayant un système d'ouverture (PLA) de 100 µm pour séparer la région du haut vide contenant la source d'électrons de celle de la chambre d'échantillon, à une pression plus élevée. La pression maximale de vapeur d'eau était 665 Pa (5 torr), et l'eau liquide a été maintenue par un refroidissement de la chambre et un réservoir d'eau glacé autour de l'échantillon. Un détecteur à l'état solide, d'électrons rétrodiffusés (ESB) a été utilisé, avec une résolution raisonnable allant jusqu'à un grossissement de 2000x. La présence du système d'ouverture avait réduit le taux de balayage du faisceau d'électrons ainsi que le champ de vision était limité, et le minimum était un grossissement de 100x ([Robinson, 1996](#)). À cette époque, l'objectif était l'observation des spécimens biologiques, sans recours à la préparation. Il avait d'ailleurs observé que l'imagerie d'objets non isolants à des pressions au-dessus de ~ 10 Pa, semble réduire les effets de charges. L'explication se concentre sur l'idée que le film d'eau liquide a été responsable de l'octroi de cette conductivité. Bien sûr, cela ne pouvait pas expliquer pourquoi l'imagerie avec des gaz autres que l'eau a un effet similaire.

Moncrieff et al. (1978) avaient proposé que les collisions entre les électrons et les molécules de gaz, entraînent la production d'ions positifs (voir Von Engel, 1965), et leurs attractions vers la charge négative de l'échantillon, qui était le mécanisme observé de la neutralisation de la charge excédentaire, (références citées dans [\(Stokes, 2008\)](#)).

Moncrieff et ses collègues de travail ont calculé la valeur et les effets de la diffusion des électrons primaires par l'azote (Moncrieff et al., 1979) dans [\(Stokes, 2008\)](#). Une conclusion

importante de ce travail est que, bien que certains électrons primaires étaient diffusés quelque dizaines de milliers de microns loin de leur trajectoire initiale, les électrons formant la sonde du faisceau ont maintenu le même diamètre dans la zone d'impact que celui constitué en vide poussé. Cependant, la diffusion des électrons réduit le courant total de la sonde, tout en ajoutant une composante uniforme au bruit de fond.

En 1978, Robinson a commencé à commercialiser cette nouvelle technologie avec son entreprise ETP 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 lancé WET SEM.

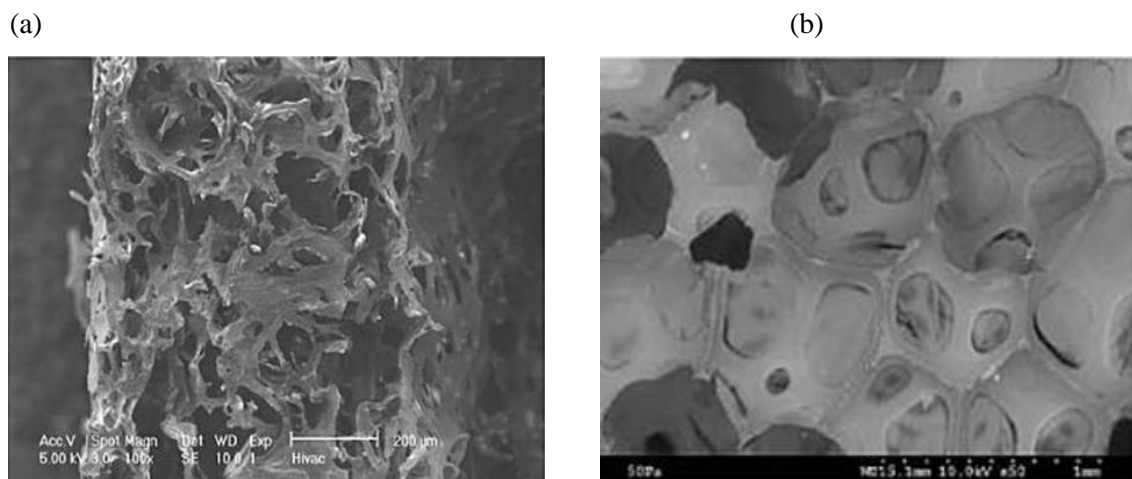
En fin de compte, Robinson et ses collaborateurs ont travaillé à des températures et des pressions physiologiques. L'observation de l'eau liquide à la température du corps (~ 37°C) nécessite une pression de vapeur d'eau au-dessus de 6,65 kPa (50 torr) et d'une distance de travail ne dépassant pas 0,5 mm. Comme il devient physiquement difficile ou impossible de travailler avec un spécimen hydraté, aussi proche du système d'ouverture (PLA), ces critères définissent la limite supérieure de la pression. Maintenant, afin de maintenir la différence de pression entre deux zones séparées par une seule PLA, pour une chambre à une pression de 6,65 kPa, la taille d'ouverture devrait être ramenée à ~ 13 µm (Robinson, 1996 dans [Debbie J Stokes ,2008]). Il en résulte une très grande restriction du champ de vision. Par conséquent, pour améliorer la situation, Danilatos et Robinson (1979) ont introduit deux systèmes d'ouvertures (2 PLA) avec trois zones de pompage différentiels. Au même temps, Shah et de Beckett (1979) (dans [Debbie J Stokes ,2008]) 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 (1980) (Stokes, 2008) ont construit le même prototype en utilisant un système Stereoscan Mk II de Cambridge.

Les étapes importantes qui ont suivi, ont eu lieu dans les années 1980, lorsque Danilatos, travaillait avec Electroscan (microscope électronique à balayage environnementale). L'ESEM avait une limite de pression de 2,66 kPa (20 torr) avec un détecteur d'électrons secondaires (SE) intégré qui pourrait être utilisé dans un milieu gazeux , en utilisant l'ionisation par cascade d'électrons secondaires (Danilatos 1990b dans [Debbie J Stokes ,2008]).

Dans les années 1990, d'autres instruments commençaient à être disponibles. Il s'agit du faible vide, (LVSEM, JEOL); naturel SEM (NSEM, Hitachi); SEM à environnement contrôlé (ECO SEM, 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 contrôlée, CPSEM, a été présenté par Philips Electron Optics. Au cours de cette même année, Philips a acquis Electroscan et son groupe ESEM technology, et par la suite fusionné avec le FEI, qui est connue sous le nom de FEI Company en 2002 (Stokes, 2008) .

L'amélioration de la qualité de l'image est bien illustrée par la figure I.15, sous vide et sous pression de vapeur d'eau.(A.Jadin ) dans (Danilatos, 1990).



**Figure I.15** : Observation d'une éponge (Danilatos, 1990).

- a) en haut vide, contraste acceptable, mais la structure de l'échantillon est complètement détruite.
- b) sous vapeur d'eau et pression plus élevée ,afin de réduire le séchage de l'échantillon.

### I.7.2.2. La détection :

Dans le mode vide poussé, les détecteurs d'électrons standards sont : détecteurs d'électrons secondaires de type Everhart thornley; et d'électrons rétrodiffusés (détecteur à semi conducteurs (diode) ; (détecteurs à scintillateurs)

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

Il convient de noter qu'il existe plusieurs approches différentes pour la détection du signal dans le HPSEM, 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 (Danilatos 1989a ; Farley et Shah, 1991 ; Mohan et al. 1998 )
- Collecte du signal d'électrons secondaires amplifié par le gaz (Danilatos, 1990a ; Thiel et al.1997 ; Toth et al.2006 )
- Luminescence du gaz le signal photonique obtenu est amplifié par un photomultiplicateur (Danilatos, 1989b ; Morgan et al, 2000).
- Utilisation d'un détecteur d'électrons secondaires conventionnel de type Everhart-Thornley modifié séparé physiquement de la haute pression régnant dans la chambre d'échantillon (Jacka et al 2003; Slowko 2006 ).

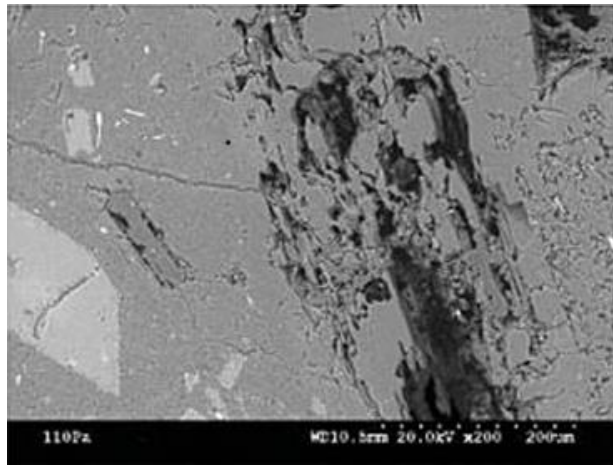
Parmi ces méthodes nous séparons ci-dessous les détecteurs à électrons rétrodiffusés et ceux à électrons secondaires:

#### **a- Le détecteur à électron rétrodiffusés (détecteur BSE)**

Robinson (**Danilatos et al., 1979**) a montré qu'il était possible d'éliminer les phénomènes de charges en introduisant une petite quantité de vapeur dans la chambre d'analyse et qu'il était possible d'obtenir une image d'échantillon isolant en utilisant les électrons rétrodiffusés. Pour cela, il a mis au point un détecteur d'électrons rétrodiffusés avec un grand angle de collection.

Le choix des électrons rétrodiffusés se justifie par leur grande énergie leur permettant de passer à travers le gaz. On ne tient pas compte de l'interaction gaz – électrons. Dans les

conditions de haute pression, l'image obtenue avec l'emploi de détecteur d'électrons rétrodiffusés s'interprète comme en mode conventionnel. (Figure I.16) :



**Figure I.16** : Image d'une pierre polie isolante obtenue à partir des électrons rétrodiffusés avec le détecteur Robinson 110Pa 20kv

#### **b- Le détecteur à amplification gazeuse (détecteur GSED):**

Ce détecteur a été développé par Danilatos (**Danilatos, 1990**). Le principe de ce détecteur est basé sur le phénomène d'avalanche créé par l'ionisation du gaz en présence d'un champ électrique. Des électrons secondaires et rétrodiffusés sont générés et sous l'action du champ électrique, ils sont attirés par l'électrode positive. S'ils sont suffisamment énergétiques, et comme le libre parcours moyen est très faible devant la distance entre les deux plaques, ils vont se multiplier en ionisant le gaz entraînant une amplification en cascade.

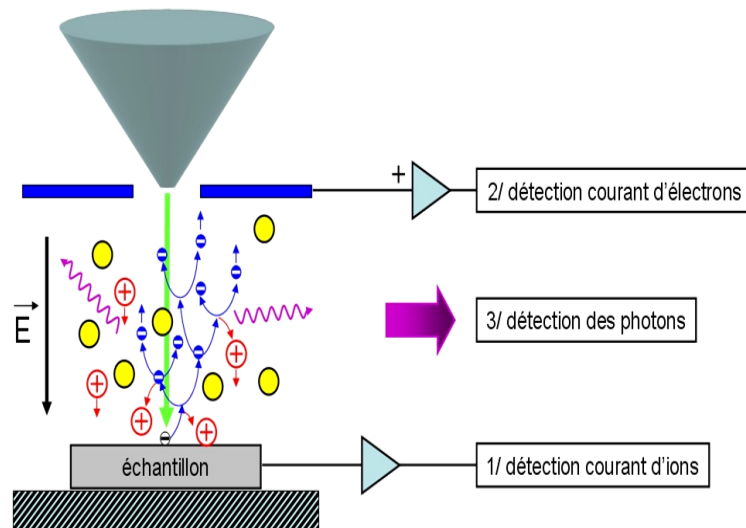
Les électrons produits dans le gaz sont appelés des électrons secondaires environnementaux et ils sont collectés par l'électrode positive. Les ions positifs générés durant le processus de collision sont attirés à la surface de l'échantillon et servent à éliminer l'excès de charge.

On distinguera plusieurs types de détecteurs correspondants aux différents mesures qui peuvent être effectuées lorsqu'une électrode est polarisée positivement est placée à proximité de l'échantillon (figure I.17) :

1-mesure du courant échantillon, dont la valeur dépend fortement du courant d'ions créés dans le processus d'avalanche.

2-mesure des électrons arrivant sur l'anode, fonction du courant créé dans le processus d'avalanche.

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



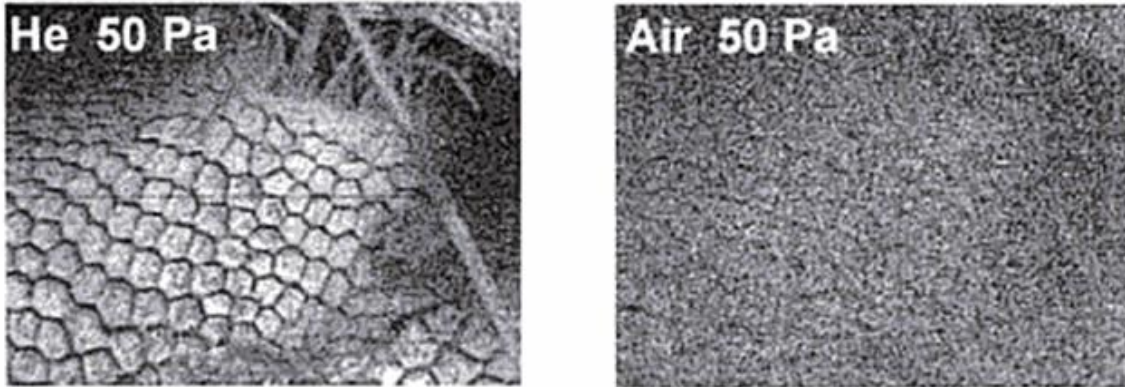
**Figure I.17** : (a) Les différents signaux détectés résultants de l'amplification par avalanche dans le gaz résiduel ( **Brisset, 2008**).

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

### **I.7.3. Amplification par le gaz et signaux spécifiques:**

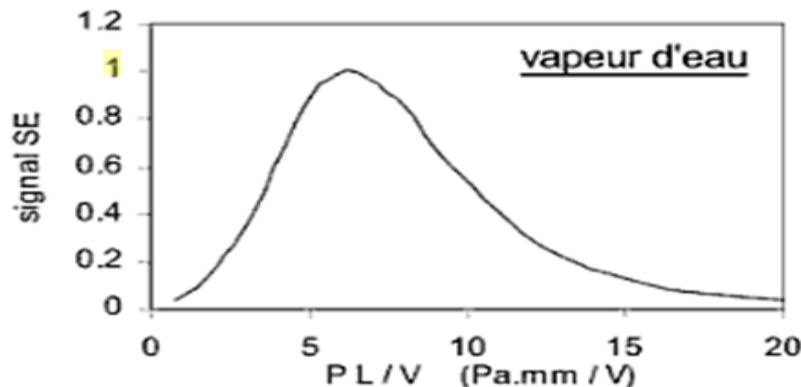
L'ionisation du gaz est très importante dans le MEBE car les particules de gaz ionisées sont utilisées pour neutraliser la surface de l'échantillon pendant l'observation. Toutefois, comme le montre Danilatos (**Danilatos et al., 1979**), l'efficacité de l'ionisation du gaz dépendra beaucoup de la nature du gaz utilisé, comme on peut le voir sur la figure I.18.





**Figure I.18:** Influence de la nature du gaz, hélium et de l'aire –images obtenues avec le détecteur d'électrons rétrodiffusées BSE, à 1.5 kV et une distance de travail de 10mm  
(Danilatos et al, 1979)

Thiel (Thiel, 1997) donne une courbe universelle du signal électronique établie avec différentes valeurs de distances de travail, de tensions appliquées et de pressions qui montre que l'amplification passe par un maximum pour une valeur de  $PL/V$  égale à 6.5 Pa.mm/V (figure I.19).

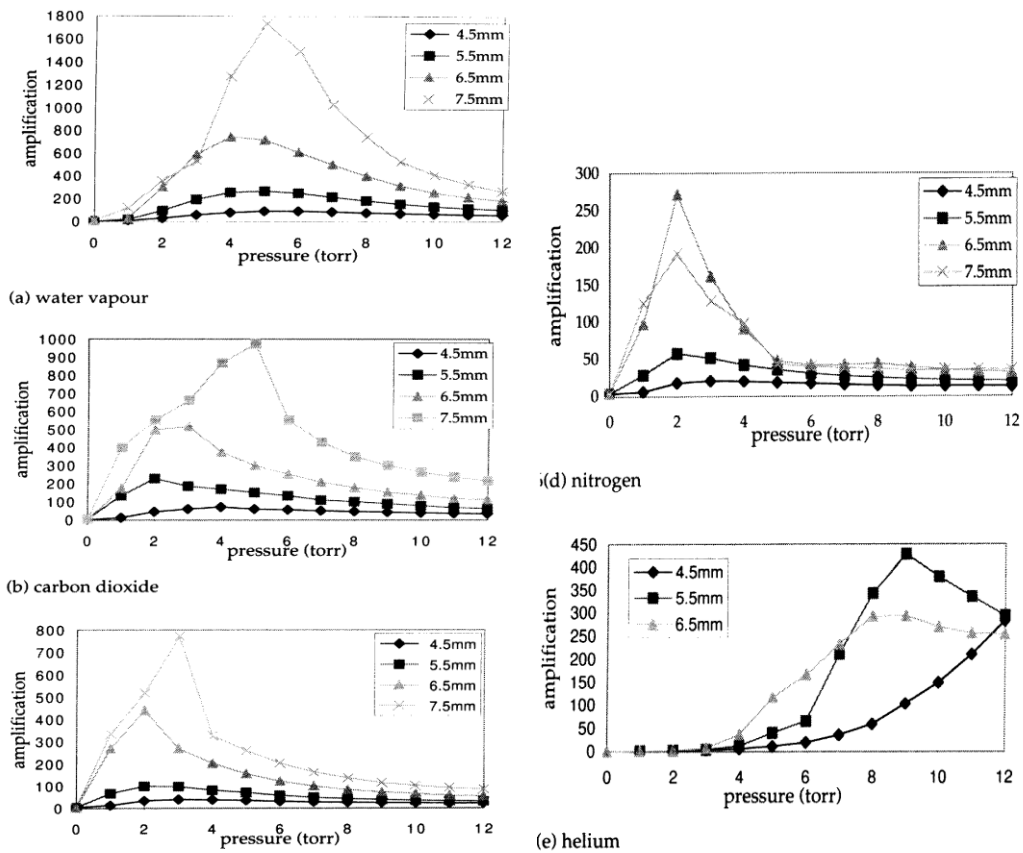


**figure I.19 :** Courbe universelle du signal électronique en fonction de  $PL/V$   
pour la vapeur d'eau

La plupart des gaz présentent un pic d'amplification qui dépend de la nature du gaz, de la pression de gaz, de la tension de polarisation du détecteur et de la distance détecteur-échantillon. Il faut noter que la vapeur d'eau présente le meilleur pic d'amplification justifiant ainsi le choix de son utilisation dans la microscopie environnementale, ensuite c'est le dioxyde de carbone, et l'hélium en dernier, la figure I.20 (Fletcher ,1997) montre la



dépendance de l'amplification sur la pression pour cinq gaz (a) vapeur d'eau, (b) CO<sub>2</sub>, (c) NO<sub>2</sub>, (d) N<sub>2</sub>, (e) hélium, pour différentes distances, (énergie 20keV, et champ de 66.7 V/ mm)



**Figure I.20.** Evolution de l'amplification avec la pression à différentes tensions d'accélération pour cinq gaz (énergie 20keV, distance échantillon-détecteur 6.5 mm, et polarisation du détecteur 350 V): a) vapeur d'eau, b) dioxyde de carbone, c) oxyde d'azote, d) azote, e) hélium ( **Fletcher,1997**).

Les auteurs concluent que la vapeur d'eau permet d'obtenir le maximum d'amplification quelles que soient la tension d'accélération et la pression partielle utilisées. Il est intéressant de remarquer que le maximum de ces courbes d'amplification pour la vapeur d'eau est situé à une pression généralement comprise entre 4 et 5 Torr. La vapeur d'eau est le gaz le plus utilisé en *MEBE*, en raison de son efficacité pour l'amplification du signal par le gaz, ainsi que de ses propriétés thermodynamiques, ce qui conduit à des images

de bonne qualité et une stabilité pour de nombreux objets hydratés.

Cependant, comme le montre la figure I.21, selon le modèle de calcul utilisé, il existe des divergences dans les travaux sur le gain d'amplification pour la vapeur d'eau.

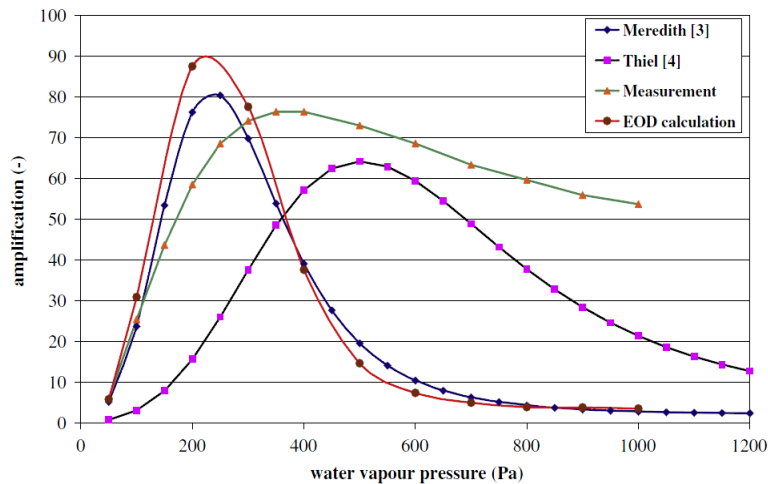
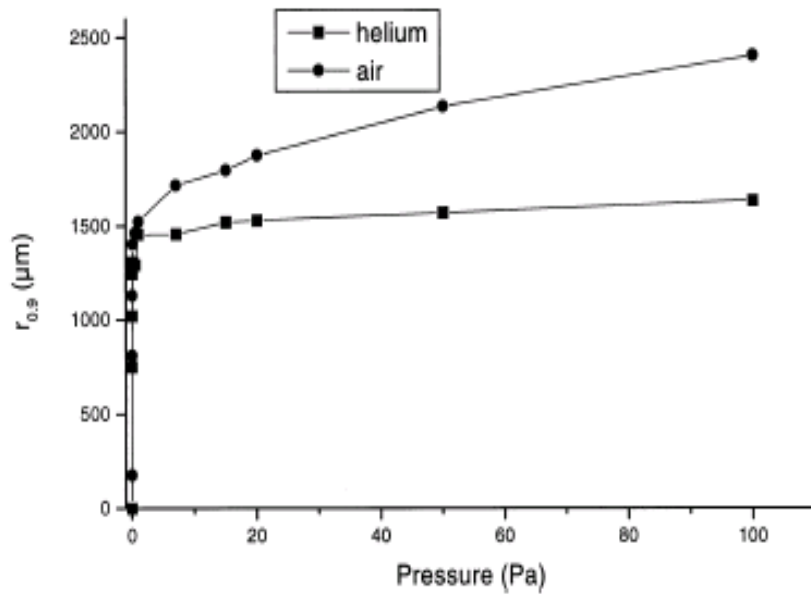


Fig. 5. Dependence of signal amplification obtained from the numerical models published by Meredith et al. [6] and Thiel et al. [8], calculated by the program EOD and measurement on the water vapor pressure (accelerating voltage 20 kV, probe current 25 pA, gas path length 6 mm, ionization detector 300 V, water vapor environment).

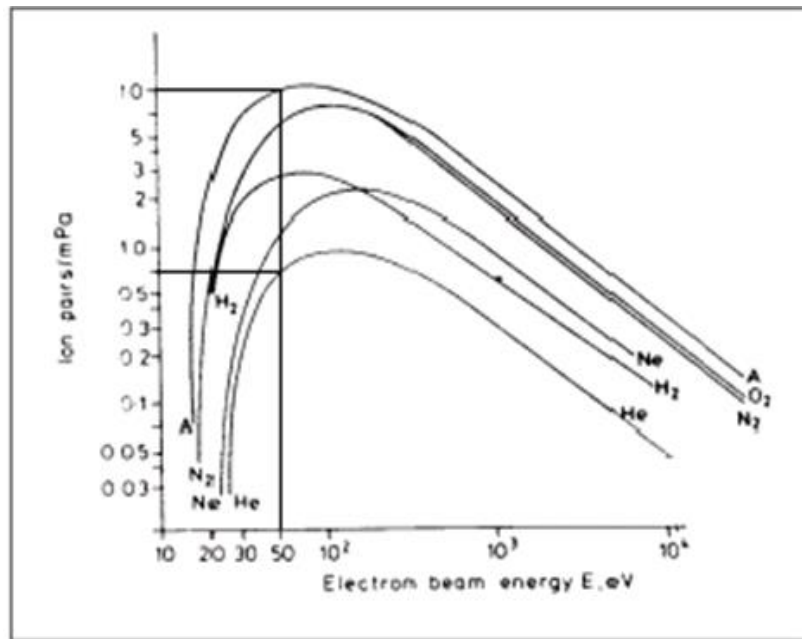
Figure I. 21. Gain calculé pour la vapeur d'eau, comparé au gain expérimental (Nedela, 2011)

Notons que la gamme d'énergie nécessaire pour ioniser la plupart des gaz est inférieure à 100 eV. Or les tensions d'accélération utilisées dans le MEBE sont souvent de l'ordre de quelques dizaines de kilos électron volt. Ce n'est donc pas uniquement le faisceau d'électrons primaires qui va ioniser le gaz mais ce sont, aussi et surtout, les électrons secondaires (~50eV) issus de l'échantillon qui vont ioniser les entités de gaz qui à leur tour vont neutraliser la charge à la surface de l'échantillon. Ceci contribue également à l'amplification du signal d'électrons secondaires.

Ainsi, l'utilisation d'un gaz tel que l'hélium, (figure I.22), qui diffuse peu les électrons ; et qui est peu ionisé (figure I.23), rendra difficile la neutralisation de la surface de l'échantillon aux basses pressions. Ce type de gaz nécessitera de monter en pression pour augmenter la concentration des atomes dans la chambre d'analyse afin de produire suffisamment d'atomes ionisés.



