

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية

République Algérienne Démocratique et Populaire

وزارة التعليم العالي والبحث العلمي

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

جامعة غرداية

N° d'enregistrement

Université de Ghardaïa



كلية العلوم والتكنولوجيا

Faculté des Sciences et de la Technologie

قسم الآلية والإلكترونيكا

Département d'Automatique et électromécanique

Mémoire de fin d'étude, en vue de l'obtention du diplôme

Master

Domaine: Sciences et de la Technologie

Filière: Electromécanique

Spécialité: Maintenance industrielle

Thème

**Étude l'interaction électron-gaz dans la microscopie
électronique à balayage environnementale (ESEM)
application au dioxyde de carbone**

Présenté par :

Ahmed BAKLI

Soutenu publiquement le...../...../.....

Devant le jury composé de:

.....	Université	Président
Zoulikha HAFSI	MCB	Université de Ghardaïa	Encadrant
.....	Université	Co-encadrant
.....	Université	Examineur
.....	Université	Examineur

Année universitaire 2021/2022

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية

République Algérienne Démocratique et Populaire

وزارة التعليم العالي والبحث العلمي

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

جامعة غرداية

N° d'enregistrement

Université de Ghardaïa



كلية العلوم والتكنولوجيا

Faculté des Sciences et de la Technologie

قسم الآلية والإلكترونيكا

Département d'Automatique et électromécanique

Mémoire de fin d'étude, en vue de l'obtention du diplôme

Master

Domaine: Sciences et de la Technologie

Filière: Electromécanique

Spécialité: Maintenance industrielle

Thème

**Étude l'interaction électron-gaz dans la microscopie
électronique à balayage environnementale (ESEM)
application au dioxyde de carbone**

Présenté par :

Ahmed BAKLI

Soutenu publiquement le...../...../.....

Devant le jury composé de:

.....	Université	Président
Zoulikha HAFSI	MCB	Université de Ghardaïa	Encadrant
.....	Université	Co-encadrant
.....	Université	Examineur
.....	Université	Examineur

Année universitaire 2021/2022

Dédicace

*Je m'incline devant **Dieu** tout puissant qui m'a ouvert la porte du savoir et
m'a aidé la franchir.*

Je dédie ce travail:

*A ma **mère** qui m'a éclairée mon chemin et qui m'a encouragé et soutenue
toute au long de mes études.*

*A mon **père**.*

*A mon **grande mère**.*

*Et mes **grands-pères**.*

*A mes **frères** et mes **sœurs**.*

*A tous mes **oncles** et mes **tantes**.*

*A chaque **cousins** et **cousines**.*

*A tous mes **ami(e)s** du département de l'électromécanique*

Une spéciale dédicace à mes collègues de spécialité Maintenance

Industrielle de l'université de Ghardaïa.

Ahmed

Remerciement

Je remercie Dieu, notre créateur, pour nous avoir donné la volonté, la force, le courage et les moyens d'accomplir ce travail.

*Je remercie, tout particulièrement, mon encadreuse M^{me}. **Zoulikha HAFSI**, d'avoir bien dirigé ce travail avec son judicieux conseil dont il a fait preuve durant l'élaboration de mon étude.*

Nous tenons, aussi, à lui exprimer mon sincères remerciements pour son patience, ses orientations pour réaliser ce travail.

A tous les membres de jury et les examinateurs du département de l'automatique et l'électromécanique Université de Ghardaïa.

Un grand merci, encore est adressé à tous ceux qui ont fait part l'aide, d'une façon ou d'une façon ou d'une autre.

Résumé

de travail. Ceci peut constituer les conditions optimales pour l'observation en ESEM de la destruction des microorganismes sous CO₂. Notre travail s'intéresse à la description de l'interaction électron-gaz dans le microscope électronique enivré mental (EMEB et ESEM anglais) et son effet sur le profil du faisceau primaire. Pour cela, nous nous sommes appuyés sur des calculs de type Monte-Carlo pour simuler les trajectoires électroniques dans le gaz et déterminer les rayons du SKIRT et les pourcentages de déviation. L'étude est orientée sur le dioxyde de carbone (CO₂), un gaz moléculaire pouvant être utilisé dans la chambre d'analyse pour examiner des échantillons de matériaux de façades d'immeubles anciens pour étudier l'effet de la pollution atmosphérique sur ces façades. A titre de comparaison nous avons introduit une étude sur la vapeur d'eau (H₂O), gaz moléculaire d'une utilité quasi incontournable dans les ESEM, pour les observations biologiques et pour l'observation d'échantillons hydratés. Nos résultats montrent que le CO₂ est un mauvais candidat du point de vue du skirt. Mais son bon potentiel d'ionisation permet d'envisager un mélange de gaz contenant le CO₂ pour sa facilité d'ionisation et donc de neutralisation de charge, Nous préconisons son utilisation à faibles pressions et grande énergie où il peut surclasser la vapeur d'eau, surtout à faible distance