**Figure I.22** : Rayon de diffusion (Skirt) en fonction de la pression ,pour l'He ,et l'aire .  
(Kadoun et al., 2003)



**Figure I.23** : Evolution de l'ionisation de gaz en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons, en ordonnée est reporté le nombre de paires d'ions par mètre et par Pa (Danilatos, 1988).

En effet, on observe que l'hélium est un gaz très difficile à ioniser et que pour des électrons secondaires possédant une énergie de 50 eV, on aura formation que de 0,75 paires d'ions par mètre et par pascal. C'est à dire que dans le MEBE à 2Torr et avec une distance de travail de 19 mm, on ne formera qu'environ 4 paires d'ions. Alors qu'avec l'argon dans les mêmes conditions on formera 50,5 paires d'ions. Il faudra augmenter la pression d'hélium jusqu'à environ 27 Torr afin d'obtenir 50,5 paires d'ions formés dans les mêmes conditions. Et on observe le même comportement pour les ionisations réalisées par le faisceau d'électrons primaires. Enfin, on soulignera que plus l'énergie des électrons augmente, moins ils ioniseront le gaz de façon satisfaisante.

#### **I.7.4. Composition du gaz et quencheurs :**

L'utilisation de gaz rares (He, Ne, Ar, Kr, Xe) comme un environnement gazeux et pour la détection de particules est appropriée pour plusieurs raisons. D'une part, un gaz noble possède peu d'états excités, l'ionisation est donc favorisée devant l'excitation. D'autre part, la probabilité de recombinaison entre un électron et un ion est faible. L'Hélium est très souvent employé en microanalyse . L'utilisation de gaz rares présente toutefois certains inconvénients. Les gaz nobles ne permettent pas d'atteindre des gains élevés pour deux raisons :

- Les photons UV émis peuvent, par effet photoélectrique avec le métal constituant les électrodes, provoquer l'émission d'électrons qui génèrent une nouvelle avalanche.

- Les ions de gaz rares qui migrent vers la cathode sont neutralisés par extraction d'un électron. Le bilan énergétique est équilibré par l'émission d'un photon ou d'un électron secondaire qui peuvent également induire de nouvelles avalanches. Le détecteur atteint alors un régime de claquage qui peut s'avérer destructif. Pour empêcher la multiplication gazeuse de diverger à haut gain, on ajoute au gaz noble une certaine quantité de molécules gazeuses polyatomiques. Ces gaz, dits *quencher*, possèdent de nombreux états excités non radiatifs (vibration, rotation, excitation) à des niveaux d'énergie plus bas que le gaz noble. Ces gaz polyatomiques permettent donc d'absorber les photons ultraviolets indésirables, dont l'énergie est dissipée dans des états non radiatifs. Les quencher jouent donc un rôle primordial dans le bon fonctionnement du détecteur et permettent d'obtenir de longs plateaux d'efficacité en fonction de la tension des pistes d'anode.

Cependant, la procédure ultime pour neutraliser la charge électrique est de former le nombre exact d'ions positifs dans le gaz. En fait, éliminer la charge négative ne dépend pas forcément de la pression du gaz, car il y a plusieurs façons de faire pour équilibrer l'excès des charges négatives avec les ions positifs sans augmenter la pression:

- La tension du détecteur GSED (Gaseous secondary electron device) peut être ajustée pour équilibrer la quantité d'ions positifs contre la charge négative (**Carlton et al., 2004**).

- Cela dépend également du produit (pression) x (distance) ou Pxd, où, lorsque la pression diminue (moins d'un 1 torr), nous pouvons augmenter la distance échantillon /électrode en proportion inverse et de maintenir une quantité équivalente entre la charge négative et les ions positifs (**Danilatos, 1993a**)

- La présence d'un gaz qui possède une électronégativité élevée peut favoriser le processus d'ionisation et augmenter la quantité d'ions positifs (**Mansour et al., 2009**).

Pour cette raison, le but de notre travail est de comparer l'amplification et le taux d'ionisation, de quelques gaz et leurs mélanges, on a utilisé le modèle d'amplification de B.Thiel, ce modèle décrit les processus de formation des signaux dans un environnement de gaz à haute pression et démontre l'influence des paramètres tels que l'énergie primaire du faisceau, la distance de travail, la pression, la nature de gaz utilisé

## **DETECTION DES ELECTRONS SECONDAIRES DANS UN MEBE**

---

Ce chapitre est consacré à la description de la détection des électrons secondaires et l'amplification gazeuse en cascade dans un MEBE, basée sur la théorie de Townsend, puis une courte description est fournie pour simuler le comportement des électrons dans la chambre d'analyse d'un MEBE par la méthode de Monte Carlo.

### **III.1 Introduction :**

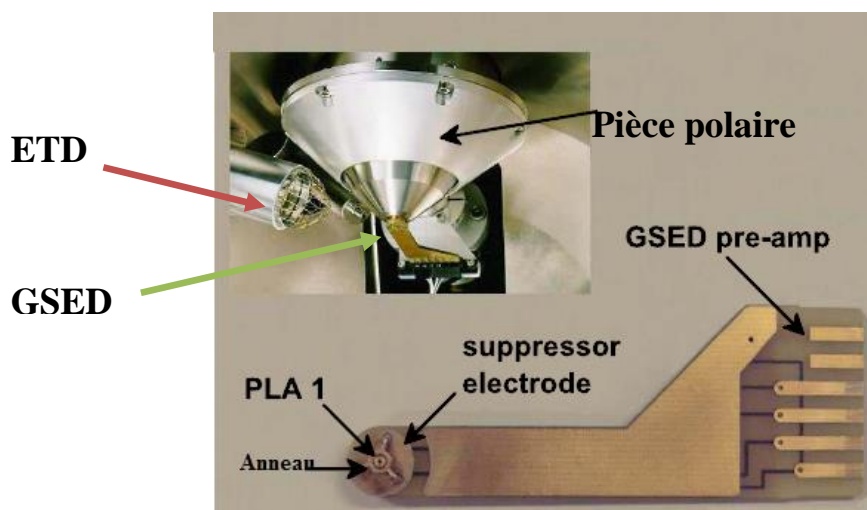
Danilatos (**Danilatos, 1983**) a inventé un nouveau détecteur à amplification gazeuse en vue de surmonter la perte du signal électronique due à la présence d'un milieu gazeux partiellement ionisé qui diffuse le faisceau d'électrons primaires (Skirt), et supprime une fraction significative du signal, par la recombinaison des électrons secondaires émis par la surface de l'échantillon et les ions du gaz. Ce dispositif de détection appelé détecteur d'électrons secondaires en atmosphère gazeuse ou «Gaseous Secondary Electron Detector » (GSED) est devenu le moyen standard pour la détection et l'imagerie en électrons secondaires utilisé en MEBE. La théorie et la pratique de ce dispositif ont été largement rapportés par Danilatos (1983; 1988; 1989a; 1989b; 1990a; 1990b; 1990c; 1992c). Ce détecteur est basé sur

l'utilisation du gaz de la chambre d'analyse pour détecter et amplifier les différents signaux ionisants via une avalanche contrôlée d'électrons, d'une manière similaire à celle utilisée par les détecteurs proportionnels de la physique nucléaire. Ces différents signaux ont été soigneusement étudiés par Danilatos (**Danilatos, 1990a**). Historiquement, il a fallu beaucoup de travaux théoriques et expérimentaux (**Danilatos, 1990b**), et aussi de temps, pour assoir cette technique de détection. Une étude complète intitulée « Theory of the gaseous detector device in the ESEM » portant sur la théorie et le fonctionnement du GSED a été publiée par Danilatos (**Danilatos, 1990c**).

## III.2 PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DU GSED :

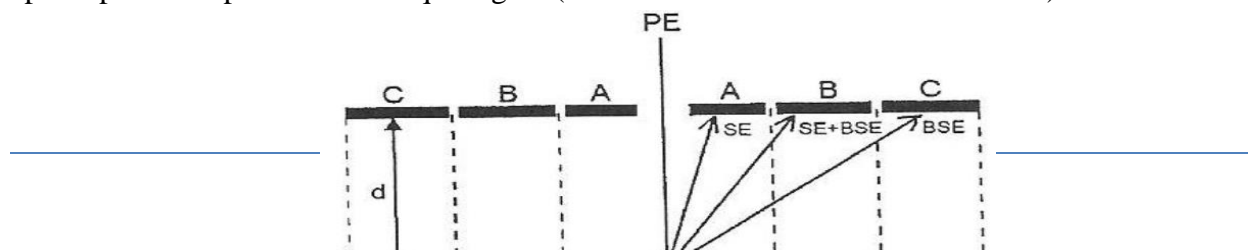
### III.2.1. Présentation :

Le GSED est un détecteur gazeux qui a remplacé le détecteur Everhart-Thornely (ETD) qui nécessite une polarisation de plus de 10kV (**Toth et al, 2000**). Le collecteur du détecteur se compose d'un anneau métallique de 3 mm de diamètre sur un circuit imprimé, sous la dernière ouverture. Il se trouve à une distance  $d$  (quelques millimètres) au-dessus de l'échantillon (**Danilatos, 1990c ; Thiel et al., 1997**). Ce détecteur est sensible aux faibles signaux émis et insensible à la lumière et à la chaleur (Figure .III. 1).



**Figure (III.1) :** Configuration du détecteur GSED dans la chambre d'analyse.

Il est évident que les électrons secondaires et des électrons rétrodiffusés émis par l'échantillon, contribuent au signal détecté. La proportion des électrons rétrodiffusés dans le signal détecté peut être supprimée par un arrangement d'électrodes. La figure III.2 montre le principe utilisé pour filtrer chaque signal ( $d$  est la distance détecteur-échantillon):



PE : Faisceau primaire

### Echantillon

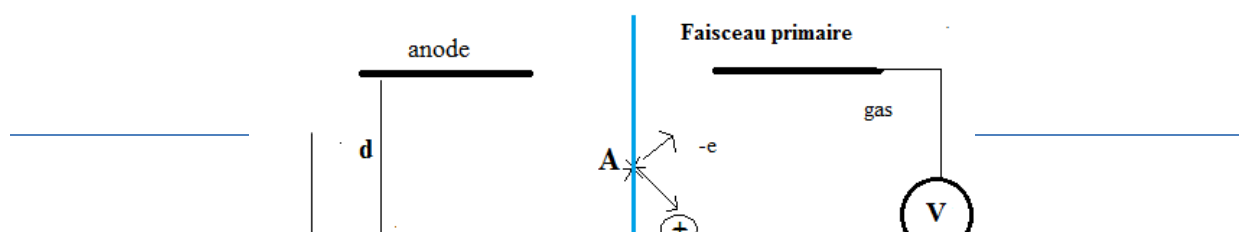
**Figure III .2 :** Séparation du volume de détection par les électrodes annulaires et concentriques (**Danilatos, 1990**)

L'électrode supérieure généralement polarisée de 30 à 600 V, est divisée en trois parties ayant la forme d'un anneau. Les trois électrodes marquées A, B, C peuvent être connectée au même potentiel. Le signal est détecté indépendamment par chaque électrode qui définit un autre volume de détection. Les électrons secondaires sont des électrons de faibles énergies, par contre les électrons rétrodiffusés sont des électrons de grande énergie et ne sont pas les mieux adaptés pour la caractérisation des détails fins de la surface.

### III.2.2. Modèle TGC (Townsend gas capacitor):

Avant de présenter les différentes relations théoriques utilisées dans les calculs, il est utile de comprendre quels phénomènes vont se produire dans la chambre d'analyse d'un MEBE :

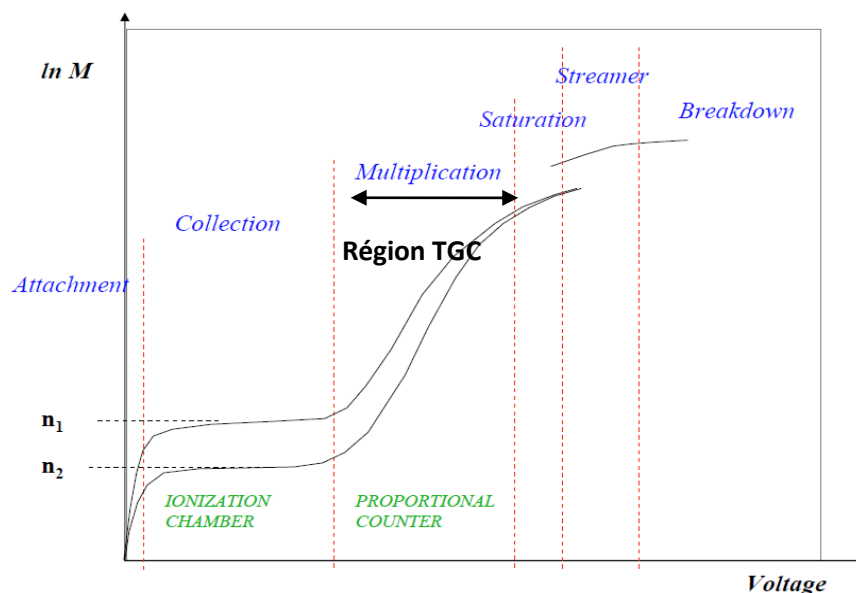
Lorsqu'un champ électrique est créé entre les deux électrodes polarisées, les électrons secondaires émergents de la surface de l'échantillon par l'interaction entre le faisceau primaire et l'échantillon sont accélérés vers l'anneau positivement polarisé. L'énergie de ces électrons peut atteindre plusieurs milliers de fois leur énergie initiale. Ces électrons entrent en collision avec des atomes ou molécules de gaz, si leur énergie le permet, pour libérer de nouveaux électrons appelés électrons secondaires environnementaux (ESEs). Ce processus se répète plusieurs fois provoquant une avalanche de charges en cascades «l'avalanche de Townsend». (**Danilatos, 1990c; Meredith et al., 1996**). La figure III.3 montre les différents signaux utilisés pour générer les électrons secondaires. Les électrons qui proviennent du faisceau primaire (PE) ionisent le gaz, événement symbolisé par **A**. Les électrons rétrodiffusés (BSE) et secondaires (SE) émis peuvent à leur tour ioniser le gaz (**B** et **C**). Sous l'influence du champ électrique, les électrons (ESEs) et les ions (Is) qui sont créés par l'ionisation du gaz peuvent être accélérés et à leur tour ionisent le gaz (événement **D**) :



**Fig. III.3** : Les différentes collisions ionisantes dans un gaz au dessus de la surface d'un échantillon non conducteur. Les étoiles (\*) indiquent des collisions ionisantes : A ionisation due au faisceau primaire, B ionisation due aux électrons rétrodiffusés, C ionisation due aux électrons secondaires s'ils possèdent une énergie suffisante et D ionisation liée au champ électrique.

Le principe de détection avec un GSED, est le même principe utilisé dans les compteurs proportionnels. Il est basé sur:

- 1-La multiplication des charges créés dans un volume gazeux.
- 2-L'amplification et la collection du signal généré par le mouvement des charges (électrons + ions).
- 3-L'utilisation d'un mode de fonctionnement en régime proportionnel ce détecteur peut être assimilé comme une décharge de Townsend (**Nasser, 1971; Von Engel, 1965**). **Figure(III.4)** (Danilatos, 1990c).



**Figure (III.4)** Modes de fonctionnement. Caractéristiques du gain en fonction de la tension.

Selon la loi d'échelle qui résulte du produit des deux paramètres (ici, la pression  $P$  du gaz et la distance  $d$  du claquage), les gaz régis par la loi de Townsend sont tels que  $P \cdot d < 500$



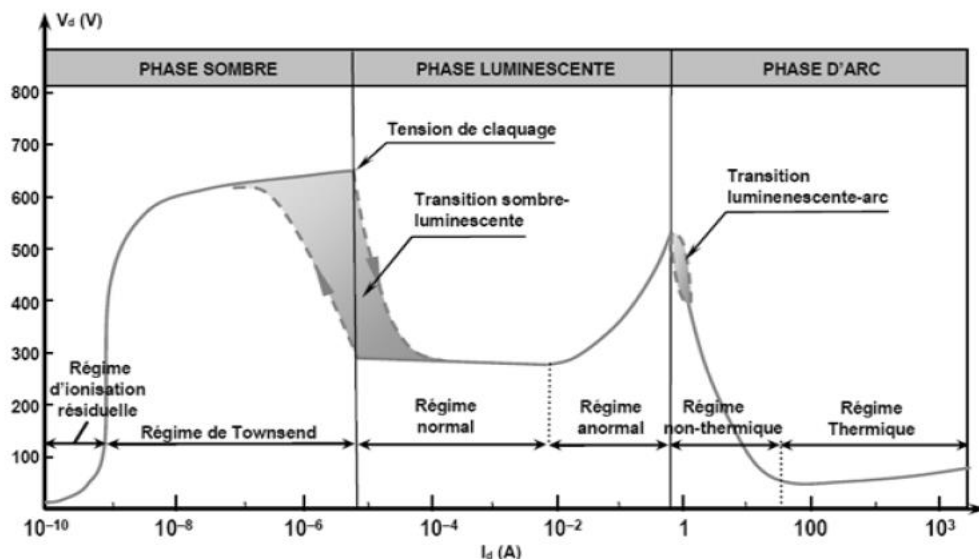
Torr.cm, comme les gaz rare principalement : l'Hélium, l'Argon et le Néon. Ces gaz représentent une stabilité remarquable pour  $P.d < 10\text{Torr.cm}$ . Les gaz régis par la physique des streamers sont tels que  $P.d > 500\text{Torr.cm}$ . (David et al, 2005).

### III.2.3 Mécanisme du claquage des gaz en MEBE :

Le critère d'auto-entretien appelé claquage se produit quand un gaz électriquement neutre absorbe assez d'énergie pour qu'il devienne ionisé et électriquement conducteur. Le claquage du gaz également désigné sous le nom de l'allumage du gaz, est un processus fondamental important, nécessaire pour le développement des dispositifs de détection dans ces conditions. D'autres technologies utilisent la décharge lumineuse (la lumière émise du gaz) dans la formation des images comme les détecteurs à scintillation (Danilatos, 1990 ; Fletcher e al. 1999 ; Thiel et al.,2006; Thot et al, 2006 ; Slowko, 2003 ,2001 ; Jirak et al., 2008).

#### III.2.3.1.Régime de Townsend :

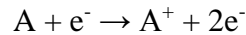
Lors du processus de claquage, le régime de la décharge dépend considérablement des paramètres tels que la géométrie, la pression de gaz et la tension appliquée. Pour les basses pressions et des faibles champs appliqués, le claquage s'appelle souvent claquage de Townsend ou régime de Townsend (Raizer Y.P., 1997), (Figure III.5).



**Figure III.5 :** Caractéristique courant-tension d'une décharge à basse pression, dans le cas idéal d'électrodes planes et parallèles.

### III.2.3.2. Formation de l'avalanche

Une multiplication des charges est due à l'application d'un champ électrique dans l'enceinte gazeuse. Cette cascade agit comme un amplificateur de signal à gain élevé en induisant un courant électrique dans l'électrode associée pour former les images en électrons secondaires (Danilatos, 1990c). Ce rôle est schématisé par la figure III.6. Lorsque l'énergie cinétique de l'électron dépasse le seuil d'ionisation du gaz, une collision ionisante se produit, créant un ion positif et un électron SE supplémentaire tel que :



Les deux électrons sont alors accélérés par le champ, et le processus se répète, ce qui donne lieu à une avalanche d'ionisation de gaz. Les ions positifs sont affectés par le champ

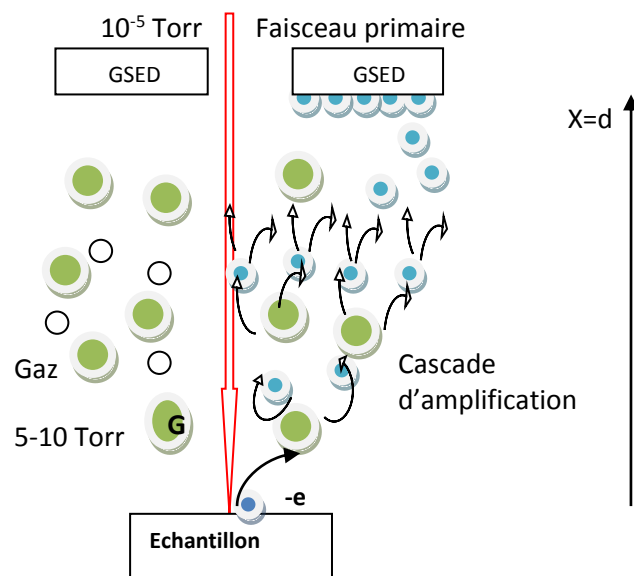


Figure (III.6) : Ionisation en cascade et phénomène d'avalanche

électrique, ils sont dirigés vers la surface de l'échantillon. Ils migrent plus lentement que les électrons.

### III.2.3.3. Premier coefficient d'ionisation de Townsend $\alpha$ :

L'accroissement infinitésimal du nombre d'électrons est gouverné par la loi de Townsend.

$$\frac{dN(x)}{dx} = \alpha N(x) \quad (\text{III.1})$$

d'où,

$$N(x) = N_0 \exp(\alpha \cdot x). \quad (\text{III.2})$$

Le phénomène de l'avalanche provoque un accroissement exponentiel de la densité de charge électronique lorsqu'on s'éloigne de l'électrode.

Pour  $x = d$ , nous aurons bien évidemment

$$N = N_0 \exp(\alpha \cdot d) \quad (\text{III.3})$$

Avec  $d$  la distance entre les électrodes (figure III.6),  $\alpha$  est le premier coefficient de Townsend ou le coefficient d'ionisation .

Le premier coefficient de Townsend  $\alpha$  est l'inverse du libre parcours moyen (qui est la distance que l'électron doit traverser pour être impliqué dans une seconde ionisation),  $\alpha$  représente le nombre de paires électron-ion produits par unité de longueur de dérive (**Danilatos,1990**).

#### III.2.3.4 Deuxième coefficient d'ionisation de Townsend $\gamma$ :

Le second coefficient de Townsend  $\gamma$  permet de quantifier l'émission des électrons secondaires à la cathode sous l'effet du bombardement ionique. Lorsqu'un ion arrive sur la cathode il peut expulser un électron secondaire par conversion de ses énergies cinétique et potentielle, le nombre d'électrons secondaires pour un ion incident définit le coefficient  $\gamma$  (**Engel, 1965; Robinson, 1975**) :

$$\gamma = \frac{[\text{Nombre d'électrons secondaires}]}{[\text{Nombre d'ions incidents}]}$$

Ce deuxième coefficient de Townsend est uniquement fonction de la nature de la cathode, par exemple pour une cathode en tungstène les valeurs de  $\gamma$  sont comprises entre 0,1 et 0,3 à des énergies de quelques eV. Les deux coefficients d'ionisation de Townsend  $\alpha$  et  $\gamma$  permettent d'établir les conditions d'entretien d'une décharge. Au niveau de l'anode ( $x = d$ ) arrivent donc  $\exp \alpha d$  électrons. Chaque électron quittant la cathode et terminant son transit sur l'anode, génère ainsi  $\exp (\alpha d - 1)$  électrons et ions.

$$N = \frac{N_0 e^{\alpha d}}{1 - \gamma(e^{\alpha d} - 1)} \dots\dots\dots (III.4)$$

$$\text{En terme courant : } I = \frac{I_0 e^{\alpha d}}{1 - \gamma(e^{\alpha d} - 1)} \dots\dots\dots (III.5)$$

Dans cette formule  $I_0$  représente le courant dû aux faisceau primaire, le facteur  $\gamma$  décrit un effet de multiplication des électrons dans le gaz par les collisions ionisantes électrons-molécules.

### III.2.3.5 Claquage de Townsend ou intrinsèque :

Ce type de claquage, appelé quelquefois « claquage électrique pur » pour le distinguer des autres types de claquage où le champ  $E$  intervient, n'est autre que la destruction de l'isolant (gaz) sous l'action des forces électriques. Le claquage intrinsèque est accompli en une durée de formation de l'ordre de  $10^{-8}$ s . Lorsque la tension entre l'anode et la cathode est augmentée, le courant devient infini si :

$$1 - \gamma(e^{\alpha d} - 1) = 0 \quad (III.6)$$

$$\alpha d = \ln\left(1 + \frac{1}{\gamma}\right) \quad (III.7)$$

Cette condition n'est valable que si le champ  $E = V / d$  est uniforme; Raether a remarqué que le nombre maximum de charges pouvant être contenues dans une avalanche sans claquages varie entre  $10^7$  et  $10^8$  électrons, c'est-à-dire, le nombre d'électrons dans l'avalanche est inférieur à une certaine valeur critique. Une limite est donnée par la condition de Raether (**Raether, 1967**) :

$$10^8 \approx N_0 e^{\alpha d} \Rightarrow \alpha x_c \approx 18 \text{ to } 20$$

## III.3. FACTEUR D'AMPLIFICATION OU GAIN :

### III.3.1 Cas d'un gaz pur :

Le coefficient  $\alpha$  dépend de la position  $x$  entre les électrodes. Dans ce cas, pour un gaz pur, la multiplication électronique  $M$  ou le gain s'écrit : (**Engel, 1965 ; Danilatos, 1990c**)

$$\ln M = \int_0^d \alpha(x) dx \quad (\text{III.8})$$

Une approximation du facteur de gain, (**Engel, 1965 ; Danilatos, 1990c; Thiel et al., 1997,2004b**) , lorsque le champ appliqué entre les électrodes est uniforme est:

$$\ln M = \alpha d \quad (\text{III.9})$$

Le premier coefficient de Townsend permet de quantifier le phénomène d'amplification de l'ionisation induite par un champ électrique; c'est-à-dire d'avalanche résultant d'un électron. Pour simplifier d'autres calculs comme la tension de claquage, une expression analytique du coefficient de Townsend en fonction du champ réduit  $E/P$  est donnée par l'expression (**Engel, 1965**) :

$$\frac{\alpha}{P} = A \exp\left(-B \frac{Pd}{V}\right) \quad (\text{III.10})$$

A et B sont des constantes du gaz. Pour chaque gaz ces constantes sont déterminées expérimentalement et sont considérées constants dans un domaine de champ réduit E/P. Ces constantes sont représentées dans le tableau III.1.