Résumé

of work. This can be the optimal conditions for the observation in ESEM of the destruction of microorganisms under CO₂. Our work focuses on the description of the electron-gas interaction in the mental electron microscope (EMEB and English ESEM) and its effect on the profile of the primary beam. For this, we relied on Monte Carlo-type calculations to simulate the electronic trajectories in the gas and determine the RADIUS OF THE SKIRT and the percentages of deviation. The study focuses on carbon dioxide (CO₂), a molecular gas that can be used in the analysis chamber to examine samples of materials from the facades of old buildings to study the effect of air pollution on these facades. For comparison we have introduced a study on water vapor (H₂O), a molecular gas of almost unavoidable utility in ESEM, for biological observations and for the observation of samples Hydrated. Our results show that CO₂ is a bad candidate from the point of view of the skirt. But its good ionization potential makes it possible to consider a mixture of gases containing CO₂ for its ease of ionization and therefore charge neutralization, We recommend its use at low pressures and high energy where it can outperform water vapour, especially at a short distance

ملخص

من العمل. يمكن أن يكون هذه هي الظروف المثلى للمراقبة في (ESEM) لتدمير الكائنات الحية الدقيقة تحت CO₂. يركز عملنا على وصف التفاعل بين الإلكترون و الغاز في المجهر الإلكتروني (EMEB و ESEM بالانجليزي) وتأثيره على ملف تعريف الحزمة الأولية. لهذا، اعتمدنا على حسابات من نوع مونت كارلو لمحاكاة المسارات الإلكترونية في الغاز و تحديد نصف قطر التنورة و النسب المؤدية للانحراف. تركز الدراسة على ثاني أكسيد الكربون CO₂، و هو غاز جزيئي يمكن استخدامه في غرفة تحليل لفحص عينات من المواد من واجهات المباني القديمة لدراسة تأثير تلوث الهواء على هذه الواجهات للمقارنة، قدمنا دراسة حول بخار الماء H₂O، هو غاز جزيئي لا مفر منه تقريبا في ESEM، للملاحظات البيولوجية و مراقبة العينات الرطب. تظهر نتائجنا أن CO₂ مرشح سيئ من جهة نظر التنورة. لكن إمكانات التأين الجيدة تجعل من الممكن النظر في خليط من الغازات التي تحتوي على CO₂ لسهولة التأين و بالتالي تحييد الشحنة، نوصي باستخدامه عند الضغوط المنخفضة و الطاقة العالية حيث يمكن أن يتفوق على بخار الماء خاصة على مسافة قصيرة.

Table des matières

Table des matières

Sommaire

Titre	Pages
Dédicace	-
Remerciement	-
Table des matières	-
Liste des tableaux	-
Liste des figures	-
Introduction générale	01
Chapitre I : Microscope électronique à balayage sous atmosphère gazeuse	
I.1. Introduction	04
I.2. Microscopie électronique	04
I.3. Microscopie électronique à balayage	05
I.3.1. Historique	05
I.3.2. Définition et principe de fonctionnement	07
I.4. Microscope électronique à balayage à haute pression	10
I.4.1. Généralité sur l'ESEM	10
I.4.2. Définition	12
I.4.3. Principe de fonctionnement	14
I.4.4. Les différentes interactions dans ESEM	16
I.4.4.1. Interaction du faisceau avec le gaz	17
I.4.4.2. Interaction faisceau-échantillon	18
I.4.4.3. Interaction échantillon-signal	18
I.4.4.4. Interaction signal-gaz	18
I.4.4.5. Interaction gaz-échantillon	19
I.4.4.6. Interaction faisceau primaire-signal	19
I.5. La détection	19

Table des matières

I.6. Procédé DIC et intérêt du CO_2 en ESEM	22
Chapitre II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l'ESEM par la Méthode de monte Carlo	
II.1. Introduction	26
II.2. Sections efficaces de diffusions	27
II.3. Transfert du faisceau d'électron-équations de base	34
II.4. Profil du faisceau électronique	36
II.4.1. Formulation du problème	36
II.4.2. Elargissement du faisceau d'électron (skirting)	40
II.5. Monte-Carlo dans le gaz	43
Chapitre III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM- application au DIOXIDE de carbone CO_2 et comparaison avec H_2O	
III. 1 Application aux trajectoires dans CO_2 et H_2O	48
III.1.1. Effet de la pression	48
III.1.2. Effet de l'énergie	49
III.1.3. Effet de la distance de travail	51
III.1.4 Effet de la nature chimique de l'élément	52
III.1.5. Conclusion sur l'effet des quatre paramètres	52
III.2. Variation de la fraction diffusée en fonction du rayon de skirt	52
III.3. Calcul de la fraction des électrons non diffusés	55
III.4. Domaine des faibles pressions	57
III.5. Conclusion	59
Conclusion générale	61
Références bibliographiques	64