**Tableau III.1** Constantes A et B du coefficient d'ionisation  $\alpha$  pour quelques gaz:

Gas parameters	A (Torr <sup>-1</sup> cm <sup>-1</sup> )	B (V.Torr <sup>-1</sup> cm <sup>-1</sup> )	Leve Valid E/p range V .cm <sup>-1</sup> .Torr <sup>-1</sup>	Ref.
Ar	14	180	100-600	1
He	3	34	20-150	1
CO <sub>2</sub>	20	466	500-1000	1
Xe	26	350	200-800	1
H <sub>2</sub> O	10	216	150-1000	2
Kr	17	240	100-1000	1
N <sub>2</sub>	12	342	100-600	1

1 : (**Engel, 1965**)

2 : (**Thiel, 2004b**)

Le courant d'émission secondaire sera amplifié par un facteur de gain ou facteur de multiplication M (**Engel, 1965 ; Nasser, 1971 ; Danilatos, 1990c and Thiel et al., 1997**) donné par :

$$M_{SE} = \exp(\alpha.d) \quad (\text{III.11})$$

En outre, les signaux provenant d'autres sources comme ceux des électrons secondaires créés par l'impact des électrons primaires PE<sub>s</sub> et des électrons rétrodiffusion BSE<sub>s</sub> seront amplifiés et contribuent ainsi au signal utile dans le MEBE, le gain de chacune des composantes est donné par :

$$M_{PE} = M_{BSE} = \frac{\exp(\alpha.d) - 1}{\alpha.d} \quad (\text{III.12})$$

Pour une tension V donnée inférieure à la tension de claquage, et un gain maximum  $M_{SEmax}$ , la pression  $P_{max}$  est donnée par la relation :

$$P_{max} = \frac{V}{d.B} \quad (\text{III.13})$$

Le gain maximum est une fonction exponentielle de la polarisation d'anode et la nature du gaz seulement (Tileli V. et al., 2009) :

$$M_{SEmax} = \exp(0.368 \frac{A.V}{B}) \quad (\text{III.14})$$

### III.3.2 Cas d'un mélange de gaz:

Dans le cas d'un mélange, nous proposons ici un modèle additif simple dans lequel les densités d'ionisation produite dans le gaz mixte est la somme des densités de chaque gaz comme cela a été effectué ailleurs dans le cas des détecteurs de gaz .

Par conséquent, à partir de l'équation. (III.10) pour les deux gaz purs hélium et vapeur d'eau, nous pouvons facilement écrire pour un mélange.

$$\alpha = A_{He} P_{He} \exp(-B^* \frac{d}{V}) + A_{H_2O} P_{H_2O} \exp(-B^* \frac{d}{V}) \quad (\text{III.15})$$

$$\text{Avec : } B^* = B_{He} P_{He} + B_{H_2O} P_{H_2O} \quad (\text{III.16})$$

Et  $A_{He}$ ,  $B_{He}$ , et  $A_{H_2O}$ ,  $B_{H_2O}$  sont des constantes de gaz d'hélium et de la vapeur d'eau et  $P_{He}$ ;  $P_{H_2O}$  sont les pressions partielles d'hélium et de la vapeur d'eau, respectivement. Les paramètres utilisés dans nos calculs sont rassemblés dans le tableau III.1.

### III.4.THEORIE DES SIGNAUX DETECTES DANS LE MEBE:

Dans le MEBE, l'espace des charges est constitué des particules chargées suivantes : les électrons primaires (PEs), les électrons rétrodiffusés (BSEs), les électrons secondaires (SEs), des atomes/molécules de gaz ionisés, des électrons secondaires environnementaux (ESEs) générés lors de l'interaction entre les atomes/molécules du gaz avec les PEs, SEs, BEs et enfin les électrons générés par l'impact des ions positifs sur la surface de l'échantillon qui sont considérés comme des électrons secondaires environnementaux ESEs (**Thiel et al., 1997; Toth and Phillips, 2000**).

#### III.4.1. L'intensité du courant :

Le courant crée en cascade au niveau du détecteur par les électrons secondaires (SEs) générés par la collision entre le faisceau d'électrons primaire non diffusé et la surface de l'échantillon est décrit par l'équation suivante: (**Moncrieff et al.,1978**)

$$I_s = I_0 \delta \cdot f \cdot \exp(\alpha d) \quad (\text{III.17})$$

$I_s$  : Intensité courant secondaire amplifié issu de l'échantillon.

$I_0$  : Intensité du faisceau primaire.

$\delta$  : Rendement des électrons secondaires.

$f$  : Fraction des électrons non diffusés.

Le courant initial généré dans le gaz est :

$$I_{ion} = I_{SE} + I_{PE} + I_{BSE} \quad (\text{III.18})$$

Avec :

$$I_{SE} = \delta I_0 \quad (\text{III.19})$$

$$I_{BSE} = \eta I_0 S_{BSE}(pl) \quad (\text{III.20})$$

$$I_{PE} = I_0 S_{PE}(pl) \quad (\text{III.21})$$

où  $I_0$  est le courant de faisceau primaire; et  $S_{SE}$ ;  $S_{BSE}$  représentent les coefficients d'efficacité d'ionisation des électrons primaires et rétrodiffusés, ( $l \cong d$ =distance de travail).

Cependant afin d'inclure toutes les contributions, le courant total ( $I$ ) de la cascade (généré par le processus d'amplification de gaz) atteignant le détecteur, est décrit par toutes les composantes de signal amplifiée est décrit par l'équation

$$I_{ion} = \left[ \delta \exp(\alpha d) + \frac{\eta \cdot p S_{BSE}}{\alpha} (\exp(\alpha d) - 1) + \frac{S_{PE} P}{\alpha} (\exp(\alpha d) - 1) \right] I_0 \quad (\text{III.22})$$

(**Moncrieff et al.1978 ; Meredith et al. 1996**) .

Nous utiliserons cette dernière pour tracer les courbes des signaux dans le chapitre IV .

### III.4.2. Calculs des coefficients d'ionisations des électrons primaires SPE et des électrons rétrodiffusés SBSE :

$$S_{PE} = \frac{\sigma_T^i(\varepsilon_{PE})}{kT} \quad (III.23)$$

$$S_{BSE} = \frac{\sigma_T^i(\varepsilon_{BSE})}{kT} \quad (III.24)$$

Avec : k est la constante de Boltzmann et T, la température absolue du gaz.

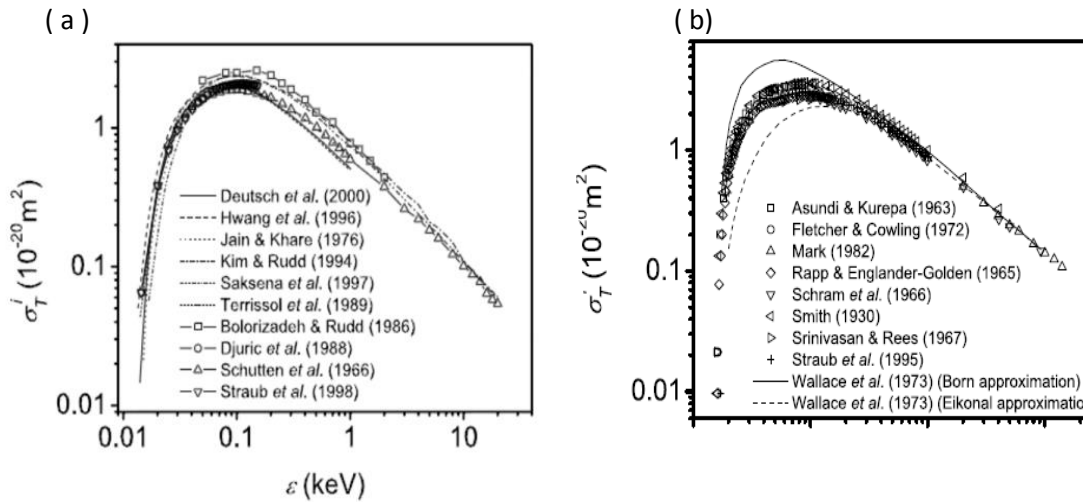
$\sigma_T^i(\varepsilon_{PE})$  est la section efficace totale d'ionisation des électrons primaires . Dans modèles d'amplification en cascade l'énergie de BSES est généralement prise égale à:

$$\varepsilon_{BSE} = 0.75\varepsilon_{PE} \quad (III.25)$$

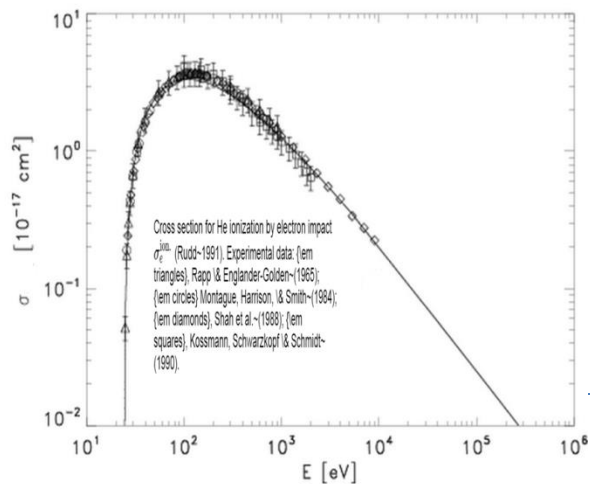
et 
$$\sigma_T^i(\varepsilon_{BSE}) = \sigma_T^i(0.75\varepsilon_{PE}) \quad (III.26)$$

(Danilatos, 1990c; Farly et al., 1990; Meredith et al., 1996) .

La section efficace totale d'ionisation des gaz en fonction de l'énergie des électrons primaires pour Ar et H<sub>2</sub>O, est montrée sur la figure (III.7.a) et la figure (III .7.b)



**Figure (III.7) :** Section efficace totale d'ionisation des gaz en fonction de l'énergie des électrons primaires pour : a) H<sub>2</sub>O, b) Ar (Morgan, 2006)





**Figure (III.8) :** Section efficace totale d'ionisation des gaz en fonction de l'énergie des électrons primaires pour He. (<http://physics.nist.gov/>)

### III.5. AMPLIFICATION ELECTRONIQUE DU SIGNAL :

L'amplification totale du gaz est définie par le rapport du nombre des ions (ou ESE) produit dans la cascade au nombre d'électrons sortant de l'échantillon (**Fletcher et al., 1997**), ce qui est équivalent au rapport entre le courant d'ionisation  $I_{ion}$  et le courant échantillon  $I_{sc}$  :

$$A_e = \frac{I_{ion}}{I_0(\delta + \eta)} \quad (III.27)$$

On divisant (III.13) sur (III.18)

$$A_e = \frac{(\exp(\alpha d) - 1)}{(\delta + \eta)} \left[ \delta + \frac{\eta \cdot p S_{BSE}}{\alpha} + \frac{S_{PE} P}{\alpha} \right] \quad (III.28)$$

Pour une avalanche infini

$$\frac{\exp(\alpha d)}{\exp(\alpha d) - 1} \rightarrow 1 \quad (III.29)$$

Pour une avalanche infini (Faraley et Shah1990b, Meredith et al1996Moncreiff et al1987, Theil et al.1997) dans (**Morgana, 2006**).

Par conséquent, les équations de l'amplification de chaque source d'électrons qui contribue séparément ,Amplification des électrons primaires , Amplification des électrons rétrodiffusées , Amplification des électrons secondaires respectivement sont illustrées par :

$$A_e^{PE} = \frac{S_{PE} P \cdot (\exp(\alpha d) - 1)}{(\delta + \eta) \alpha} \quad (III.30)$$

$$A_e^{BSE} = \frac{\eta \cdot p S_{BSE} \cdot (\exp(\alpha d) - 1)}{(\delta + \eta) \alpha} \quad (III.31)$$

$$A_e^{SE} = \frac{\delta \cdot (\exp(\alpha d) - 1)}{(\delta + \eta)} \quad (\text{III.32})$$

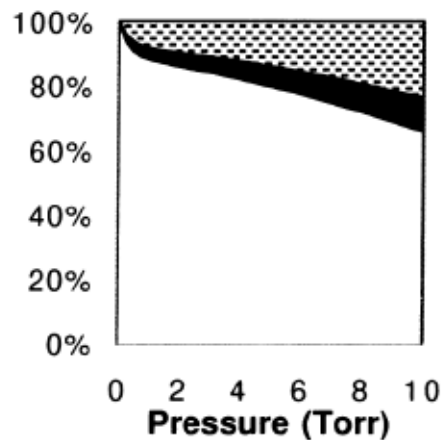
**Tableau III.2**  $\delta$  et  $\eta$  sont les valeurs des rendements d'émission pour les SE et les BSE respectivement (**Morgan, 2006**) .

Parameter	Value
Sample	Si
$\eta$	0.19
$\delta$	0.22

### III. 5.1 Effet de la présence du gaz sur le contraste de charge :

Les électrons secondaires SE émis de l'échantillon sont les électrons de plus faible énergie. Ces électrons seront les plus efficaces en ionisation et contribuent à la cascade. Comme le montre la figure (III.9), le signal collecté provient essentiellement de l'ionisation des électrons secondaires. (Fletcher et al., 1997).

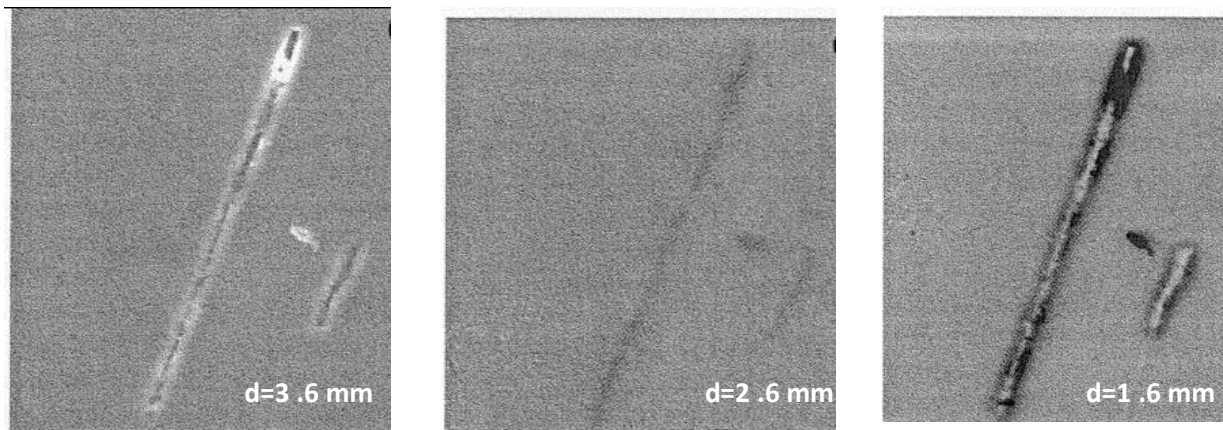
Fletcher et al, montrent qu'à faible pression le signal est principalement engendré par les SE. Les électrons primaires PE et les électrons rétrodiffusés BSE contribuent à une pression plus élevée.



**Figure IV.9 :** Pourcentage de la contribution par effet cascade : ES (en blanc), PE(en ombré), BSE (en noire).

Les électrons « dépiégés » qui se recombinent ou les SE éliminés par les ions du gaz, dès leur échappement de la surface, ne font pas diminuer le signal SE car ils ne contribuent pas à la cascade. (Toth et al., 2002a, 2002b, 2002d, 2003).

La recombinaison des SE (les électrons secondaire qui participent à l'avalanche) avec les ions peut avoir des effets sur le signal total collecté. Ainsi la présence de la charge d'espace par l'accumulation locale d'ions positifs conduire à une diminution locale du signal. En l'absence de cette charge d'espace, le champ électrique de la cascade est linéaire, de la forme :  $(V_a - V_{surface}) / d$ , où  $V_a$  et la polarisation de l'anode (détecteur). Un potentiel de surface positif va donc réduire l'efficacité de la cascade. Figure IV.10 montre les images en (GSED) : L'image présente un contraste "normal" pour une distance  $d=3.6\text{mm}$ , par lequel les zones brillantes et noirs correspondent à la forte et faible émission d'électrons, respectivement. La diminution de la distance de travail provoque une disparition du contraste pour  $d=2.6\text{mm}$ , et une inversion de contraste pour une distance de  $d=1.6\text{mm}$ .



**Figure IV.10 :** (GESD) : Image défauts structurels dans le saphir non revêtu. Acquisse en fonction de la distance de travail ( $E = 15 \text{ KeV}$ ,  $V_{\text{GESD}} = 30 \text{ V}$ ,  $P = 0,9 \text{ torr}$ ,  $\text{HFW} = 129 \mu\text{m}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ). (Toth et al, 2000).

Les ions positifs créés au sein de l'environnement gazeux vont compenser l'accumulation de charges à la surface de l'échantillon (Thiel 2004a). La diminution de la distance de travail est accompagnée par la diminution de l'amplification, en même temps le libre parcours moyen des ions diminue ce qui permet aux ions de dériver vers la surface (voir chapitre II. 4 .2.3), l'excès de la charge positive, provoque la disparition ou l'inversion du signal (Craven et al, 2002). Un modèle pour traduire l'auto-régulation de l'ionisation du gaz utilisé pour l'amplification (par recombinaison SE/ions), a été présenté par Toth et al (Toth et al, 2002 a).

### III.5.2 Modèle analytique du bruit :

La collection des signaux 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 dans la microanalyse X obtenues dans un MEBE (Gauvin, 1999 ; Adamiak et al., 2000). Plusieurs auteurs, comme (Moncrief et al., 1978 ; Danilatos, 1988 ; Farley et al., 1990 ; Gillen et al. 1998, Kadoun et al., 2003 ; Stowe et al., 1998 ; Wight et al., 1997) ont étudiés la diffusion électrons-gaz dans un MEBE. Le bruit total implique la somme de toutes les contributions. Un modèle mathématique proposé par Vasiliki Tileli (Tileli et al., 2009) a été confronté à des mesures expérimentales et permet de calculer les

composantes de bruit en cascade ajoutées linéairement car elles sont indépendantes l'une de l'autre, tandis que le bruit de grenaille et le bruit du détecteur sont ajoutés en quadrature, depuis le préamplificateur est connecté à l'amplificateur en cascade de gaz dans la série:

$$N = \left[ N_B^2 + (N_{SE} + N_{BSE} + N_{PE})^2 + N_{DE}^2 \right]^{0.5} \quad (\text{III.33})$$

1-Le bruit de la cascade de l'amplification par le gaz découle de la formation de l'environnement ou de plasma dans la chambre, provenant de la contribution des:

• électrons primaires (PEs)  $N_{PE}$  :

$$N_{PE} = \left\{ 2eI_0 S_{PE} pl. \left( \frac{\exp \alpha d - 1}{\alpha d} \right) \left( \frac{2(\exp \alpha d - 1)}{\alpha d} - 1 \right) \right\}^{0.5} \quad (\text{III.34})$$

• électrons rétrodiffusés (BSEs)  $N_{BSE}$  :

$$N_{BSE} = \left\{ 2eI_0 \eta S_{BSE} pl. \left( \frac{\exp \alpha d - 1}{\alpha d} \right) \left( \frac{2(\exp \alpha d - 1)}{\alpha d} - 1 \right) \right\}^{0.5} \quad (\text{III.35})$$

• électrons secondaires e (SEs)  $N_{SE}$  :

$$N_{SE} = ((2eI_0 b(\delta(\delta + 1) \exp \alpha d(2 \exp \alpha d - 1)))^{0.5} \quad (\text{III.36})$$

2-Le bruit de l'amplificateur ou de Johnson: découlant du bruit thermique et électroniques dans le system de détection :

$$N_B = (4.k.T R.b)^{0.5} \quad (\text{III.37})$$

3- Le bruit de grenaille

$$N_{DE} = (2.e.I_0.b)^{0.5} \quad (\text{III.38})$$

Avec e:La charge de l'électron

b : bande passante du signal b=1 Hz pour tous les calculs

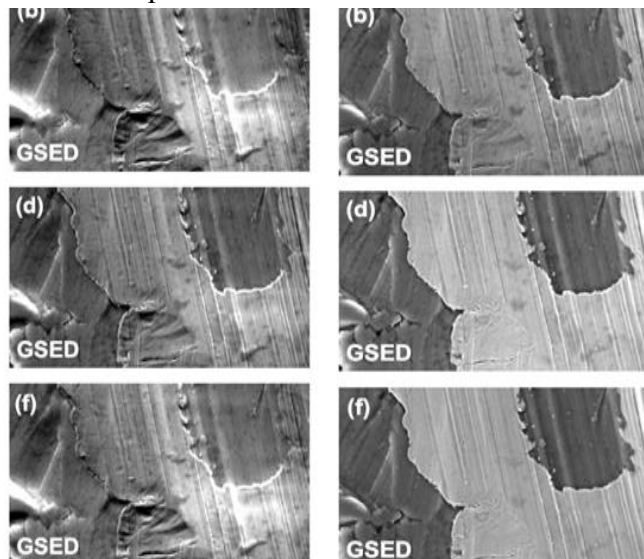
$I_0$  : Courant du faisceau primaire actuelle:

k: constante de Boltzmann, T température absolue

R : La résistance du circuit extérieur.

### III.6. Rôle du quencheur:

Le but de cette section est de souligner brièvement les propriétés importantes de certain gaz utilisés potentiellement en fonction du type d'observation ou d'expérience dans un HPSEM. L'air et de vapeur d'eau sont fréquemment utilisés car ils sont peu coûteux, facilement accessibles et faciles à manipuler. Le mécanisme de détection de signal est également un critère important pour le choix du gaz vis-à-vis de l'observation. Certaines propriétés des gaz, autres que la vapeur d'eau et l'air peuvent s'accorder mieux à la collecte du signal de luminescence du gaz. A titre d'exemple, pour les échantillons qui s'oxydent facilement, l'argon peut être choisi pour son inertie, l'oxygène (Guo et al 2005) aussi pour sa capacité de recombinaison avec les atomes d'oxyde en cas d'endommagement de la surface. La figure III.11 montre clairement que l'image obtenue sous gaz d'Argon est meilleure que celle obtenue sous pression de vapeur d'eau.



**Fig.III.11.** Image du même échantillon sous pression de H<sub>2</sub>O (à gauche) et sous pression de Ar (à droite).(Morgan et al, 2006)

Dans un détecteur gazeux La multiplication des charges est basée sur de nombreuses collisions ionisantes des électrons accélérés sur les molécules du gaz. Cependant, des collisions non ionisantes aboutissant à une simple excitation de la molécule de gaz sont fréquentes. Dans certaines occasions, les photons (visible ou ultra-violet) de relaxation de ces états excités peuvent engendrer de nouveaux électrons par effet photoélectrique sur les électrodes ou par simple ionisation dans le gaz. Ces électrons génèrent des avalanches secondaires conduisant à une densité de charge très élevée qui peut conduire à la divergence du mécanisme d'avalanche. Un arc électrique peut apparaître alors entre les électrodes évalué

la charge maximale contenue dans l'avalanche et entraîne la saturation des charges et selon la nature du mélange gazeux et sa pression, ceci conduit à une charge d'espace importante qui écrante le champ électrique et tue le processus d'amplification des charges. Ce phénomène se produit pour des pressions élevées et est appelé couramment : mode « streamer », et a implications sur les performances du détecteur. Afin de neutraliser, le caractère divergent d'une avalanche, on ajoute au gaz noble, une faible proportion d'un gaz comportant des molécules polyatomiques, appelé « gaz quencheur ». Ces molécules possèdent généralement de nombreux modes d'excitations rotationnels et vibrationnels qui permettent de dissiper l'énergie des photons de désexcitation du gaz noble. Ceci permet d'accroître la dynamique pour laquelle le détecteur fonctionne en régime proportionnel et retarde l'apparition des régimes saturés. Les gaz à molécules organiques comme le méthane ( $\text{CH}_4$ ), l'éthane ( $\text{C}_2\text{H}_6$ ), ou l'isobutane ( $\text{iC}_4\text{H}_{10}$ ) sont de très bons candidats, seulement, ce sont des gaz inflammables présentant des contraintes non négligeables de sécurité (Danilatos, 1990). En revanche, le dioxyde de carbone ( $\text{CO}_2$ ) ne présente aucune précaution particulière à l'usage tout en possédant de très nombreux modes rotationnels et vibrationnels (**Butcher, 2007**).

### **III.7. CALCUL DU RAYON DU SKIRT PAR LA METHODE DE MONTE CARLO :**

Cette partie est consacrée à la simulation, par une méthode de Monte Carlo en utilisant des programmes qui ont été développés par l'équipe de recherche TAMTA de notre laboratoire. La simulation est appliquée pour mesurer la diffusion du faisceau primaire. Nous nous intéressons à la simulation des trajectoires des électrons dans différents types de gaz purs et leurs mélanges. Cette simulation nous permettra plus tard (chapitre suivant) de calculer l'étendue de l'élargissement (skirt) du faisceau primaire d'électrons suite à son interaction avec le gaz. Nous réaliserons ce type de calculs concomitamment avec les calculs d'amplifications pour le détecteur afin de trouver le meilleur compromis pour le choix du mélange gazeux qui doit être un bon amplificateur tout en créant une divergence minimale du faisceau primaire. Dans un premier temps nous expliquons le principe de la méthode Monte Carlo ainsi que la méthode de calcul des sections efficaces de diffusion.

#### **III.7.1. Principe de la méthode de Monte Carlo :**

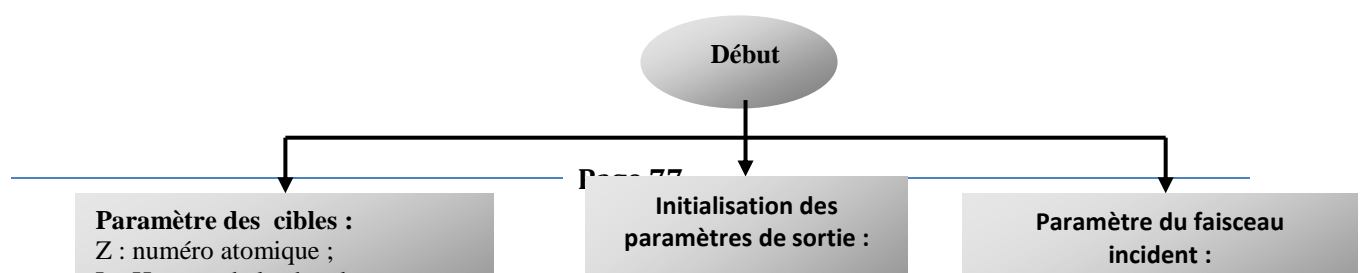
Pour simuler les trajectoires électroniques lors de l'interaction électron-gaz, il est nécessaire de suivre une série d'étapes. Tout d'abord un électron primaire est généré dans des conditions initiales fixes et prédéfinies. La particule se déplace librement jusqu'à certaine

distance avant d'interagir physiquement la première fois avec une entité (atome ou molécule) du gaz. Cette distance entre deux évènements sera échantillonnée par un générateur de nombres aléatoires. Puis toutes les interactions possibles sont prises en compte par le programme afin de proposer des probabilités d'évènement. En plus il est important que l'intervalle de l'espace déterminé par un programme interne ou « pas » prenne en compte les effets résultant comme les limites du volume d'interaction, ou le seuil pour la production des particules secondaires. Ces étapes se répètent après que la première interaction soit déterminée pour toutes les données primaires, puis le logiciel enregistre les résultats obtenus dans les régions cibles. La figure (III.10), représente 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. Ce programme a été élaboré lors d'un travail antérieur au sein de notre groupe (**Mansour,2010**) :

Dans ce programme de calcul, les notations suivantes ont été adoptées :

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

Ce programme a été utilisé pour simuler les trajectoires électronique dans les gaz  $CO_2$ ,  $H_2O$ , Ar, et He . Nous avons choisi de comparer les résultats pour  $CO_2$  avec d'une part, l'hélium, gaz monoatomique où les atomes sont de faibles dimensions, et qui, à priori, est susceptible de donner les meilleurs résultats du point de vue de la réduction du skirt, et d'autre part, la vapeur d'eau, gaz moléculaire largement utilisé dans le domaine des observations biologiques. Pour He, les sections efficaces ont été calculées selon le modèle présenté au chapitre II. Pour  $CO_2$ , nous n'avons malheureusement pu suivre la même démarche en raison de l'indisponibilité de l'amplitude de diffusion dans la littérature. Nous avons alors utilisé des sections efficaces expérimentales puisées de cette même littérature. Pour le  $CO_2$  bien que le modèle théorique soit applicable car les données disponibles, nous avons choisi d'utiliser des sections efficaces expérimentales plus précises (aux erreurs expérimentale





**Non**

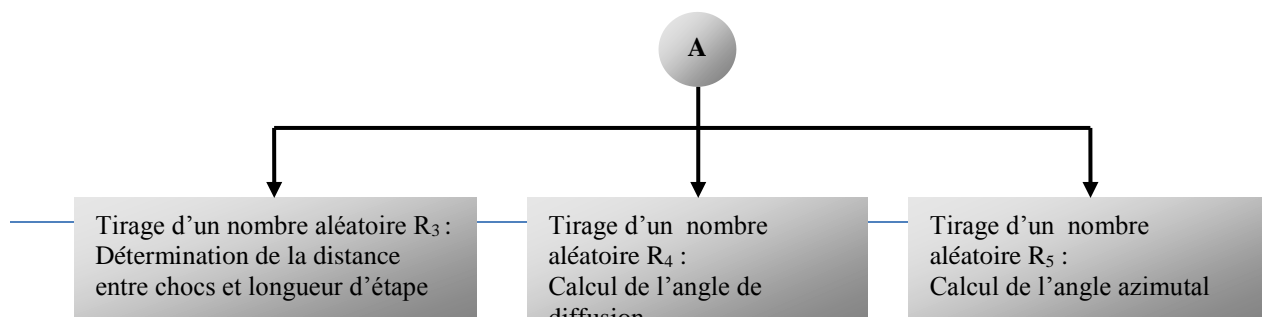
**Oui**

**Non**

**Oui**

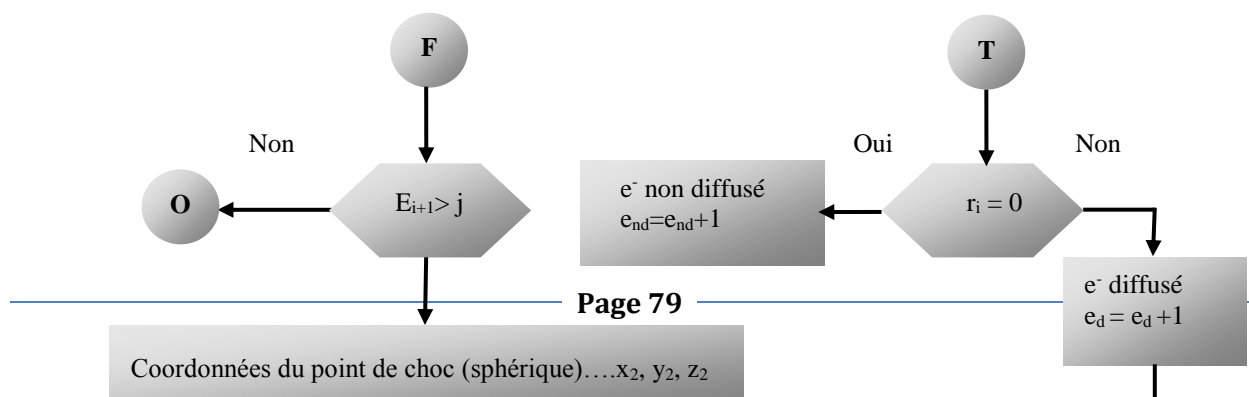
**Non**

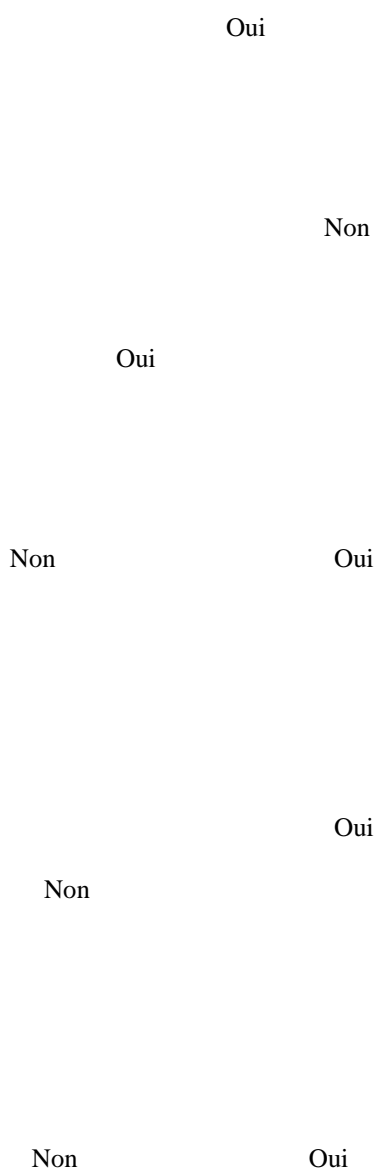
**Oui**



Non

Oui





**Figure III. 12** : Organigramme de simulation des trajectoires électroniques et calcul des rayons de skirt par la méthode Monte-Carlo. (Mansour,2010) .

### III.8. Synthèse et conclusion :

L'utilisation des mélanges de gaz pour l'imagerie en électrons secondaires dans un MEBE peuvent améliorer les performances du détecteur surtout pour l'analyse des échantillons non conducteur.

Des études antérieures menées au sein de notre laboratoire ont montré que l'hélium est le meilleur candidat du point de vue de la minimisation du skirt et ils ont proposé d'ajouter une faible proportion d'un autre gaz, sans calculer le taux d'amplification.

D'autres auteurs ont étudié le rôle des gaz purs dans l'amplification lorsqu'on utilise l'environnement gazeux dans la détection, afin d'augmenter le taux de production d'ions positifs susceptibles d'assurer la neutralisation de la charge surfacique de l'échantillon, mais non pas les mélanges.

Notre étude dont les résultats seront livrés au chapitre suivant, est basée sur un modèle analytique simple et une simulation Monte Carlo (MC).

1/ Le modèle analytique développé pour le calcul des courbes d'amplifications dans les mélanges gazeux. Ce modèle repose sur le calcul du premier coefficient d'ionisation pour le mélange.

2/ La simulation MC pour calculer le rayon de skirt dans ces mélanges.

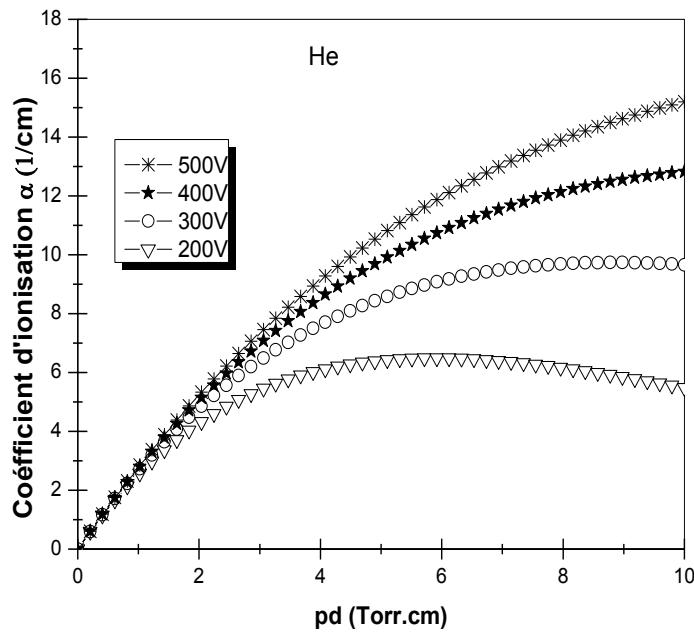
**OPTIMISATION DU SIGNAL COLLECTÉ PAR LE GSED**

**IV.1. INTRODUCTION :**

Dans le but d'optimiser le signal collecté par le détecteur environnemental GSED, nous avons tout d'abord calculé les coefficients d'ionisation ou premiers coefficients de Townsend  $\alpha$  dans les différents gaz rares (He, Ne, Ar, Kr, Xe) en fonction du produit (Pd) et de la tension appliquée, ainsi que pour les mélanges. Ensuite nous avons calculé le gain, et le signal collecté après amplification par l'effet cascade dans un mélange gazeux. Pour les profils du faisceau d'électrons dans le gaz nous avons utilisé le programme Monte Carlo développé au sein de notre laboratoire.

**IV.2. COEFFICIENT D'IONISATION:**

**IV.2. 1 Gaz Purs :**



*Figure. IV.1 : Coefficient d'ionisation en fonction de  $pd$  dans l'Helium pour différentes tensions*

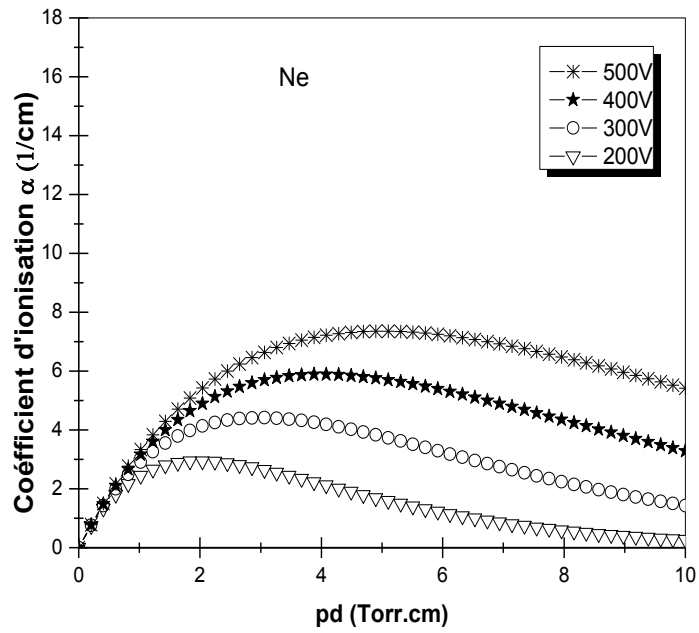


Figure. IV.2 : Coefficient d'ionisation en fonction de  $p.d$  dans le néon pour différentes tensions.

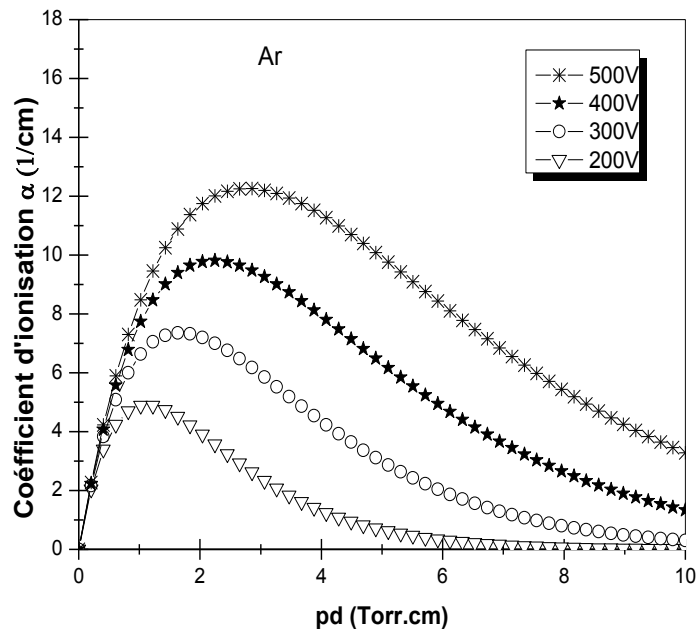


Figure. IV.3 : Coefficient d'ionisation en fonction de  $p.d$  dans l'argon pour différentes tensions.

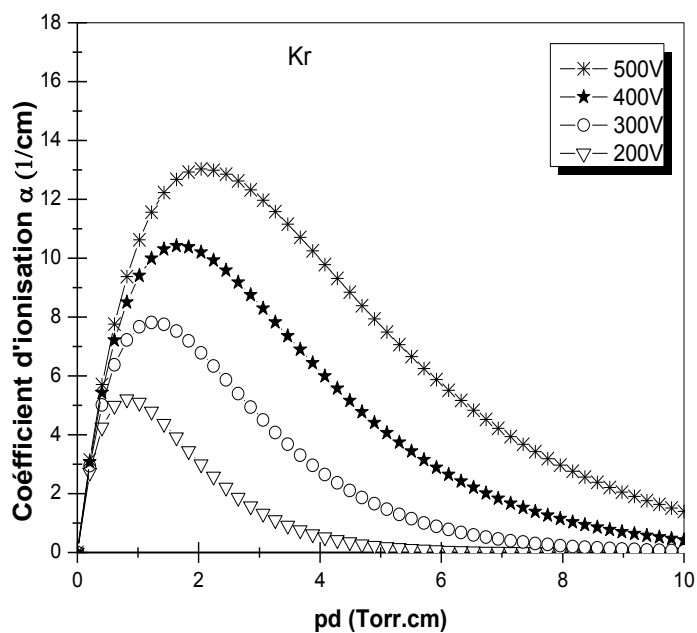


Figure. IV.4 : Coefficient d'ionisation en fonction de  $p.d$  dans le krypton pour différentes tensions

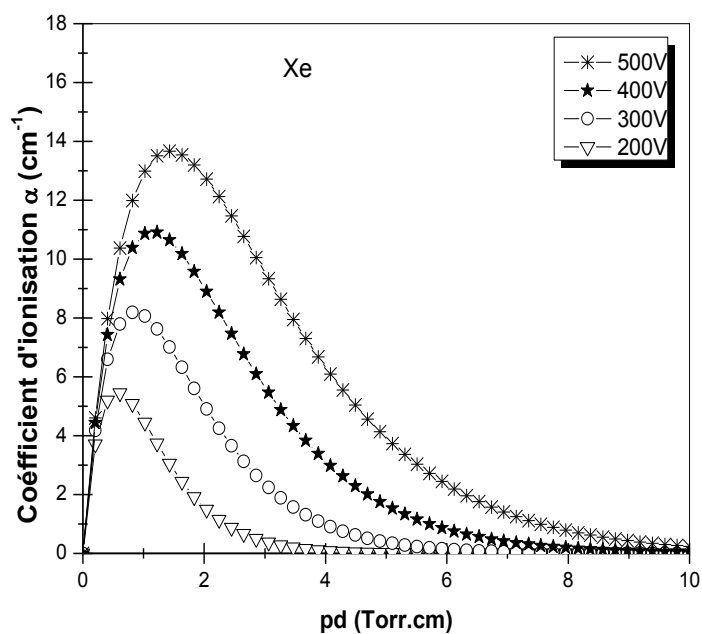
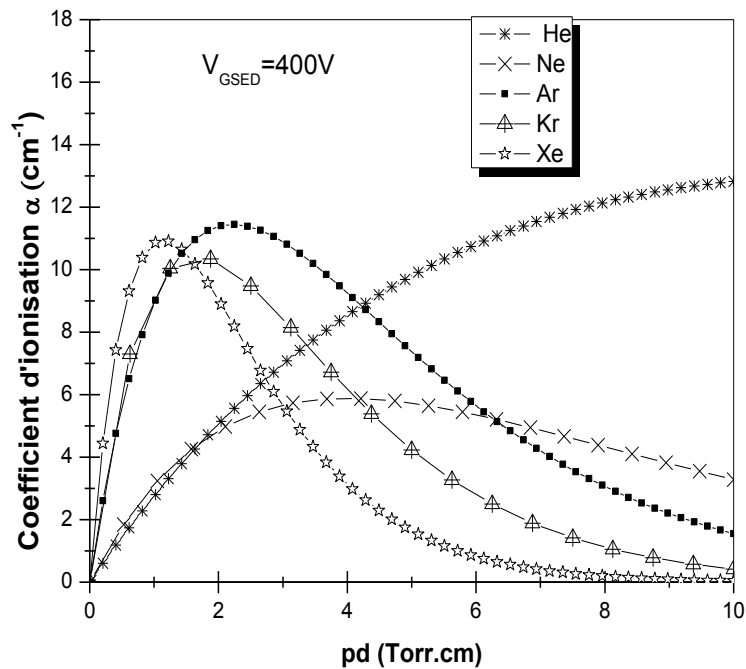


Figure. IV.5 : Coefficient d'ionisation en fonction de  $p.d$  dans le xénon pour différentes tensions.



**Figure. IV.6 :** Coefficient d'ionisation en fonction de  $p.d$  dans différents gaz rares pour une tension de 400V.

Les figures (IV.1) à (IV.5) montrent que le coefficient d'ionisation pour les différents gaz augmente à mesure que la pression du gaz est augmentée à faible valeur du produit  $pd$ . Toutes les courbes présentent une forme similaire, avec une valeur maximale puis une décroissance à  $pd$  élevé. Pour un gaz donné, à  $pd$  constant, le coefficient d'ionisation augmente avec la tension appliquée ( $V_{\text{GSED}}$ ). L'augmentation de la tension provoque également un déplacement du maximum vers les valeurs élevées de  $pd$ . La figure IV.6 rassemble les coefficients d'ionisation pour 5 gaz rares en fonction de  $pd$  à une tension fixée à 400V. Le domaine de pression où le coefficient augmente puis atteint son maximum varie selon le gaz. Il apparaît que plus le gaz est lourd, plus il présente un coefficient élevé à faible  $pd$  ou valeur de ( $pd$ ), par exemple : le Xe présente un coefficient élevé mais pour une trop faible valeur de ( $pd$ ), presque (1 Torr.cm), comparée aux conditions de travail d'un MEBE. Pour l'argon ( $pd$ ) est de 2,5 Torr.cm alors que pour l'hélium ce maximum est aux alentours



de 10 Torr.cm. La diminution de  $\alpha$  avec une augmentation de  $p$ , après la valeur maximale atteinte, est due à l'augmentation de la concentration du gaz, on a donc une diminution du libre parcours moyen. Cela ne permet pas aux électrons d'avoir suffisamment de temps pour être accélérés par le champ électrique entre les collisions et de fournir un plus grand transfert d'énergie lors de la collision, ce qui diminue l'ionisation. (Engel, 1965), (Thiel et al, 1997). En ce qui concerne le gaz qui nous intéresse, l'hélium présente un coefficient élevé à grande valeur de  $(Pd)$ . Notons que l'argon présente une valeur élevée ce qui pourrait être très intéressant pour de faibles valeurs de  $Pd < 3\text{Torr.cm}$  dans la chambre d'analyse d'un MEBE.

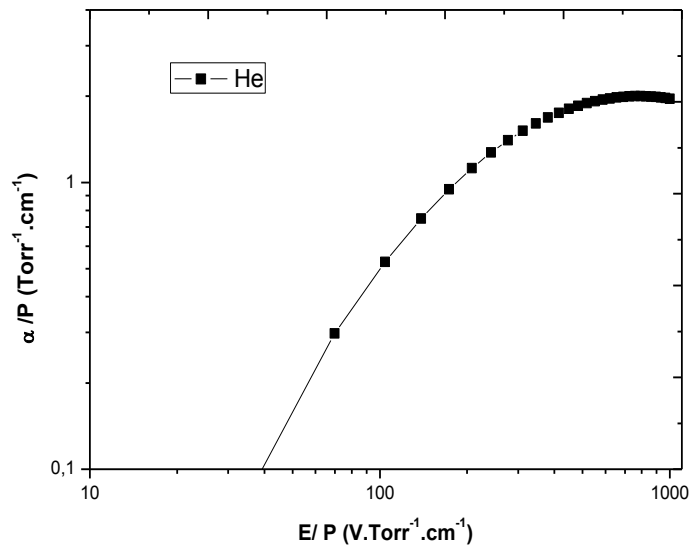
#### **IV.2. 2. Mélange gazeux :**

Le mélange de gaz est un choix important pour la détection. Pour cela, les atomes de gaz doivent donner lieu à une faible diffusion tout en assurant une bonne ionisation. Nous avons choisi pour cette étude l'hélium comme un gaz monoatomique, en raison de sa faible section efficace de diffusion, et pour les gaz aditifs nous avons choisi  $\text{CO}_2$ , Ar et  $\text{N}_2$  qui ont de nombreuses applications lors de l'observation de différents matériaux. Pour cela nous avons choisi de calculer le premier coefficient d'ionisation de Townsend numériquement par Bolsig+, pour deux différents pourcentages (5% et 10%) d'argon et de dioxyde de carbone.

Le logiciel BOLSIG + développé par J.P. Bœuf et L.C. Pitchford (Hagelaar et al, 2005) est un programme permettant d'évaluer les coefficients de transport des électrons dans le gaz en résolvant les équations de Maxwell-Boltzmann. Ce programme inclut les sections efficaces pour de nombreux gaz et permet de calculer avec une bonne approximation le coefficient d'ionisation réduit  $\alpha/P$  en fonction du champ réduit  $E/P$  dans un mélange gazeux donné. Les gaz traités par ce programme peuvent comprendre un mélange de trois gaz.

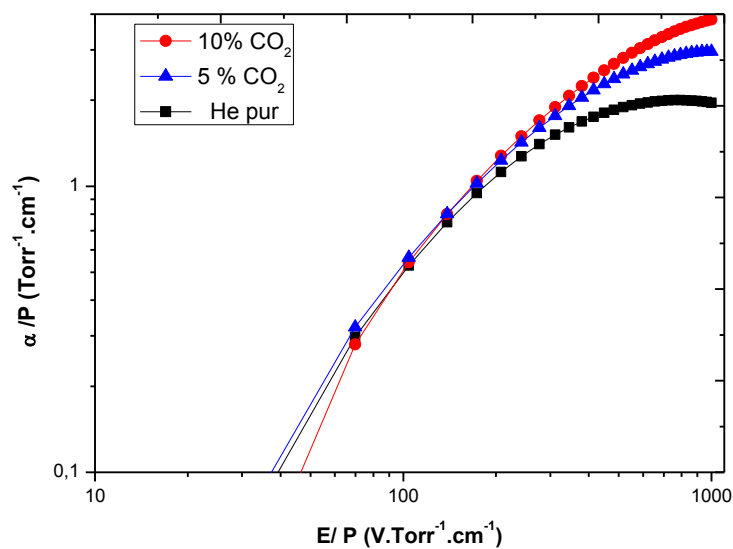
Nous avons tracé dans la figure IV.7, la variation du coefficient réduit ( $\alpha/P$ ) en fonction du champ électrique réduit pour l'hélium. On observe une augmentation de  $\alpha/P$  en

fonction du champ réduit  $E/P$ . Cette augmentation est rapide pour un faible champ  $E/P$  de 30 à 200  $\text{V} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{torr}^{-1}$ , et après les 200  $\text{V} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{torr}^{-1}$  sa montée devient plus lente, il commence alors à se stabiliser pour atteindre approximativement la valeur de 2  $\text{cm}^{-1} \cdot \text{torr}^{-1}$ .

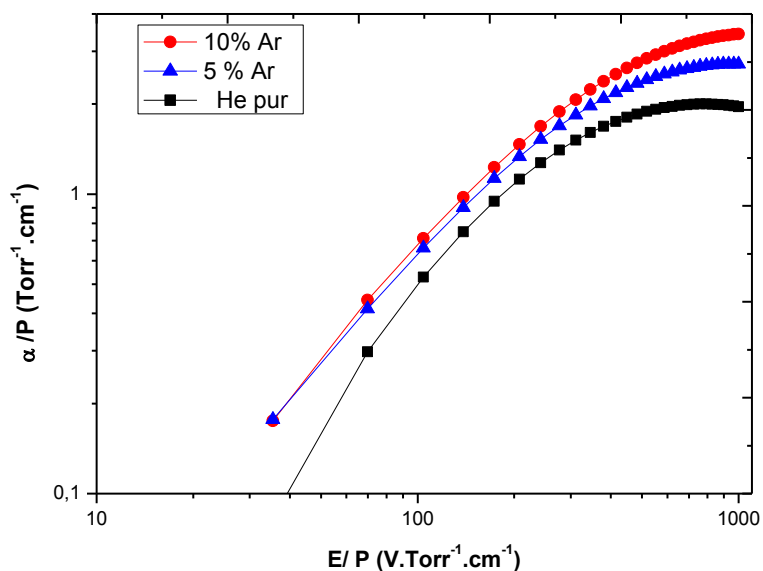


**Figure IV.7:** Coefficient d'ionisation réduit en fonction du champ  $E/P$  pour l'hélium pur.

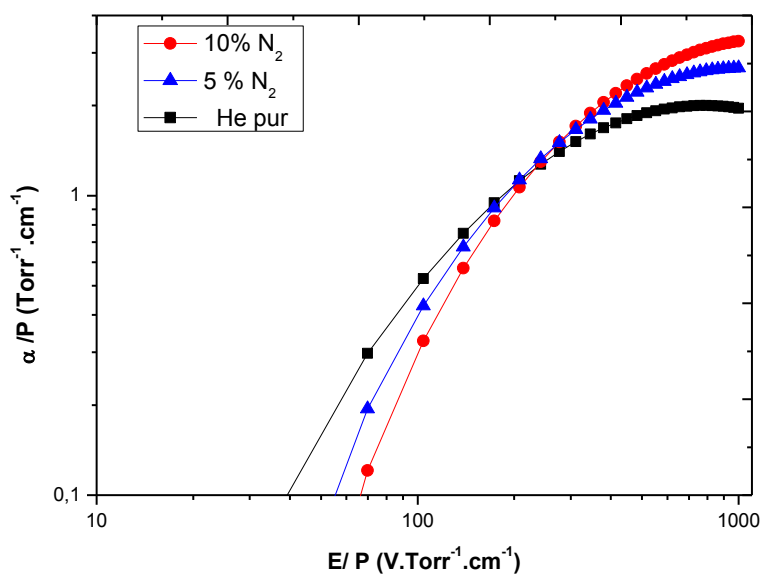
Le coefficient d'ionisation augmente avec le champ réduit et commence à saturer pour  $E/P > 300 \text{ V} \cdot \text{Torr}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$



**Figure IV.8 :** Variation de  $\alpha/P$  en fonction du champ réduit  $E/P$  pour l'hélium et les deux mélanges suivants :  $CO_2(10\%) - He(90\%)$ ,  $CO_2(5\%) - He(95\%)$



**Figure IV.9 –** Variation de  $\alpha/P$  en fonction du champ réduit  $E/P$  pour l'hélium et les deux mélanges suivants :  $Ar(10\%) - He(90\%)$ ,  $Ar(5\%) - He(95\%)$



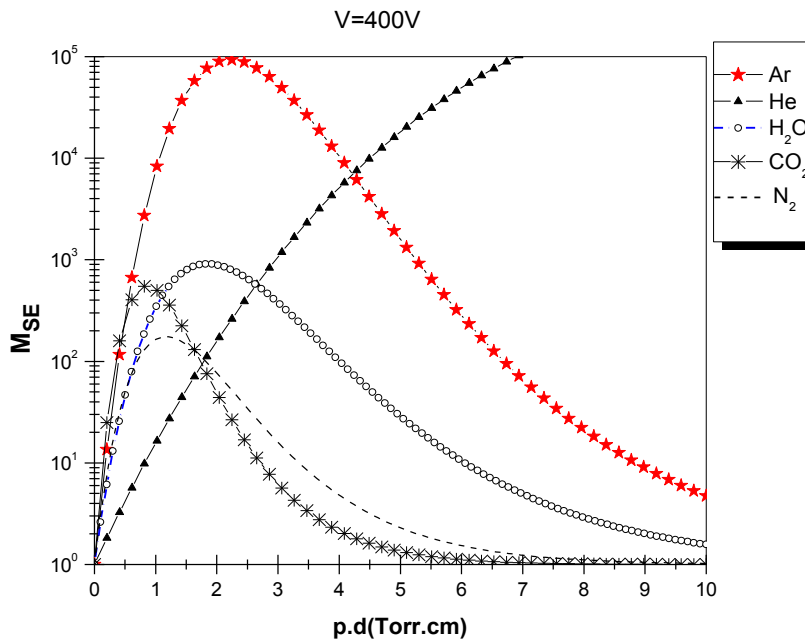
**Figure IV.10 :** Variation de  $\alpha/P$  en fonction du champ réduit  $E/P$  pour l'hélium et les deux mélanges  $N_2(10\%) - He(90\%)$ ,  $N_2(5\%) - He(95\%)$

Les figures IV.8, IV.9, et IV.10 montrent la variation des coefficients de Townsend réduit en fonction du champ électrique réduit  $E/P$ , pour deux mélanges de 5% et de 10% de  $\text{CO}_2$ , Ar et  $\text{N}_2$ . Il est utile de noter les différences de comportement quand on introduit chacun des gaz quencheurs. En effet, pour  $\text{CO}_2$  et  $\text{N}_2$ , il existe 2 domaines distincts de  $E/P$  : pour  $E/P < 300 \text{ V.Torr}^{-1}.\text{cm}^{-1}$ , le coefficient réduit est diminué, surtout avec  $\text{N}_2$  (Fig. IV.10). Ce n'est qu'au-delà de cette valeur de  $E/P$  que l'effet bénéfique du quencheur se manifeste par l'augmentation du coefficient d'ionisation réduit. Avec l'argon, le coefficient réduit est augmenté pour toute valeur de  $E/P$  (Fig. IV.9). Nous concluons d'après toutes les courbes des coefficients d'ionisation précédentes que le coefficient d'ionisation réduit varie en fonction de champ appliqué, du gaz utilisé et aussi de pourcentage gazeux. Cette variation dépend de la section efficace de collisions qui varie fortement avec le champ.

### **IV. 3 ÉTUDE DU GAIN DANS LES MELANGES D'HELIUM:**

Comme il apparaît sur les figures IV.1 et IV.6, il est possible d'élever le coefficient d'ionisation de l'hélium en augmentant le paramètre  $Pd$  et l'on pourrait donc se suffire de ce gaz. Cependant, et pour ne pas atteindre le régime de claquage qui peut s'avérer destructif, on utilise les mélanges gazeux. Dans un mélange gazeux, un atome A excité peut transférer son énergie à un atome B dont le potentiel d'ionisation est plus faible. Les gaz (additifs) proposés sont le  $\text{CO}_2$ , Ar,  $\text{N}_2$  et  $\text{H}_2\text{O}$ , gaz sont souvent utilisés dans un MEBE. L'objectif de cette partie est d'analyser les propriétés de gain de différents mélanges gazeux afin de trouver un mélange optimum qui intègre les différentes contraintes associées à une bonne efficacité du GSED.

#### **IV. 3.1 Cas des gaz purs :**

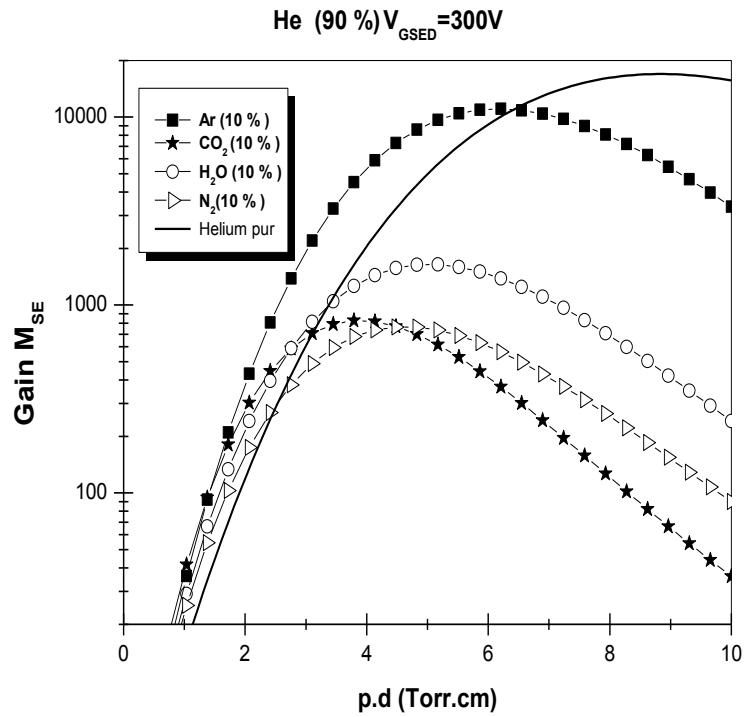


**Figure IV .11:** Comparaison du gain en fonction du produit  $p.d$  pour les gaz purs Ar, He,  $N_2$  et  $H_2O$  et pour une tension de 400V .

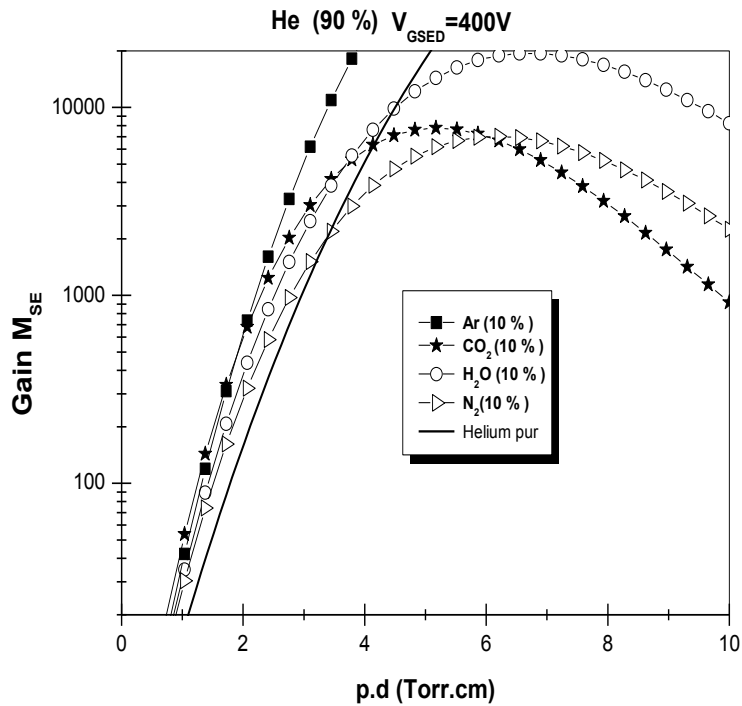
La figure IV.11 présente les propriétés de gain en fonction de P.d pour une tension de 400V, et pour différents gaz rares (He, Ar) et gaz moléculaires  $H_2O$ ,  $CO_2$  et  $N_2$ . Deux gaz se distinguent des autres : L’argon et l’hélium. L’argon, présente un gain maximum de  $10^5$  aux alentours de 3 Torr et pour une distance de travail de 1cm. La courbe de l’hélium ne présente pas un maximum dans cet intervalle. Pour des raisons de stabilité du gain, il est préférable de se placer sur un maximum de la courbe gain, même si ce n’est pas une obligation.

### IV.3.2 Cas des mélanges gazeux :

#### IV.3.2.1 Mélanges 90% (He)- 10 % (X) :



*Figure. IV .12: Variation du gain en fonction du produit  $p.d$  pour les différents mélanges à (90%) d'hélium. et pour une tension de 300V*



*Figure. IV .13: Variation du gain en fonction du produit  $p.d$  pour les différents mélanges à (90%) d'hélium et pour une tension de 400V*

### IV.3.2.2 Mélanges 95% (He)- 5 % (X) :

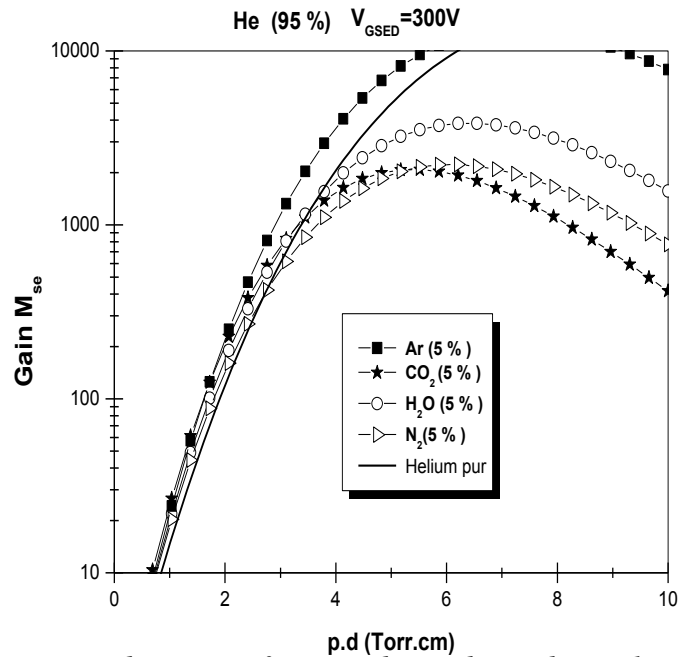


Figure. IV .14 Variation du gain en fonction du produit  $p.d$  pour les différents mélanges à 95% d'hélium et pour une tension de 300V

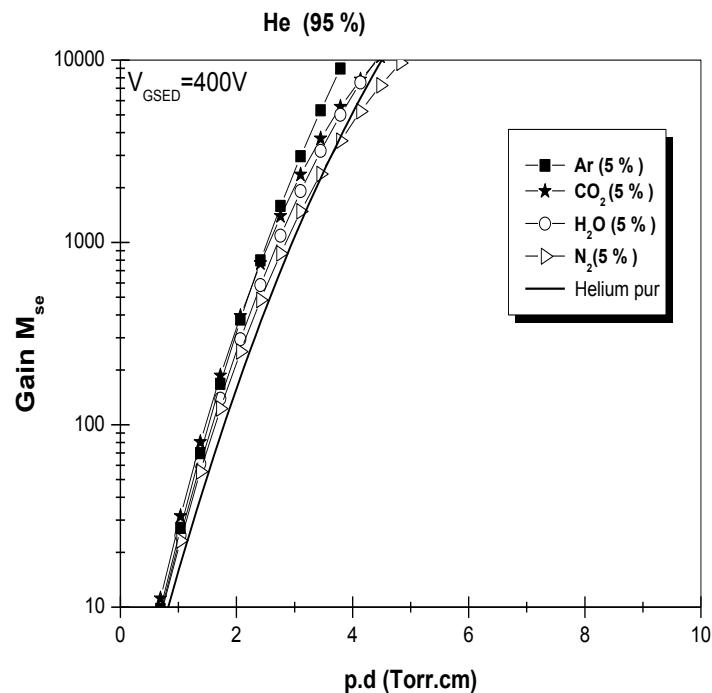


Figure. IV .15 :Variation du gain en fonction du produit  $p.d$  pour les différents mélanges à 95% d'hélium et pour une tension de 400V.

Les figures IV.12 à IV.15 présentent le gain d'amplification pour différents quencher associés au gaz porteur hélium. Ces courbes présentent deux régimes en Pd. Un régime de faible Pd où le gain est amélioré par l'introduction du quencher et un régime de fort Pd où il

est au contraire diminué et où le quencher n'est pas bénéfique. Pour des mélanges à 90% He et à 300V, la frontière entre ces deux régimes varie de 2 Torr.cm pour le CO<sub>2</sub> à 6 Torr pour l'argon. (figure IV.12). Concernant le mélange de 95 % d'hélium, mis à part pour l'argon à 300V, le gain est presque invariant à pression constante, à faible pd. Quand on augmente la tension à 400V, les courbes sont confondues (figures IV.14), le quencher n'a que peu d'influence sur le gain. La procédure recommandée pour optimiser les images en ESEM est de minimiser l'élargissement du faisceau primaire dans le gaz en minimisant le produit P×d même si le gain est comparable et de maximiser le signal en augmentant la polarisation de l'anode V<sub>GSED</sub> (Thiel, 2004b).

#### IV.3.2.2. Comparaison entre les différents mélanges de gaz :

A partir des courbes précédentes, nous avons regroupé sur la figure (V.16-18) les courbes donnant la variation du gain en fonction de la distance de travail pour les mélanges de gaz aux deux compositions étudiées (10 % et 5% de gaz dans He).

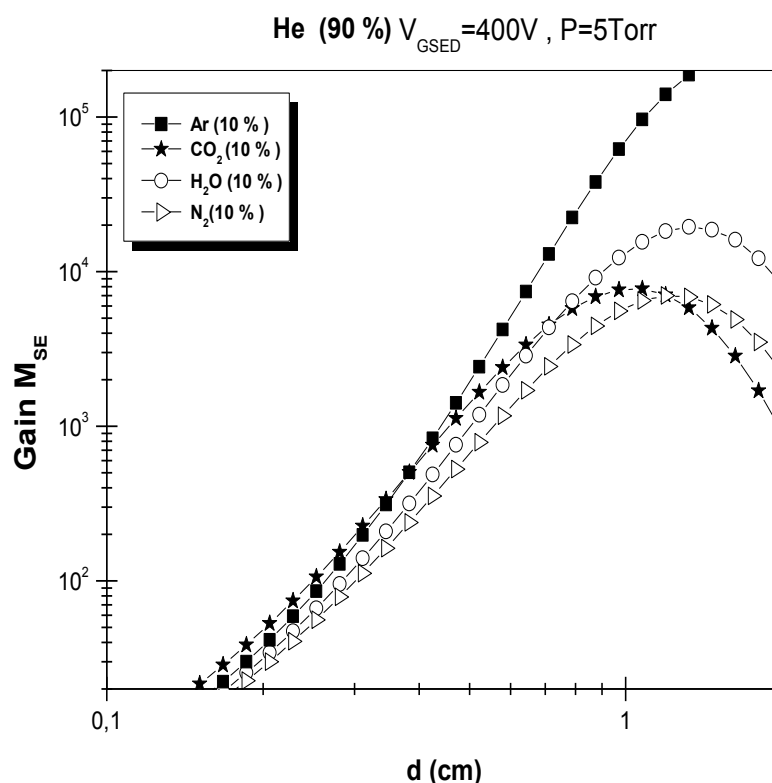
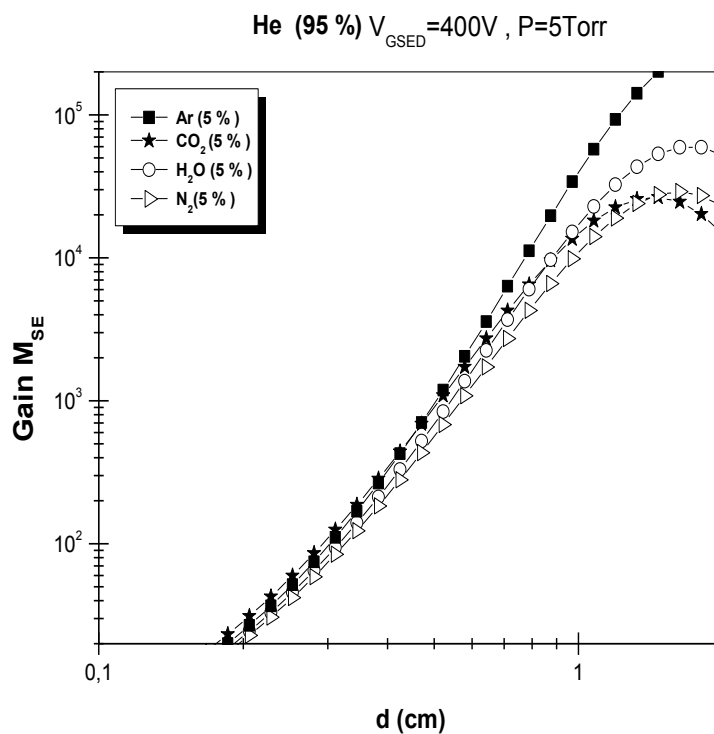
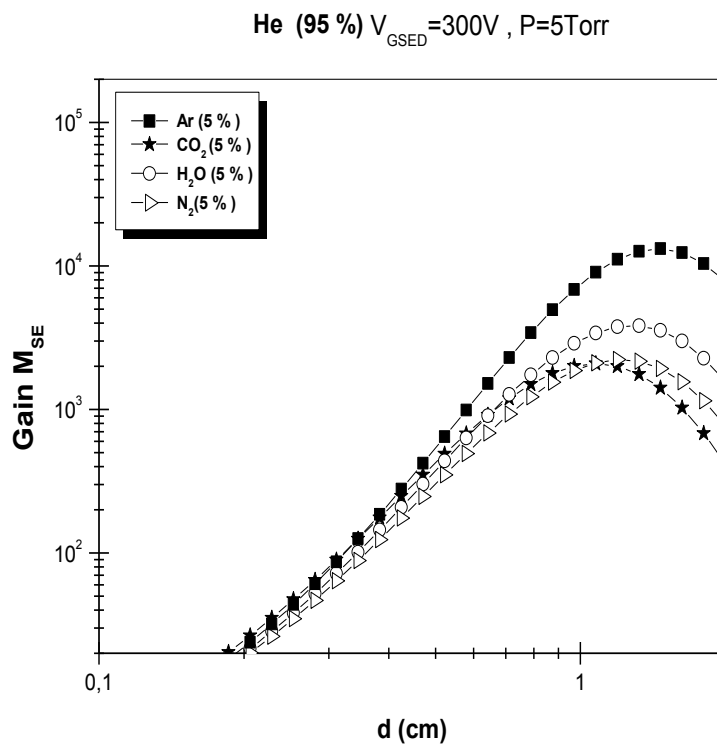


Figure. IV.16 : Variation du gain en fonction de la de la distance de travail pour différents mélanges gazeux à base d'hélium (90 %).





*Figure. IV.17: Variation du gain en fonction de la de la distance de travail pour différents mélanges gazeux à base d'hélium (95 %).*

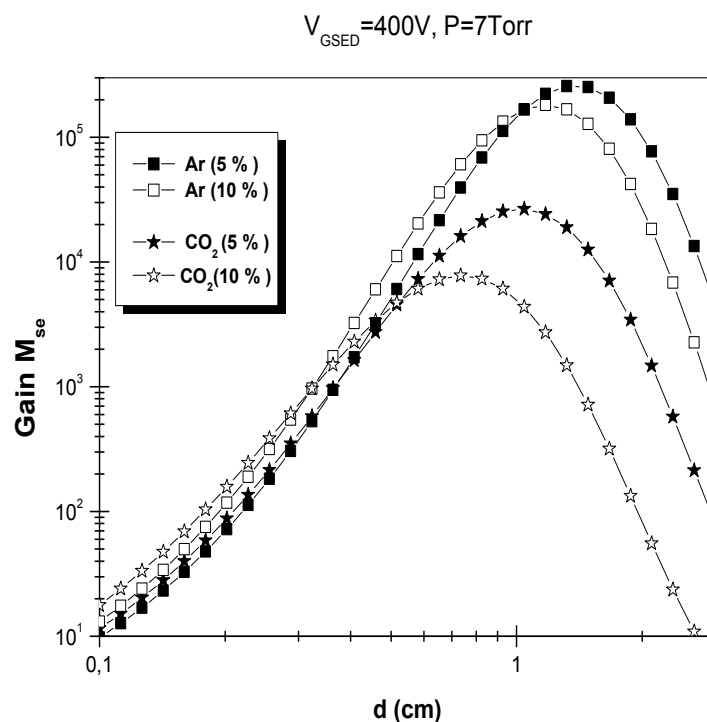


*Figure. IV.18: Variation du gain en fonction de la de la distance de travail pour différents mélanges gazeux à base d'hélium (95 %).  $V = 300\text{V}$*

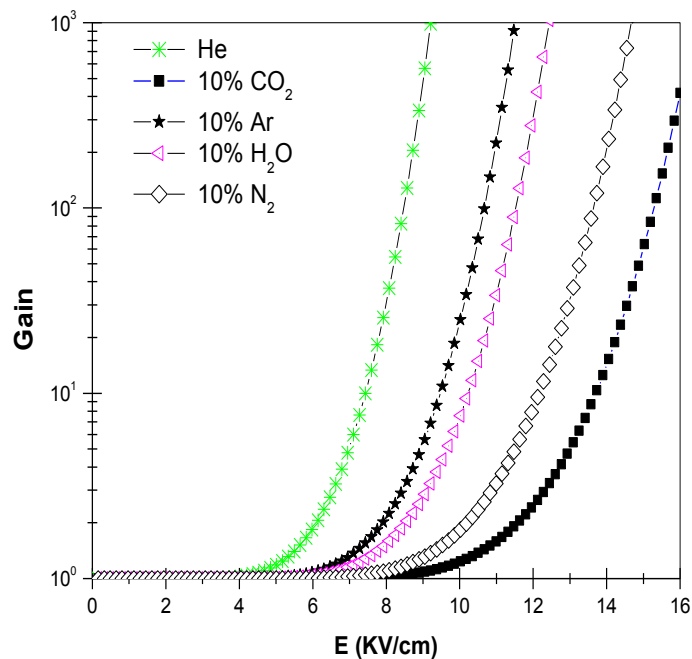
Pour les mélanges 90%-10%, et pour une distance inférieure à 10 mm nous constatons que l'augmentation de la distance entraîne l'augmentation du gain et que l'augmentation de la concentration de (90% He) à (95% He) minimise le gain. Par contre le gain maximum qui apparaît au-delà de 10 mm, augmente avec l'augmentation de la concentration.

Pour le mélange à base d'argon **He-Ar** nous remarquons que les deux concentrations donnent presque le même gain. Pour une distance  $d < 7$  mm les courbes de gain **He-Ar** 95%-5%, sont comparables aux autres mélanges. Ceci est dû à la stabilité de la vitesse de dérive dans ces conditions de pression et de tension, contrairement au mélange de 90 % où on remarque deux régions bien distinctes.

Ainsi pour le mélange He-Ar 90%-10%, la figure IV.19 montre que le maximum de gain est invariant en changeant la concentration. Par contre pour le He-CO<sub>2</sub> ce maximum diminue avec l'augmentation de la concentration du gaz additif utilisé.



*Figure. IV.19: Variation du gain en fonction de la de la distance de travail pour différents mélanges gazeux à base d'hélium.*



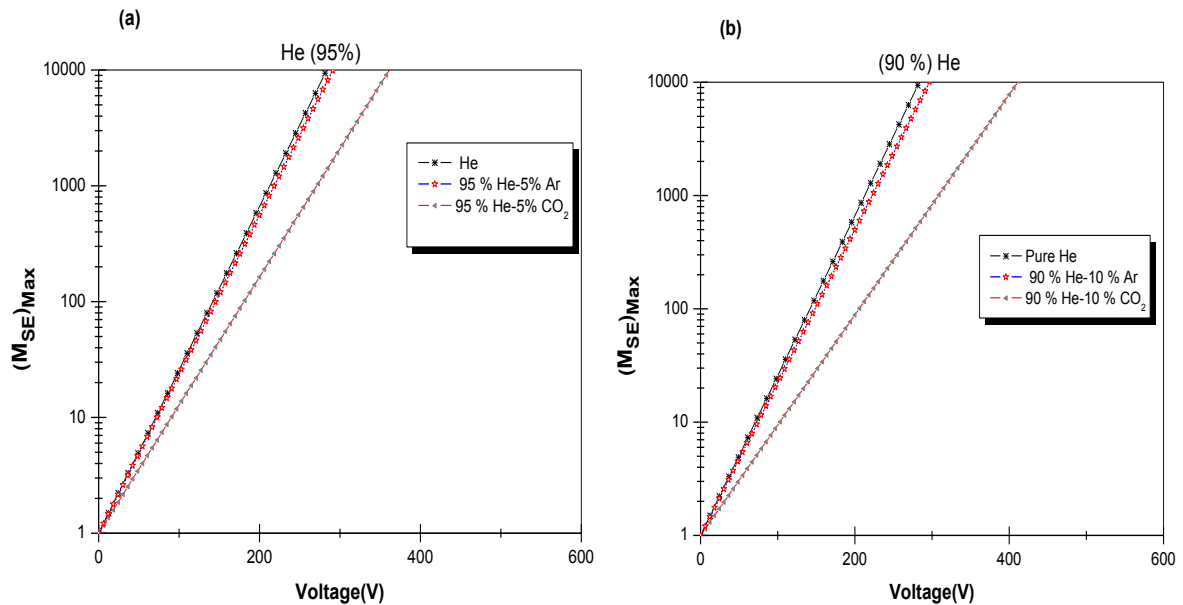
**Figure. IV .20:** Variation du gain en fonction de la tension pour différentes valeurs de Pd différents mélanges à (90% ) d'hélium.

En comparant les mélanges à 10%, (figure IV.20) on constate que pour obtenir des gains comparables, il est nécessaire d'avoir des champs d'amplification beaucoup plus élevés pour le mélange comportant le CO<sub>2</sub> comparé au autres mélanges. Ceci dénote que le CO<sub>2</sub> est un excellent gaz quancheur qui limite plus efficacement le développement de l'avalanche.

L'optimisation du mélange gazeux en fonction des paramètres ci-dessus est un élément très important dans la détection. Par exemple si on travaille à fort champs l'attachement n'est pas souhaité car il influe sur le gain. Le processus d'attachement est un comportement opposé à l'ionisation: il s'agit de la capture d'un électron par les molécules de gaz, ce qui conduit à la création d'un ion négatif. Le taux d'attachement est nul pour les gaz nobles et l'hydrogène, tandis que pour les gaz halogènes et l'oxygène, il atteint ses valeurs les plus élevées. De ce fait les mélanges **He-Ar** et **He-CO<sub>2</sub>** peuvent être bénéfiques.

#### IV. 3.4 Calcul du gain maximum :

Le gain maximal est une fonction exponentielle de la tension de l'anode.



**Figure IV.21:** Variation du gain max en fonction la tension, et de la nature du quencher pour une concentration de quencher de (a) 5%. (b) 10 %.

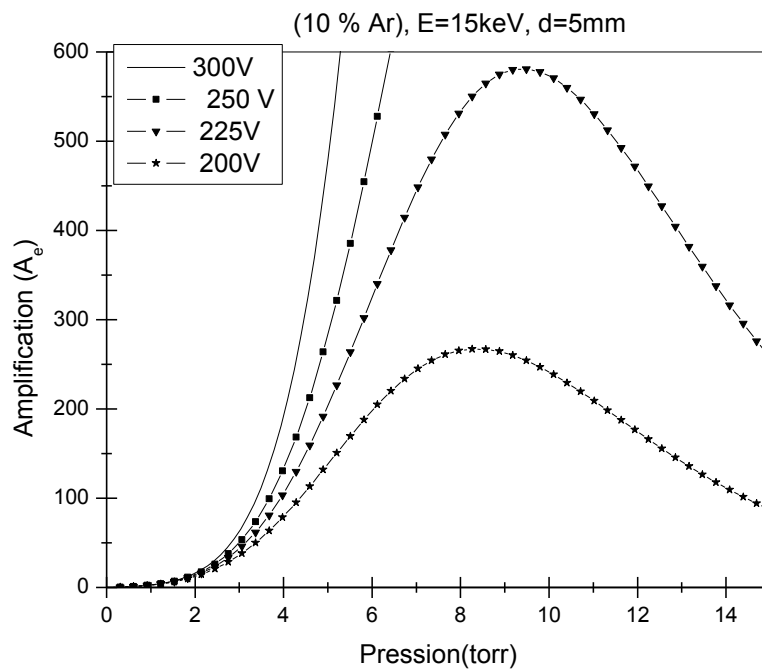
Les figures IV.21 (a) et (b) illustrent les variations du gain maximal en fonction de la tension de l'électrode et de la nature du quencher pour le gaz porteur Hélium 95% (a) et 90% (b). Pour le même pourcentage de 95% He, l'ajout de l'Argon augmente légèrement le gain maximum par rapport à l'ajout de CO<sub>2</sub>. Par ailleurs, Un même gain maximal est atteint pour des tensions moins élevées avec un mélange à 95% qu'avec un mélange à 90%.

#### IV. 4. AMPLIFICATION PAR LE GAZ ET SIGNAUX SPÉCIFIQUES AUX GSED:

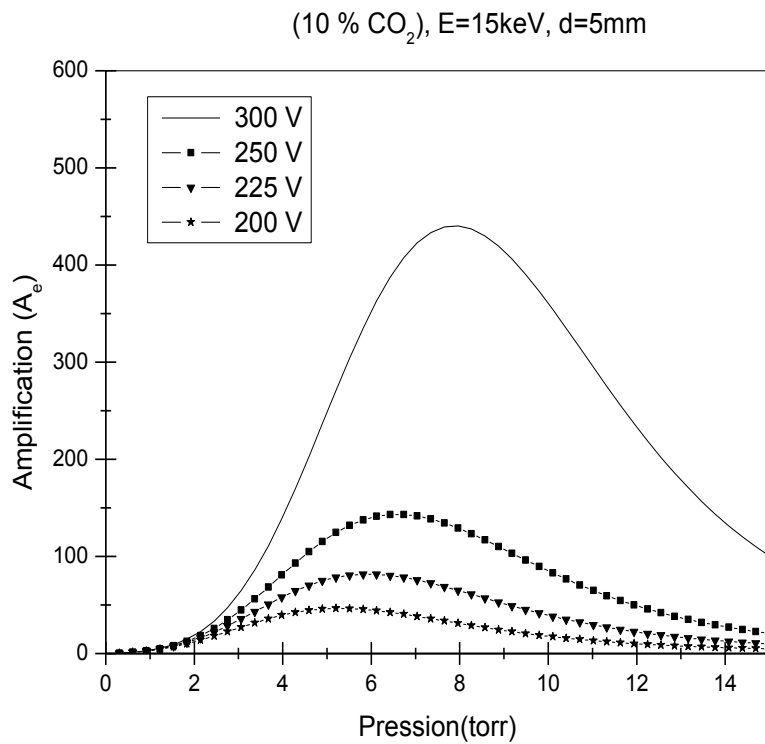
##### IV.4.1. Amplification par effet cascade sous un champ électrique constant:

###### IV.4.1.1.Variation de l'amplification électronique ( $A_e$ ) en fonction de la tension:

Les figures IV.22 et IV.23 représentent l'amplification électronique totale pour He-Ar et He-CO<sub>2</sub> en fonction de la pression et en fonction de la tension de polarisation de l'électrode appliquée. La pression à laquelle le gain maximal se produit est proportionnelle au champ électrique avec:  $P_{max} = V_{GSED} / d.B$  (Tileli et al, 2009). **B** : La constante du gaz.



**Figure IV.22:** Amplification électronique en fonction la pression et pour différentes tension, dans He-Ar

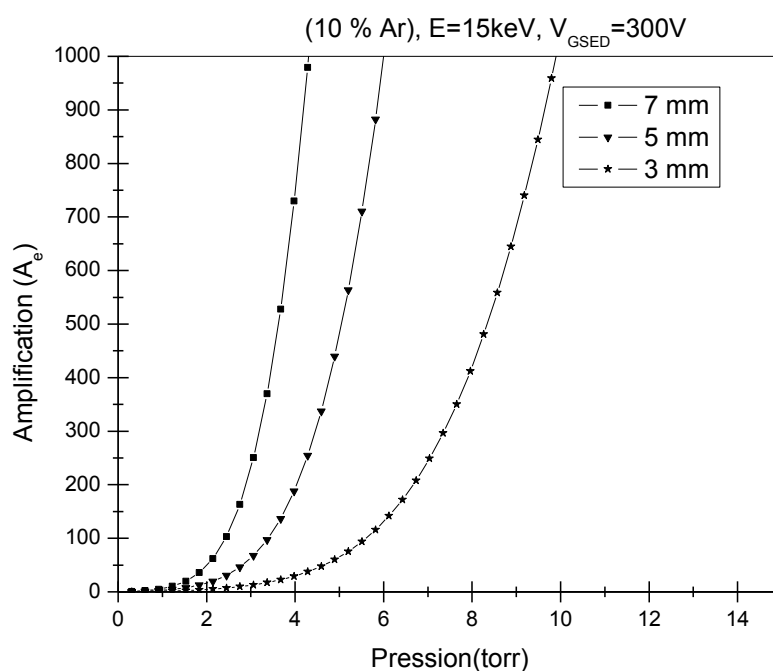


**Figure IV.23:** Amplification électronique en fonction la tension, pour He-CO<sub>2</sub>, et pour une distance de travail d=5mm.

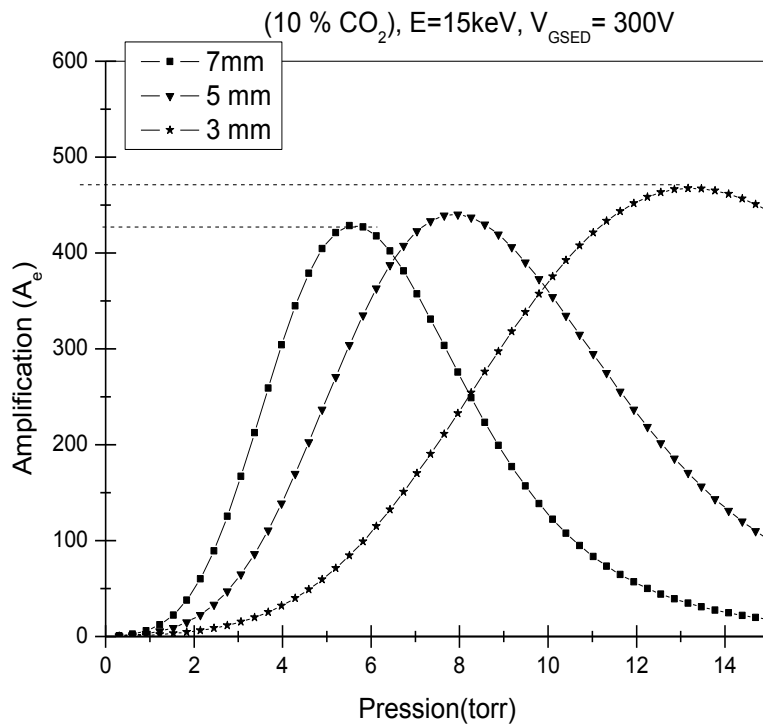
L'amplification augmente en fonction de la pression, cette augmentation est rapide et plus importante pour He-Ar que pour He-CO<sub>2</sub>. L'augmentation de la tension a pour effet d'augmenter rapidement l'ionisation. ( fig.IV.23).

#### IV.4.1.2.Variation de l'amplification électronique ( $A_e$ ) en fonction de la distance :

Afin d'étudier l'influence de la distance de travail, nous avons repris les calculs en fonction de la distance entre l'électrode et l'échantillon. Pour une augmentation de la distance, le nombre de collision augmente donc l'ionisation augmente aussi ( figs.IV. 24 et IV. 25).

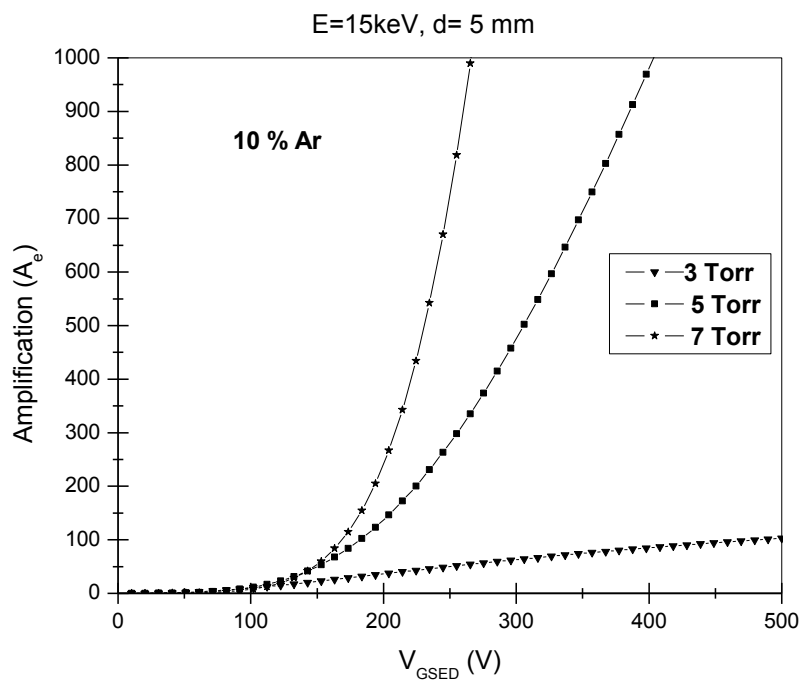


**Figure IV.24:** Amplification électronique en fonction la distance de travail, pour He-Ar, et pour une tension  $V_{GSED}=300V$

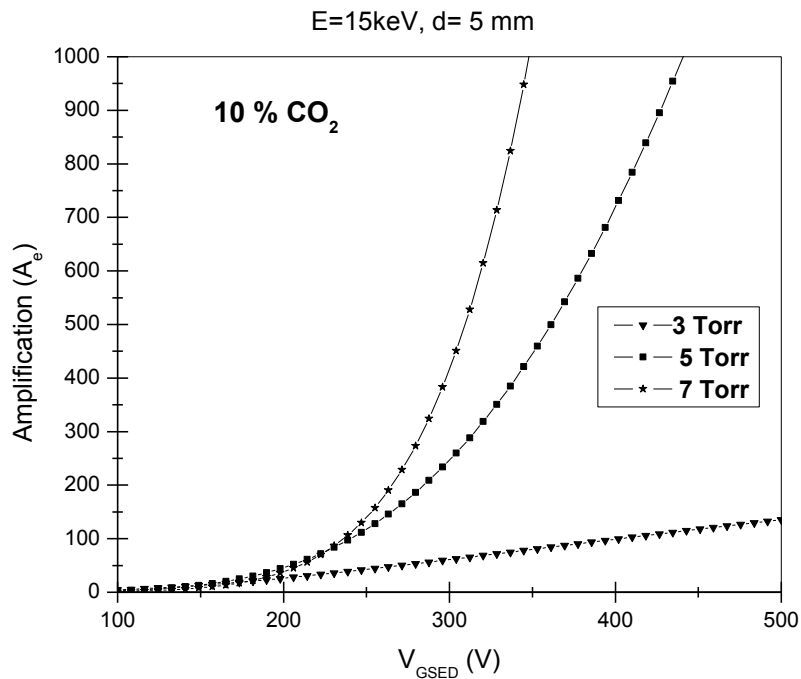


**Figure IV.25:** Amplification électronique en fonction la distance de travail, pour He-CO<sub>2</sub>, et pour une tension V<sub>GSED</sub>=300V.

**IV.4.1.3. Variation de l'amplification électronique (A<sub>e</sub>) en fonction de la pression:**



**Figure IV.26:** Amplification électronique en fonction la distance de la tension, et différentes pressions pour He-Ar.



**Figure IV.27:** Amplification électronique en fonction la distance de la tension, et différentes pressions pour He-CO<sub>2</sub>.

Les résultats montrent qu'une plus forte polarisation du détecteur *GSED* conduit à une augmentation de l'amplification et déplace le maximum d'amplification vers les plus hautes pressions. Si on augmente la distance échantillon-détecteur, on diminue l'intensité du champ électrique et donc l'efficacité d'ionisation et le nombre d'électrons émis par l'échantillon.

Ces figures (*IV.26 et IV.27*) montrent bien que pour une pression constante et une distance ( $d$ ),  $A_e$  a une dépendance exponentielle en fonction de  $V_{GSED}$ . Augmenter  $V_{GSED}$  c'est augmenté l'énergie cinétique des électrons donc augmenter le nombre de collisions ionisantes qui augmente l'amplification.

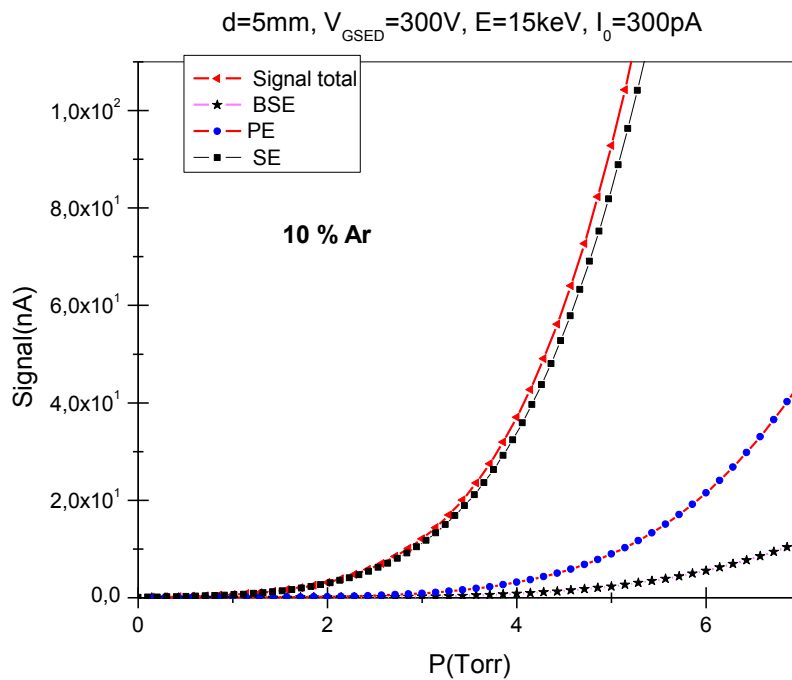
#### **IV.4.2. Calcul des signaux détecté par le GSED:**

##### **IV.4.2.1 Contribution des différentes sources :**

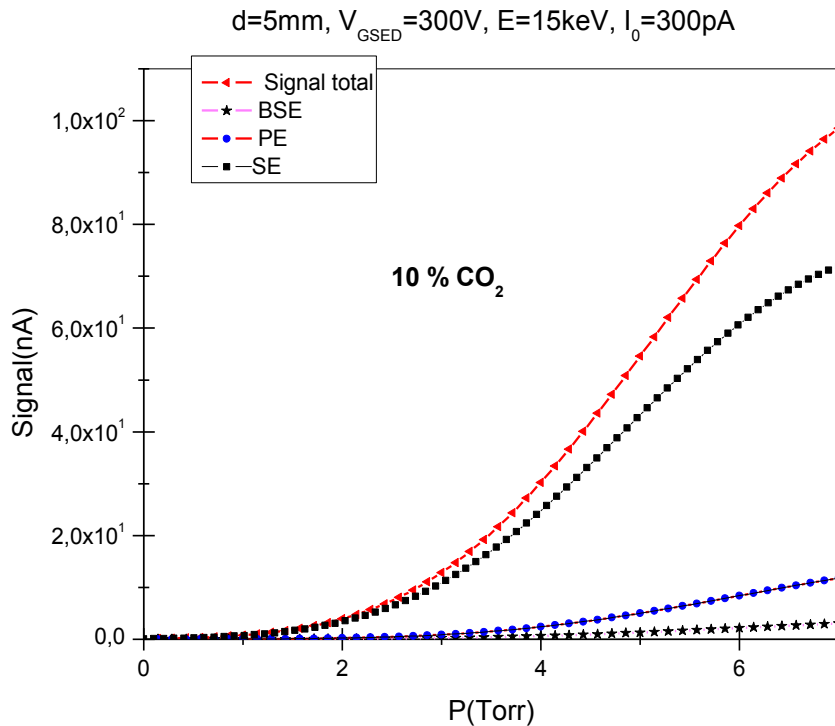
Puisque le signal collecté provient essentiellement de l'ionisation des électrons secondaires (de plus faibles énergies), car ces électrons sont sensibles à l'effet de cascade



mais ce n'est pas pour autant qu'ils sont les seuls à contribuer (voir chapitre III). Nous présentons dans ce paragraphe les résultats de la contribution des différentes sources au signal amplifié en fonction de la pression et pour différents mélanges. Ces résultats sont représentés dans les graphes suivants :



**Figure IV.28:** Contribution des différentes sources au signal amplifié en fonction de la pression, pour He-Ar (SE : signal utile, PE : signal amplifié des électrons secondaires créés par le faisceau primaire non diffusé, BSE : signal amplifié des électrons secondaires créés par les électrons rétrodiffusés)

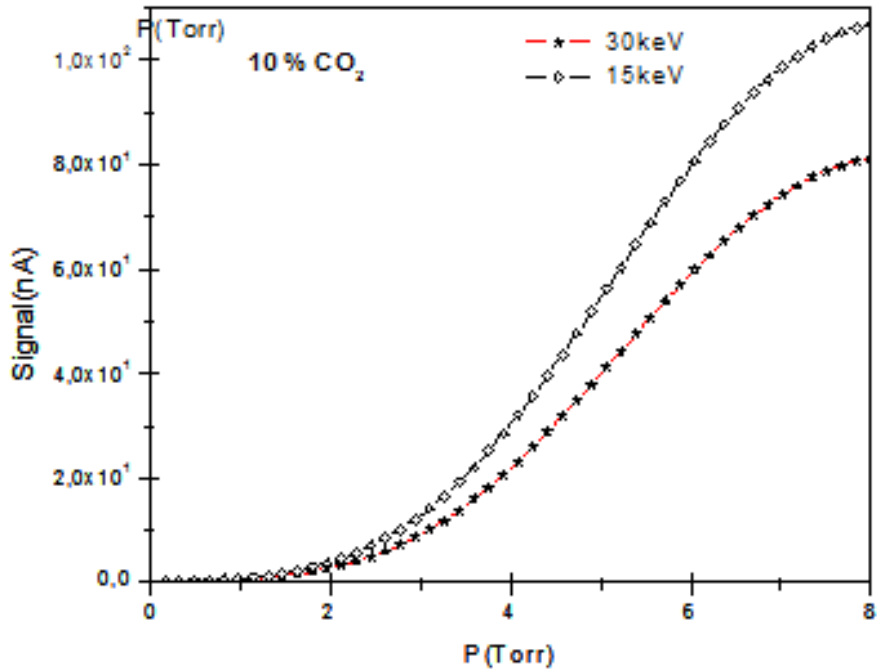


**Figure IV.29:** Contribution des différents sources au signal amplifié en fonction de la pression, pour He-CO<sub>2</sub>.

Les figures VI.28 et VI.29 montrent qu'à basse pression (1-2 Torr) la contribution est négligeable. Pour des pressions (2-3 Torr), le signal He- CO<sub>2</sub> utile est réduit plus que celui de considéré He- Ar alors que la contribution des BSE au signal global est toujours relativement faible. Fletcher et al remarquent qu'à faible pression et pour la vapeur d'eau, l'image est principalement liée aux SE, alors qu'à des pressions plus élevées la contribution des électrons incidents (signal qui ne contient pas d'information) est majoritaire (Fletcher et al, 1997).

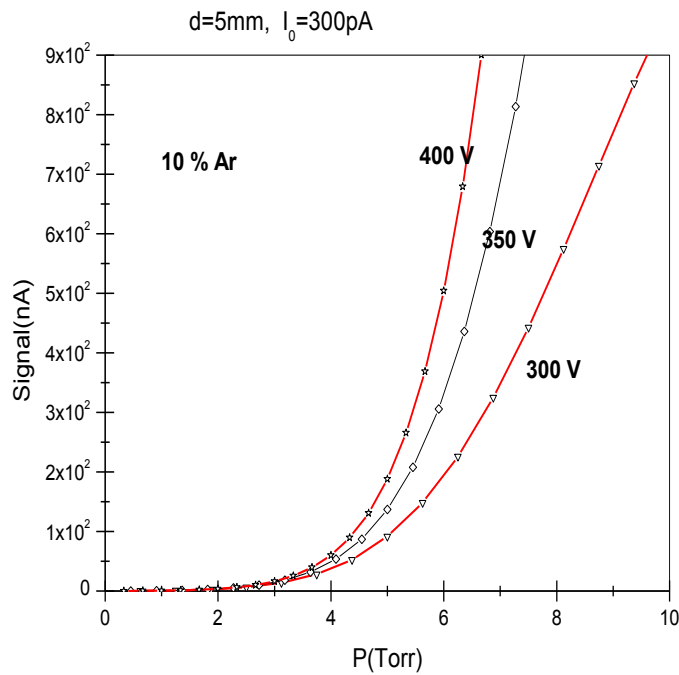
#### IV.4.2.2. Variation du signal collecté en fonction de l'énergie primaire :

Le changement des coefficients d'émission électronique secondaires et rétrodiffusés due au changement de l'énergie du faisceau primaire a un impact minimal (Tileli, 2009). Lorsque cette dernière est de l'ordre de 15keV, les principaux effets sont liés aux choix des conditions de travail tels que la pression, la distance de travail, le champ appliqué et la nature du gaz. En notant que les valeurs d'amplification et des signaux ont été déterminées pour un courant de 300 pA et pour une énergie de faisceaux primaires de 15keV (Figure IV.31).



**Figure IV.30:** Signal total en fonction de la pression pour différentes énergies He-CO<sub>2</sub>. Pour une énergie du faisceau primaire de 30 keV le signal diminue par rapport à 15eV et cette diminution est due à la diminution du coefficient d'émission électronique. Le signal total augmente à mesure que l'énergie du faisceau primaire est abaissée.

#### IV.4.2.2. Variation du signal collecté en fonction de la tension



**Figure IV.31:** Signal total en fonction de la pression pour différentes tension He-Ar.

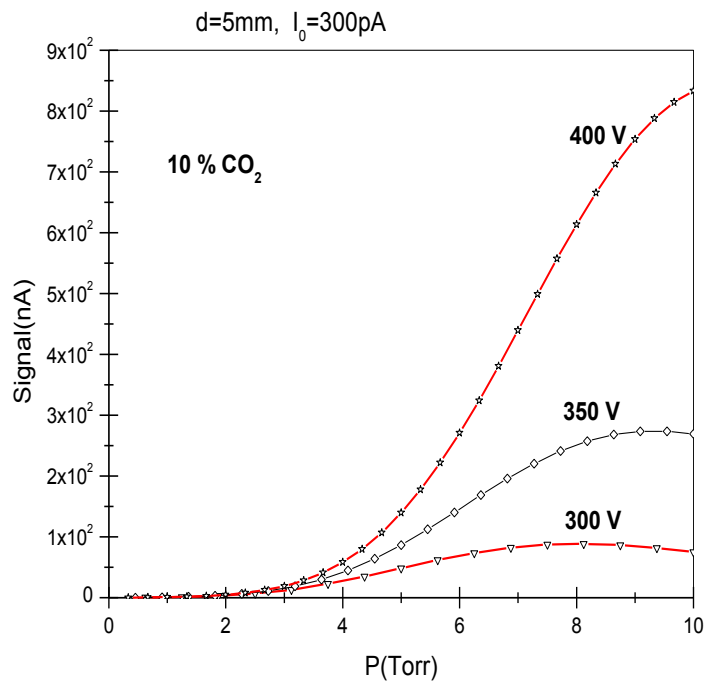


Figure IV.32: Signal total en fonction de la pression pour différentes tension He-CO<sub>2</sub>

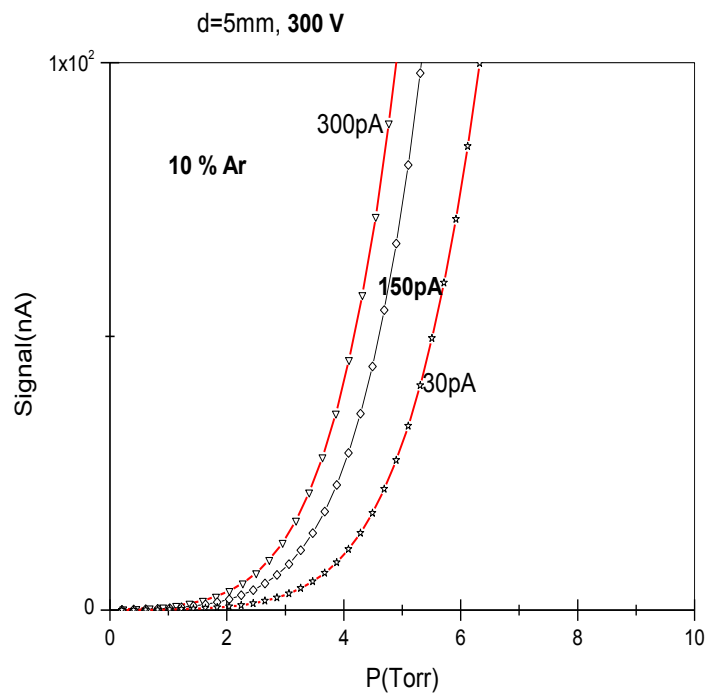
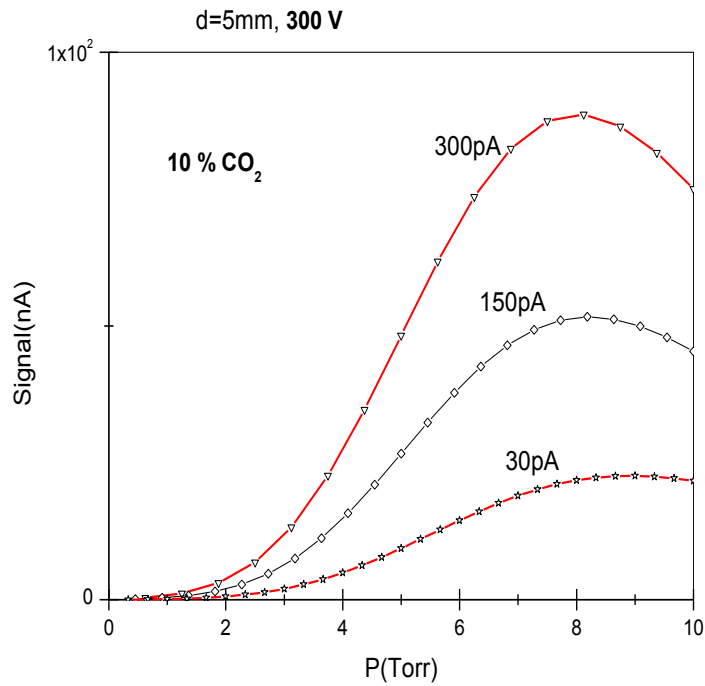


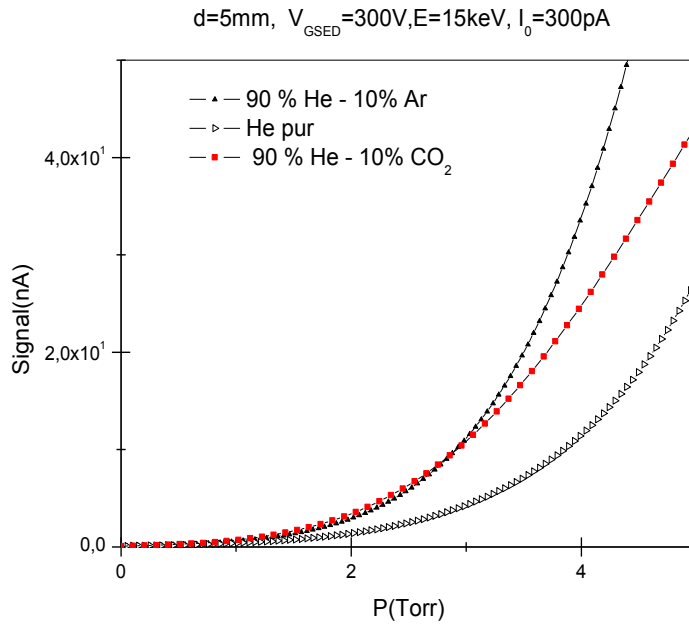
Figure IV.33: Signal total en fonction de la pression pour différents courants He-Ar.



**Figure IV.34:** Signal total en fonction de la pression pour différents courants He-CO<sub>2</sub>

Les figures *IV.31* à *IV.34*, montrent les signaux totaux obtenus pour différents courants, et pour les deux mélanges à base d'hélium (10 %Ar et 10 % CO<sub>2</sub>). Dans tous les cas Le signal total est proportionnel au courant incident. Le signal total augmente à mesure que La pression à laquelle le gain maximal se produit augmente.

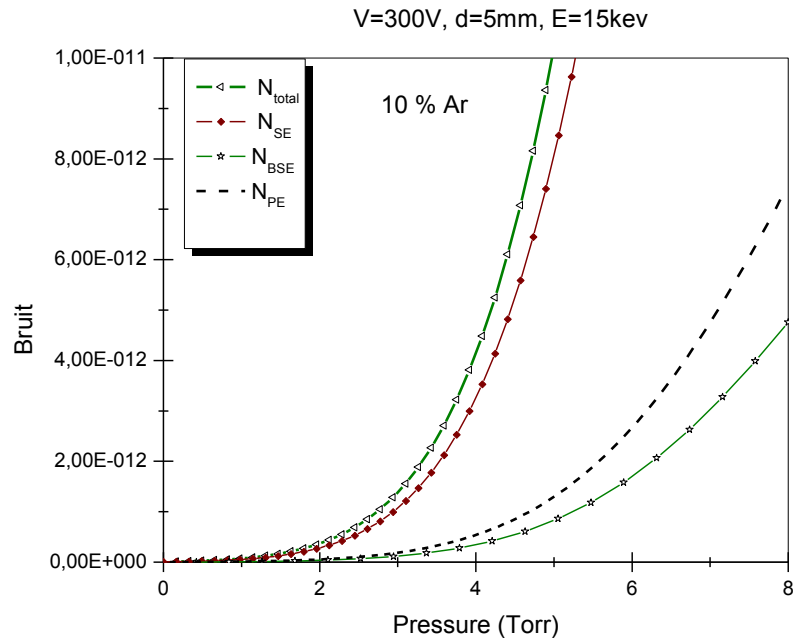
Sur la figure *IV.35*, on voit qu'au dessus de 4 Torr le signal des mélanges d'hélium augmente presque à 100% pour 10% de CO<sub>2</sub>, et plus de 110% pour 10% d'Ar par rapport à l'hélium pur.



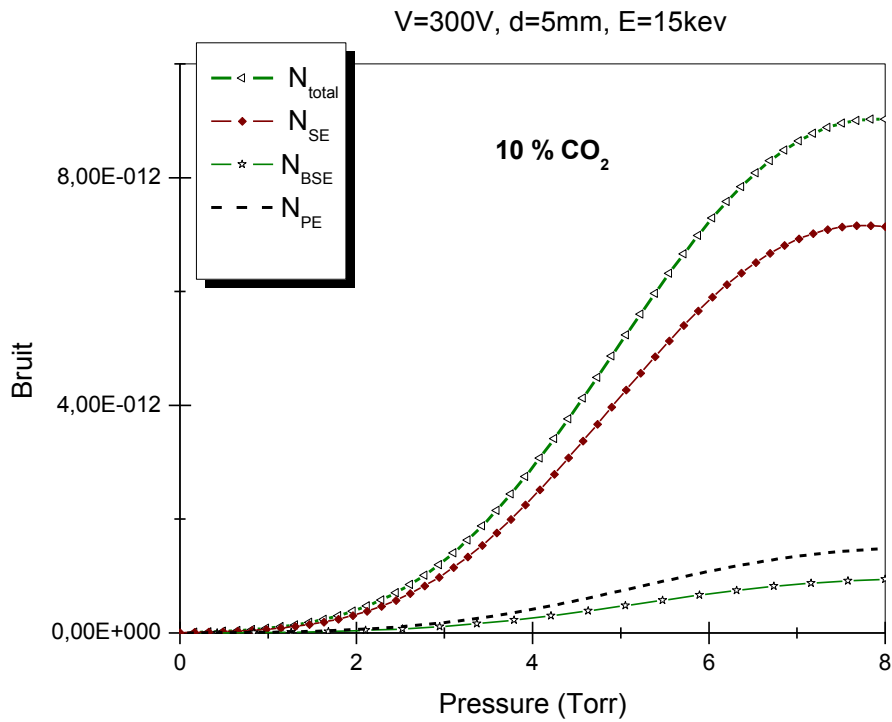
**Figure IV.35:** Signal total en fonction la pression, pour les deux mélanges (90%He-5%Ar), et (90%He-5%CO<sub>2</sub>) et l'hélium.

#### IV. 5. CALCUL DES COMPOSANTES DU BRUIT:

Pour commencer, nous rappelons que le courant total de la cascade atteignant le détecteur, tel que décrit par l'équation III.22 contient une partie du signal amplifié  $I_{\text{SE}}$  nécessaire pour l'imagerie et tout le reste est considéré comme un bruit de fond. En outre le signal effectif est défini par l'équation III.17. Tous les signaux amplifiés contribuent au bruit total, mais la contribution la plus prononcée à basse pression est celle des électrons secondaires issus de la cascade (voir figures IV.36. et IV.37 ):



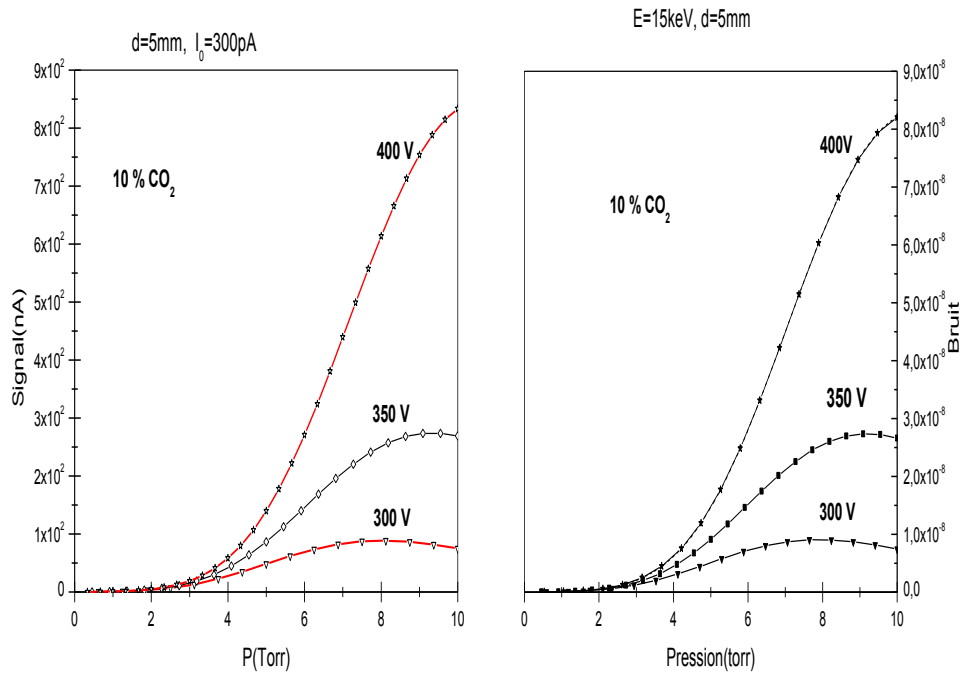
**Figure IV.36:** Composantes des bruit en fonction la pression, pour le mélange (90%He-10%Ar).



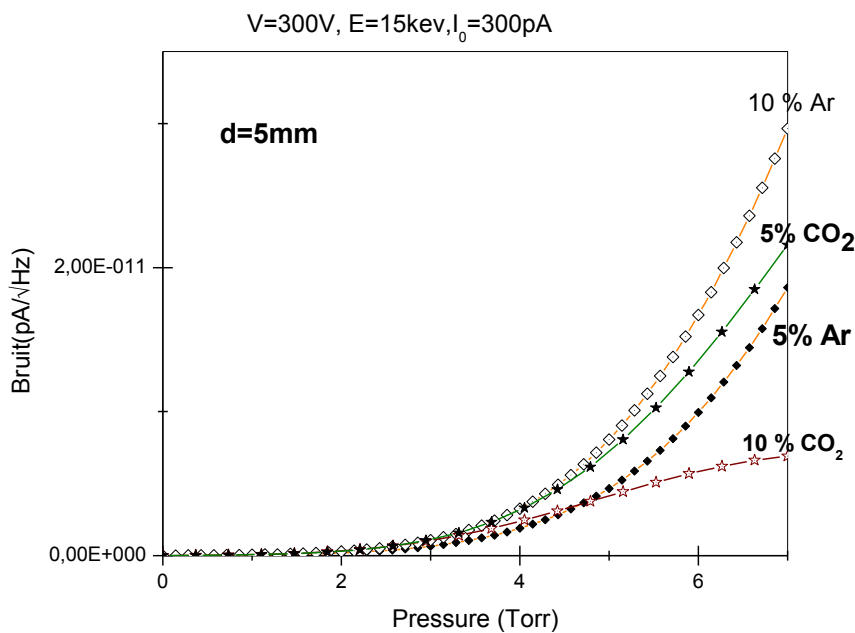
**Figure IV.37:** Composantes des bruit en fonction la pression, pour le mélange (90%He-10%CO<sub>2</sub>).

Le signal et le bruit présentent les mêmes caractéristiques. Le bruit suit le comportement du signal pour tous les mélanges de gaz. Le mélange He-CO<sub>2</sub> montre une valeur maximale tandis que He-Ar ne présente pas de valeur maximale.

La figure IV.38 montre que le signal et le bruit présentent les mêmes caractéristiques.

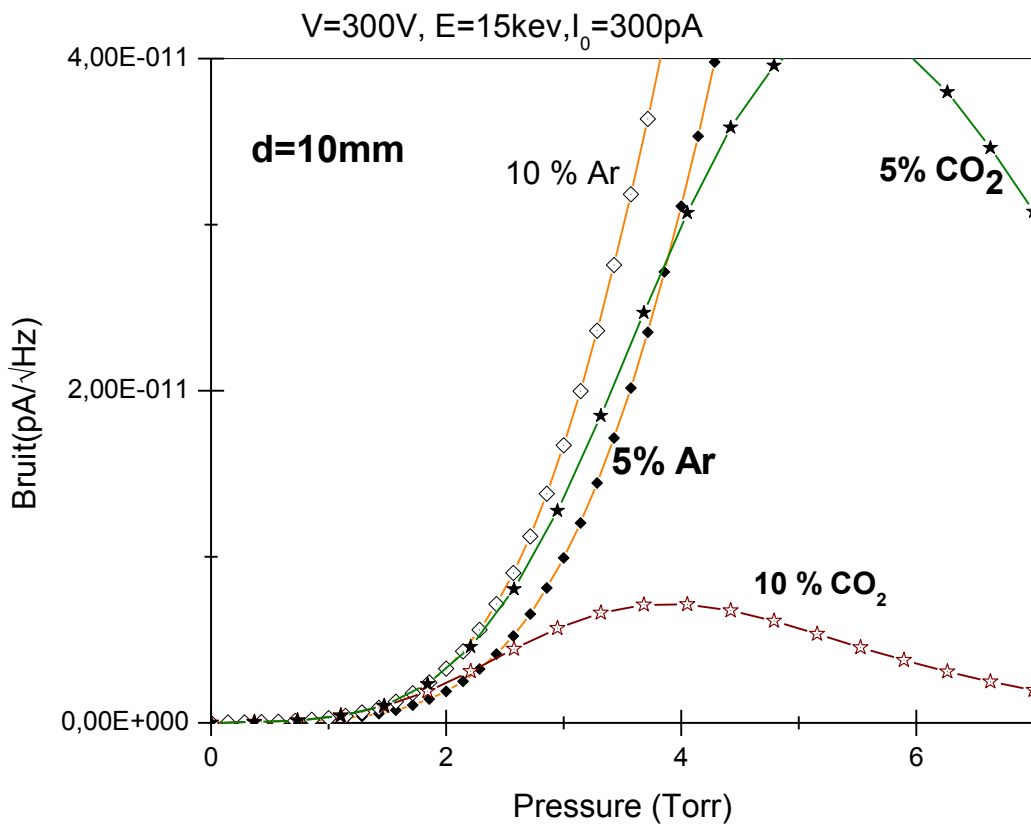


**Figure IV.38:** Comparaison entre le signal et le bruit en fonction la pression, pour le mélange (90%He-10%CO<sub>2</sub>), et pour différentes tensions.



**Figure IV.39:** Composante de bruit de la cascade en fonction la pression, pour les deux mélanges (90%He-5%Ar), et (90%He-5%CO<sub>2</sub>), et H<sub>2</sub>O.





**Figure IV.40:** Composante de bruit de la cascade en fonction la pression, pour les deux mélanges (90%He-5%Ar), et (90%He-5%CO<sub>2</sub>).et H<sub>2</sub>O.

Les figures IV.39 et IV.40 illustrent la composante individuelle N<sub>SE</sub> du bruit de la cascade en fonction de la pression, de la distance de travail, et pour les deux concentrations des mélange He- Ar et He- CO<sub>2</sub>. Pour une distance de travail de 10 mm il apparait clairement que l'augmentation de la pression entraîne une augmentation du bruit à partir de 2 Torr. Pour le mélange 10% CO<sub>2</sub>, la valeur maximal du bruit se déplace à basse pression presque de 7 Torr pour une distance de 5mm vers 4 Torr pour une distance de 10mm. Le bruit de 5% ( Ar) est inférieure de 10% Ar et continue d'augmenter tandis que celui de 5% CO<sub>2</sub> est supérieur à celui de 10% CO<sub>2</sub> pour la même distance de travail.

## IV.6 RESULTATS DE LA DIFFUSION PAR LES CALCULS MONTE CARLO:

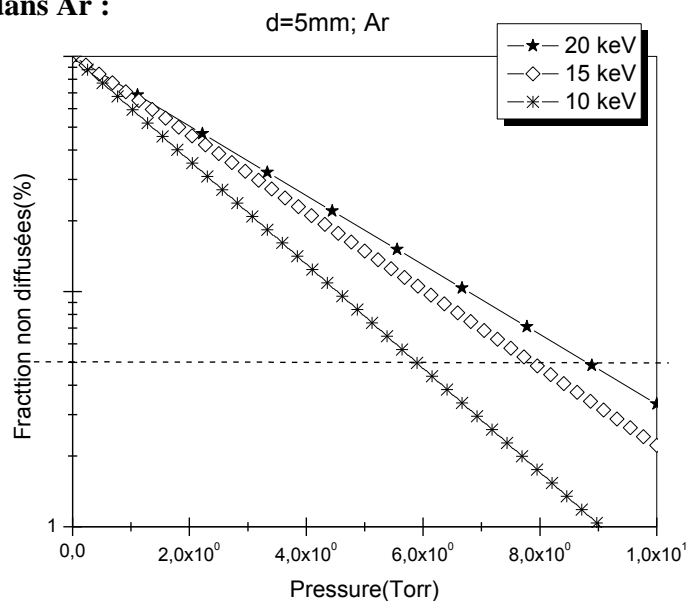
### IV.6.1 Calcul de la fraction des électrons non diffusés :

Après avoir effectué une étude sur l'ionisation de quelques environnements, notre choix est conditionné par la possibilité de réduire au maximum la diffusion. Nous choisissons les mélanges à base d'hélium He-Ar et He-CO<sub>2</sub> sur lequel nous allons mener notre étude.

#### IV.6.1.Effet de la pression, de l'énergie et la distance de travail:

Nous présentons dans ce paragraphe les résultats de la variation de la fraction des électrons non diffusés ou intensité relative  $I/I_0$ , en fonction de la pression et l'énergie, pour les deux gaz et le mélange ces résultats sont tracés dans les graphes suivants :

##### IV.6.1.1 Profil dans Ar :

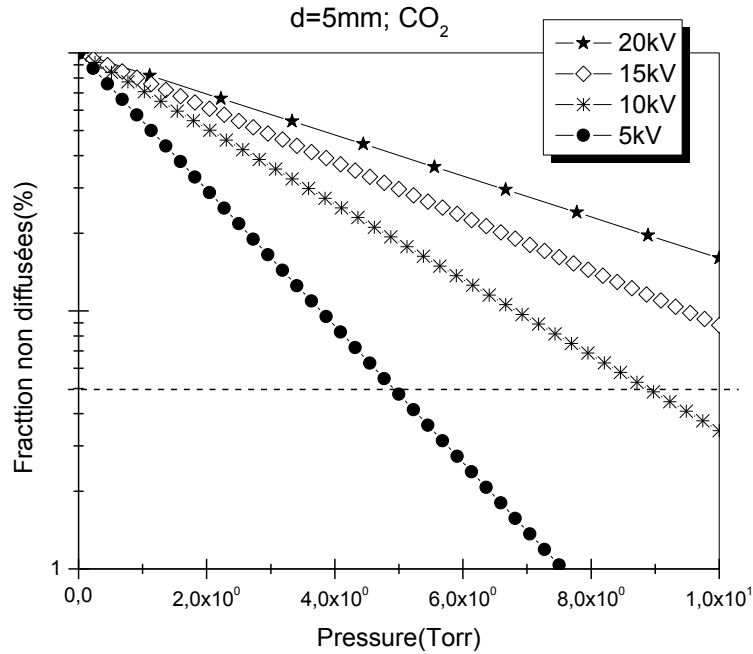


**Figure IV.41:** Fraction non diffusée du faisceau incident d'électrons en fonction de la pression du gaz, pour l'argon, et pour une distance de travail  $d=5\text{mm}$ .

Nous avons tracé sur les graphes de Ar et CO<sub>2</sub> une ligne horizontale à  $f_p = 5\%$  correspondant au minimum requis pour le signal restant. Ainsi on voit sur les figures IV.41, et IV.42, que pour le CO<sub>2</sub> et pour une basse tension (ici 5 keV) et une distance de travail de 5 mm (habituellement utilisée dans les ESEM), il faut une pression de travail inférieure à

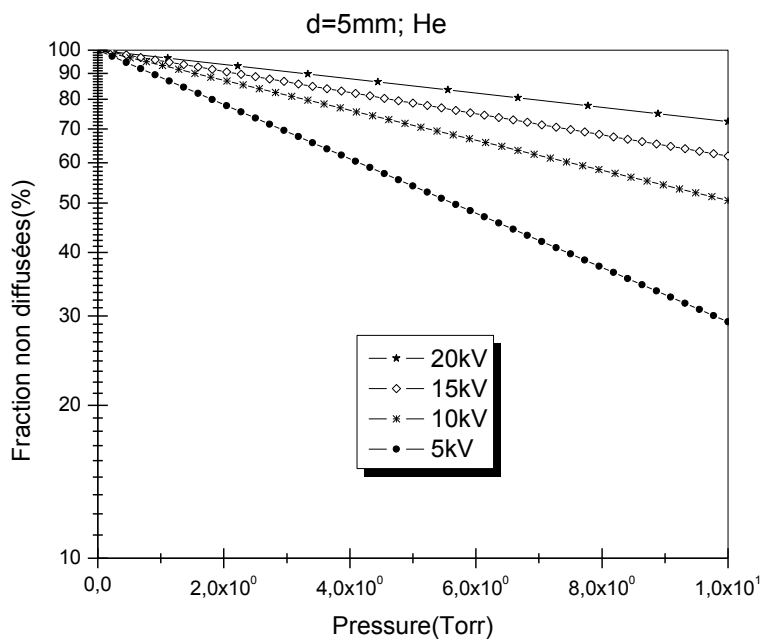
environ 2.5 Torr. Cette ligne horizontale n'est pas tracée pour He car ce gaz convient à toute pression et distance de travail dans les domaines étudiés (figure IV.43).

#### IV.6.1.2 Profil dans CO<sub>2</sub>:



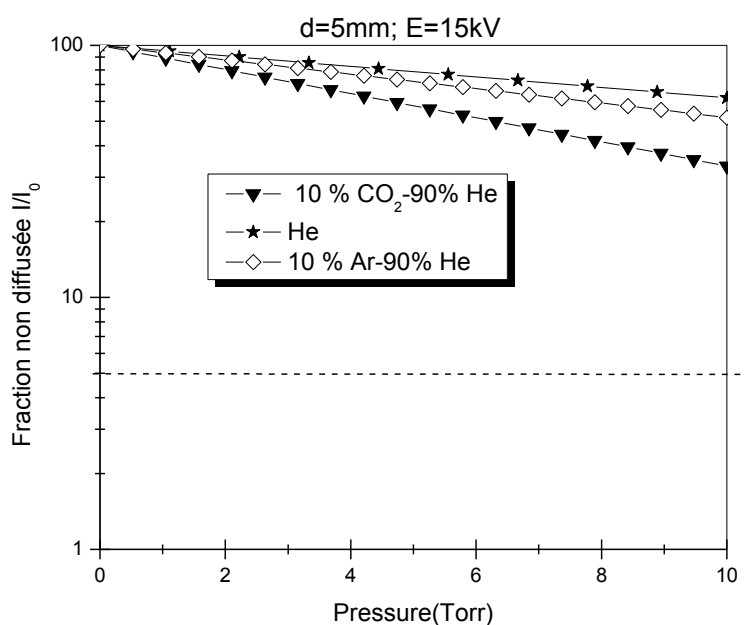
*Figure IV.42: Signal totale en fonction la tension, pour le CO<sub>2</sub>, et pour une distance de travail d=5mm.*

#### IV.6.1.2 Profil dans He:

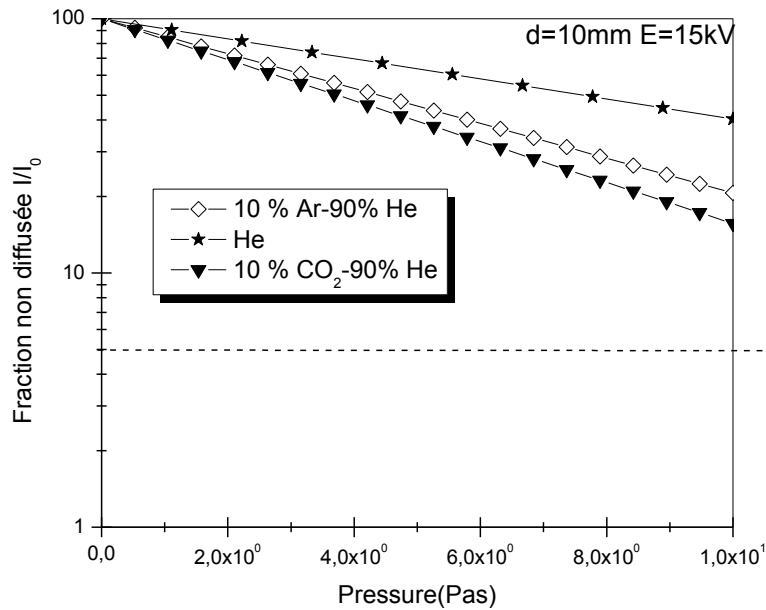


*Figure IV.43: Signal totale en fonction la tension, pour l'hélium, et pour une distance de travail d=5mm.*

Un premier examen de ces courbes montre que la fraction des électrons non diffusés diminue avec la pression avec une allure exponentielle. Ceci apparaît clairement sur toutes les figures (IV.41 à IV.43). La variation de la fraction des électrons non diffusés est liée à la section efficace de diffusion de chaque élément. Plus celle-ci diminue, plus le libre parcours moyen qui est inversement proportionnel à la section efficace de diffusion augmente, ce qui implique un pourcentage des électrons non diffusés plus important que celui donné par un élément qui possède une section efficace de diffusion plus importante.



**Figure IV.44** : Comparaison des variations de la fraction des électrons non diffusés en fonction de la pression et les mélanges pour  $d= 5\text{mm}$ .

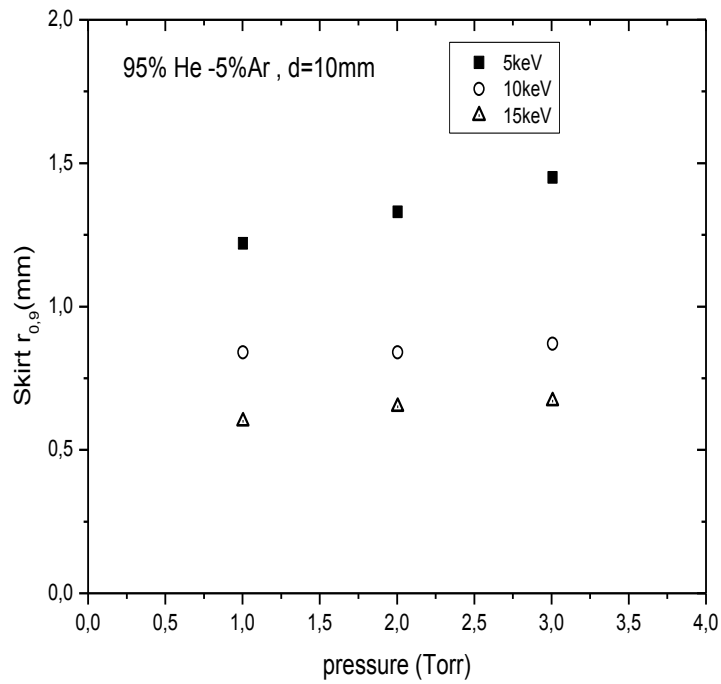


**Figure IV.45 :** Comparaison des variations de la fraction des électrons non diffusés en fonction de la pression et les mélanges pour  $d= 10\text{mm}$ .

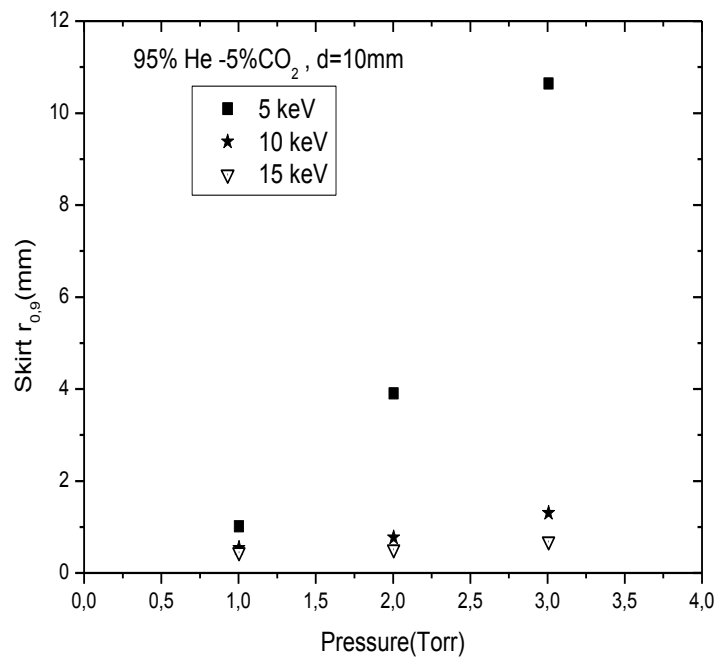
Nous avons regroupé sur les figures IV.44 et IV.45 les fractions des électrons non diffusés de l'hélium et ses deux mélanges de 90 %, en fonction de la pression et pour les distances de travail 5mm et 10 mm. Quand on augmente la pression, la diminution de la fraction des électrons non diffusés est plus lente pour l'He que pour les mélanges. Pour la distance de  $d=10\text{mm}$  l'effet de la pression est donc plus prononcé sur les mélanges que pour la distance de  $d=5\text{mm}$ . Il apparaît clairement que les deux mélanges à 90 %He on peut les utiliser dans la plus large gamme de pression.

#### IV.6.2Variation des rayons de skirt en fonction de la pression et de l'énergie:

Nous avons regroupé sur les figures (IV.46) et (IV.47) la variation du rayon skirt en fonction de la pression, pour différentes énergies, et pour les deux mélanges (95% He-5% Ar) et (95% He-5% CO<sub>2</sub>) :



**Figure IV. 46 :** Variation des rayons de skirt en fonction de la pression et de l'énergie, pour une distance de  $d=10$  mm,(95%He-5%Ar).



**Figure IV. 47 :** Variation des rayons de skirt en fonction de la pression et de l'énergie, pour une distance de  $d=10$  mm. (95%He-5%CO<sub>2</sub>).

A partir des courbes IV.46, et IV.47, on remarque nettement l'effet de la faible tension (5 keV) : A cette tension, la fraction diffusée augmente brutalement pour les 2 mélanges. On peut considérer que cette tension de 5 keV marque le seuil du domaine des basses tensions correspondant à une augmentation brutale de la section efficace totale.

## **VI.7 CONCLUSION :**

Nous avons tout d'abord calculé les coefficients d'ionisation ou premier coefficient de Townsend dans les différents gaz vapeur d'eau, azote, hélium, argon, dioxyde de carbone, et pour les mélanges nous avons comparé nos calculs avec les calculs déterminés par BOLSIG+ . Ainsi nous avons calculé le gain, l'amplification électronique, et les signaux. Pour les variations de rayon de skirt dans le gaz nous avons utilisé des calculs de type Monte Carlo. Cette étude nous a permis de suggérer l'utilisation des mélanges de gaz pour augmenter l'amplification dans le GSED. Les gaz les plus appropriés pour cela sont des gaz nobles comme l'hélium avec le dioxyde de carbone ou avec l'argon pour empêcher la cascade électronique de diverger et obtenir un gain stable. Il est démontré que l'ajout de 5% de CO<sub>2</sub> ou 5% d'Ar à l'hélium pur permet de réduire l'effet de charge par l'augmentation de l'efficacité d'ionisation et la réduction de l'effet de skirt, ce qui améliore le contraste de l'image en gardant un bon rapport Signal / Bruit.

## CONCLUSION GENERALE

Cette thèse avait pour objet le calcul des coefficients d'ionisation et le gain pour les gaz rares et leurs mélanges en vue de la détection des électrons secondaires dans un microscope électronique à balayage travaillant sous pression de gaz (MEBE). En effet l'ionisation représente l'étape essentielle du phénomène de neutralisation de la charge créée sur la surface d'un isolant lors des analyses dans un MEBE. Le calcul de gain et de la diffusion pour différents gaz et leurs mélanges a permis de déterminer les conditions optimales pour plusieurs applications liées à l'analyse topographique et les modifications de propriétés de surfaces. L'étude est basée sur un modèle analytique simple et une simulation. Le modèle analytique simple est développé pour le calcul des courbes de gains dans les gaz purs et les mélanges gazeux. La simulation est de type Monte Carlo.

Nous avons commencé par un bref historique qui décrit les grandes étapes par lesquelles est passée la technologie de la microscopie électronique de ses débuts jusqu'à l'avènement des microscopes environnementaux, objet de notre intérêt. Nous avons pu 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), afin de prédire par la simulation Monte Carlo, le comportement du faisceau électronique lors de sa traversée de la chambre d'analyse du microscope. Tous ces facteurs ont un effet significatif sur le courant du faisceau d'électrons primaires utilisés et donc la qualité des résultats.

Nous avons choisi de mener ce travail sur les gaz He et Ar et leurs mélanges. Ainsi, nous avons calculé, et comparé les coefficients d'ionisation à l'aide d'un modèle analytique développé pour le calcul des courbes d'amplification dans les gaz pur et les mélanges. Le travail a permis d'explorer les différents paramètres accessibles de l'amplification pouvant avoir une influence sur l'efficacité de l'ionisation. En ce qui concerne le signal total, nous avons comparé les signaux détectés dans quelques gaz purs, la vapeur d'eau et le dioxyde de carbone ayant presque le même comportement

Le calcul de la fraction non diffusée des électrons incidents fait apparaître que pour tous les mélanges, cette fraction garde une valeur raisonnable pour des pressions de 25 Pa à 100 Pa, pour des énergies de 5 à 15 keV et pour les distances de travail 0.3 et 1 cm. Ce



résultat est très intéressant car il montre que la présence de gaz à faible proportion dans l'hélium presque à l'instar de l'hélium pur, permet de garder une très bonne intensité de courant de sonde exploitable, même dans des conditions défavorables.

D'autre part, pour les détecteurs basés sur l'amplification du signal d'électrons secondaires dans le gaz (détecteurs GSED), le taux d'électrons secondaires émis au point d'impact avec l'échantillon est dû essentiellement à la partie non diffusée du faisceau primaire d'électrons. Comme la partie diffusée est peu modifiée, on est en droit de s'attendre à voir le taux d'électrons secondaires émis par l'échantillon peu modifié par l'effet de la pression. De plus, la présence des 10% de gaz ionisant va améliorer le rendement d'ionisation à l'intérieur de la chambre, la génération d'électrons secondaires environnementaux (issus du gaz) et par conséquent le rapport signal/bruit pour la détection en GSED.

Et enfin les résultats de cette seconde partie peuvent être considérés comme des informations importantes pour de futures applications pratiques. Ainsi, pour le mélange à 10% de CO<sub>2</sub>, le rayon du skirt varie peu avec la pression, à l'instar du comportement de l'hélium pur. Il faut donc s'attendre à voir une faible détérioration du rapport signal sur bruit lors de l'imagerie par signal d'électrons rétrodiffusés même sous des pressions élevées.

## BIBLIOGRAPHIE

- 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 .
- Assran Y., Sharma A. Transport Properties of operational gas mixtures used at LHC. CERN CH1211 Geneve, Switzerland.
- Auriemma G.Fidanza D. Pirozzi G. and Satriano C.(2003). Experimental determination of the Townsend coefficient for Argon-CO<sub>2</sub> gas mixtures at high fields. arXiv:physics.0307073. [physics.ins-det].
- 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.
- Belkorissat R, Kadoun A, Khelifa B, Mathieu C. *Micron* 2004;35:543–7.
- Bogner A.(2006). Le mode d'imagerie Wet STEM : Développement, optimisation et compréhension. Application aux mini-émulsions et l'atexe .Thèse de doctorat. GEMPPM
- Bogner A., P. Jouneau, G. Thollet, D. Basset b, C. Gauthier (2007) . A history of scanning electron microscopy developments: Towards “wet-STEM” imaging *Micron* 38,390–401.
- BOLSIG+ 2005 CPAT : [www.bolsig.laplace.univ-tlse.fr](http://www.bolsig.laplace.univ-tlse.fr).
- Brisset F. (2008). Livre de Microscopie électronique à balayage et microanalyse.
- Bronić I.K.(.....) VALUES, W. AND FANO FACTORS FOR ELECTRONS IN RARE GASES AND RARE GAS MIXTURES. RBI Internal Report No. IRB-ZEF-1.
- Bronic I.K., Grosswendt B. (1998) Gas amplification and ionization coefficients in isobutane and argon-isobutane mixtures at low gas pressures. *NIM B 142 Nuc. Inst. and Meth. in Phy. Res. B* 142 .219-244.
- Bronic K., Grosswendt B. (1998) Gas amplification and ionization coefficients in isobutane and argon-isobutane mixtures at low gas pressures. *Nucl. Inst.Meth. in Phy. Rese. B* ,142,219-244.
- Buckman J.O., Patrick W.M. Corbet T;, Mitchel L. (2016) Charge contrast imaging (CCD): REVEALING ENHANCED DIAGENETIC FEATURES OF A COQUINA LIMESTONE. *J. Sedi. Research*.Vol.86, 734–748.
- Butcher J. (2007).Thèse de doctorat.Recherche et développement d'un détecteur gazeux PIM (Parallel Ionization Multiplier) pour la trajectographie de particules sous un haut flux de hadrons. N° : ED 366-319.
- Carlton, R.A., Lyman, C.E. and Roberts, J.E. (2004). Charge neutralization in the ESEM for quantitative X-ray microanalysis. *Microsc. Microanal.*, 10(6),753–763.

- 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.
- Cho Y. C. Kim .(2007). First principle study on secondary emission of MgO surface, *J.Appl.Phys.* **101**, 083710 (2007).
- Danilatos G.D. (1992c) Secondary-electron imaging by scintillating gaseous detection device . Proc. 50th Annual Meeting EMSA. San Francisco Press. 1302-1303.
- Danilatos G.D. (1994a). Environmental scanning electron microscopy and microanalysis. *Mikrochimica Acta*, 114/115, 143–155.
- Danilatos, G. (1989a). Mechanisms of Detection and Imaging in the ESEM. *J. Microsc.*, 160(pt. 1), 9–19.
- Danilatos, G. D. and Robinson, V. N. E. (1979). Principles of scanning electron microscopy at high pressures. *Scanning* 2, 72–82.
- Danilatos, G.D. (1989b). U.S. Patent No. 4,992,662: Multipurpose gaseous detector device for electron microscope, ElectroScan Corporation.
- Danilatos, G.D. (1990a) Detection by induction in the environmental SEM. *Electron Microscopy 1990, Proc. XIIth Int. Congr. El. Microsc.* (Ed. Peachey and Williams), San Francisco Press, Vol. 1:372-373.
- Danilatos, G.D. (1990b). U.S. Patent No. 4,897,545: Electron detector for use in a gaseous environment, ElectroScan Corporation.
- Danilatos, G.D. (1990c). Theory of the Gaseous Detector Device in the Environmental Scanning Electron Microscope. *Adv. Electron. Electron Phys.*, 78.
- Danilatos, G.D. (1992c) Secondary-electron imaging by scintillating gaseous detection device . Proc. 50th Annual Meeting EMSA (Eds. GW Bailey, J Bentley and JA Small), San Francisco Press, San Francisco: 1302-1303.
- Danilatos,G.D.(1988). Foundations of environmental scanning electron microscopy. *Advances in electronics and electron physics*, 71,109-250
- David S., Bakhtier F., Alexender G., Fridman A.(2005). Characterization of a d c atmospheric pressure normal glow discharge .*inst .phy.Plas.Sou.Sci.Thecnol.*14 .700-711.
- 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.
- Farley, A.N., 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 .
- 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.

- 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
- 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.
- Goldstein, J., Newbury, D., Joy, D., Lyman, C., Echlin, P., Lifshin, E., Sawyer, L. and Michael, J. (2003). *Scanning Electron Microscopy and X-Ray Micro-analysis*, third edition. Plenum.
- Hagelaar G. J. M., Hagelaar, and Pitchford L C.(2005). Solving the Boltzmann equation to obtain electron transport coefficients and rate coefficients for fluid models. *Plasma Sources Sci. Technol.* 14 , 722–733.
- Hahn, Y., (1997). Electron-ion recombination processes – An overview. *Reports on progress in physics* 60, 691-759.
- HEYLEN, A. E. D. (1975) Ionization coefficients and sparking voltages from methane to butane, *Int. J. Elec.*, 39 , 653-660.
- <http://physics.nist.gov/>
- Jacka, M., Zadrazil, M. and Lopour, F. (2003). A differentially pumped secondary electron detector for low-vacuum scanning electron microscopy. *Scanning*, 25, 243–246.
- Kadoun A, Belkorissat R, Khelifa B, Mathieu C. *Vacuum* 2003; 69: 537–543.
- Kadoun, A., Belkorissat, R., Mathieu, C., Khelifa, B. (2003). Computation and experiments on the beam spread in the VP-SEM. *Journal of Trace and Microprobe Technique.*, Vol 21, No 2, 292-238.
- Khouchaf, L., Verstraet, J. (2004). *J Phys IV*; 118: 237–43.
- Knoll, M. (1935). Aufladepotential und Sekundäremission elektronenbestrahlter Körper. *Z. tech. Phys.*, 16, 467–475.
- 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.
- Korff S.A., And R. D. (1944) On the Role of Polyatomic Gases in Fast Counters. *P H Y. REV.* VOL 65.9 – 10.
- Kubota S. (1970) Non-Metastable Penning Effect in the Alpha-Particle Ionization in Inert gas Mixtures *J. Phys. Soc. Jpn.* Vol. 29 1017.
- Ledernez L. (2008). Ultraviolet light in glow discharge. *J. Appl. Phys.* 104; 103303.
- Livre: Impact of Electron and Scanning Probe Microscopy on Materials Research Page 399.

- Maniguet L., Roussel F., Charlot F., Robaut F. (2013). Principes de base et évolution de la microscopie électronique à balayage. 4<sup>ème</sup> Journées Scientifiques et Techniques du réseau des Microscopistes de l'INRA de Nancy Lorraine.
- Mansour O. Aidaoui K. Kadoune A. Khouchaf L. Mathieu C. (2010) Monte Carlo simulation of the electron beam scattering under gas mixtures environment in an HPSEM at low energy. *Vacuum*, 84:458–463.
- Mansour O. Comportement d'un faisceau d'électrons dans un mélange de gaz à basse tension dans HPSEM. Thèse de doctorat, université de Sidi Bel Abbés, (2010).
- Mathieu C., Khouchaf L., Kadoun A. (2007). Exploring the high pressure SEM, in: Diaz, A.M.-V. A.J. (Ed.), *mod.reas.and edu.top.in microsc.pp.779-786*.
- Mathieu, C. (1999). The beam–gas and signal–gas interactions in the variable pressure scanning electron microscope. *Scanning Microsc.*, 13(1), 23–41.
- Mathieu, C., Khouchaf, L., Kadoune, A., 2007. Exploring the high pressure SEM, in : Diaz, A.M.-V. a.J. (Ed.), *mode.reasch.edu.top.in.micro.,pp.779-786*.
- 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.
- Moncrieff, D.A., Robinson VNE, Harris LB: Charge neutralization of insulating surfaces in the SEM by gas ionization. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.11, 2315-2325 (1978).
- 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.
- Nasser E. (1971). *Fundamentals of Gaseous Ionisation and Plasma Electronics* Wiley-Inter. science, New York.
- Nedela V., Konvalina I., Lencova B., Zlamal J. (2011) Comparison of calculated, simulated and measured signal amplification in a variable pressure SEM *Nucl. Inst. and Metho. in Phy. Res. A* 64579–83
- Phillips, M. R. and Morgan, S. W. (2005). Direct comparison of various gaseous secondary electron detectors in the variable pressure scanning electron microscope. *Microsc. Microanal.* 11, 398–399.
- 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.
- Raether. (1964). *Electron avalanches and breakdown in gases*. Butterworths.
- Reimer, L. (1985). *Scanning Electron Microscopy*, Springer-Verlag, Berlin.
- Robinson, V.N.E. (1975a). *J. Phy. E: Instrum.* 8.638-640.

- Robinson, V.N.E. (1996). SEM at high chamber pressures. <http://www.microscopy.com/MicroscopyListserver/MicroscopyArchives.html> .
- Ruska E. The development of the electron microscope and of electron microscopy. Nobel lecture, December 1986, pp. 355-380.
- Sharma A. and Sauli F. (1993) First Townsend coefficient measured in argon based mixtures at high fields. NIM. 334.420.
- Smith, K.C.A. (1956). The scanning electron microscope and its fields of application. University of Cambridge, PhD thesis .
- Stokes,D.J.(2008). Principles and Practice of Variable Pressure/Environmental Scanning Electron Microscopy (VP-ESEM). John Wiley & Sons,Ltd. ISBN: 978-0-470-06540-2
- Stowe S.J., 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.
- 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.
- 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.
- Thiel B. L. (2004b). Master curves for gas amplification in low vacuum and environmental scanning electron microscopy, Ultramicro. 99:35 -47.
- Thiel B. L., Toth M., Schroemges R. P. M., Scholtz J. J., Veen G., Knowles W. R. (2006). Two-stage gas amplifier for ultrahigh resolution low vacuum scanning electron microscopy. REV.OF SCI. INST.77, 033705.
- Thiel B.L., Toth M., Craven J.P. (2004) Charging Processes in Low Vacuum Scanning Electron Microscopy. Microsc. Microanal, 10, 711–720.
- Thiel, B. T., Toth, M., and Knowles, W. R. (2005b). Ultra-high resolution and metrology with Low Vacuum SEM. Microsc. Microanal. 11, 384CD.
- Thiel, B.L. and Toth, M. (2005a). Secondary electron contrast in low-vacuum/ environmental scanning electron microscopy of dielectrics. J. Appl. Phys., 97(5).
- 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.
- Tileli V., Knowles W., Toth W., and Thiel, B. L. (2009) Noise characteristics of the gas ionization cascade used in low vacuum scanning electron microscopy. J. APPL. PHY. 106: 014904 -1.
- Toth M., Daniel.D.R. (2002a).Quantification of electron-beam-irradiated gas capacitor.J.Phys.D:Appl.Phys.,35,PP.1769-1804.
- Toth M., Phillips M.R. (2000).The Role of Induced Contrast in Images Obtained.
- 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.

Using the Environmental Scanning Electron Microscope. SCANNING VOL. 22, 370–379

- Von Ardenne, M. (1938a). Das Elektronen-Rastermikroskop. raktische Ausfu"hrung. Z. tech. Phys., 19, 407–416.
- Von Engel, A. (1965). Ionized Gases, Clarendon Press, Oxford.
- Watt G. R., Griffin B.J., and Kinny P. D. (2000). Charge contrast imaging of geological materials in the environmental scanning electron microscope. American Mineralogist, 85, 1784-1794.
- Wight, S., Gillen, G. and Herne, T. (1997). Development of environmental scanning electron microscopy electron beam profile imaging with self-assembled mono layers and secondary ion mass spectroscopy. Scanning, 19, 71–74.
- Xiaohu Tang (2004). A study of charging in the presence of a gaseous environment .These de doctorat. Tennessee-Knoxville.2248.
- Zoukel A.(2013). Etude des phénomènes d'interaction faisceau d'électrons gaz-matière dans un MEB à pression variable.These de doctorate doc.univ.lille.fr.