LISTE DES TABLEAUX

Liste des tableaux :

Tableau N° 01 : :Valeurs du numéro atomique Z et de l'amplitude de diffusion $f_e(0)$ pour différents atomes	31
Tableau N° 02 : Valeur de la distance interatomique r_{ij} , et de la distance maximum d'interaction r_m et du rapport $2\pi d_0/\lambda$ pour différents gaz moléculaires	32

LISTE DES FIGURES

Liste des figures :

Figure N° 01 :	Présentation générale de 2 microscopes électroniques, un MEB et un TEM .	5
Figure N° 02 :	Le premier microscope électronique à balayage disponible dans le commerce la cambridge instruments stereoscan MK1 , 1965	6
Figure N° 03 :	Représentation schématique de l'interaction entre un faisceau d'électrons et la surface d'un échantillon	7
Figure N° 04 :	Micrographies comparées d'un micro-organisme [2, 3] plancton marin <i>Adiantum trochodiscus longispinus</i>	8
Figure N° 05 :	Comparaison de deux images d'un échantillon d'AlO ₂ obtenues [6]	13
Figure N° 06 :	Les différentes collisions ionisantes dans un gaz au-dessus de la surface d'un échantillon non conducteur.	14
Figure N° 07 :	Système de pompage différentiel à deux étages.	16
Figure N° 08 : Schéma illustrant (A) le processus d'amplification de gaz et (B) détecteurs d'électrons secondaires à gaz (GSE) utilisés dans le microscope à balayage à pression variable et dans le microscope électronique à balayage environnemental. [14]		21
Figure N° 09 :	Image BSE-GSE mixte de cellules cancéreuses cultivées sur verre [14]	22
Figure N° 10 :	La section efficace totale de diffusion de quelque gaz moléculaire en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons.	33
Figure N° 11 :	Les différentes zones de concentration de gaz entre l'échantillon et PLA2	35
Figure N° 12 : .	Un électron se déplaçant le long de l'axe de PLA1 subit une collision entre z et $z+dz$ avec un angle entre θ et $d\theta$ et rencontre un plan situé à une distance L de PLA1 dans un anneau d'épaisseur δr	38
Figure N° 13 :	Variation du rayon du skirt pour différents nombres moyens de diffusion	41
Figure N° 14 :	Trajectoires électroniques pour les deux gaz (H ₂ O et CO ₂) à la pression de 250 Pa	48
Figure N° 15 :	Trajectoires électroniques pour les trois gaz (H ₂ O et CO ₂) à la pression 1300 Pa.	49
Figure N° 16 :	Trajectoires électroniques pour les deux gaz (H ₂ O et CO ₂) à énergie 10 keV	50
Figure N° 17 : Trajectoires électroniques pour les deux gaz (H ₂ O et CO ₂) à grande énergie (30 keV) pour, H ₂ O et 25 keV pour le CO ₂		50
Figure N° 18 :	Trajectoires électroniques pour les deux gaz (H ₂ O et CO ₂) pour une distance de travail de 0.5	51
Figure N° 19 : Trajectoires électroniques pour deux gaz (H ₂ O et CO ₂) pour une distance de travail 3 cm.		51

LISTE DES FIGURES

Figure N° 20 :	Pourcentage de la fraction diffusée pour différentes énergies.	53
Figure N° 21 :	Pourcentage de la fraction diffusée pour différentes pressions.	53
Figure N° 22 :	Pourcentage de la fraction diffusée pour différentes énergies.	54
Figure N° 23 :	Pourcentage de la fraction diffusée pour différentes pressions.	54
Figure N° 24 : ...	Variation de la fraction des électrons non diffusés en fonction de la pression et pour différentes distances de travaux pour H ₂ O	55
Figure N° 25 : ...	Variation de la fraction des électrons non diffusés en fonction de la pression et pour différentes Energies pour H ₂ O.....	55
Figure N° 26 : ...	Variation de la fraction des électrons non diffusés en fonction de la pression et pour différentes distances de travaux pour CO ₂	56
Figure N° 27 : ...	Variation de la fraction des électrons non diffusés en fonction de la pression et pour différentes Energies pour CO ₂	56
Figure N° 28 :	Variation de la fraction des électrons non diffusés en échelle logarithmique en fonction de la pression pour, He, H ₂ O et CO ₂	57
Figure N° 29 :	Profil du faisceau pour H ₂ O et CO ₂ à faibles pressions.	58

Introduction Générale

Introduction générale

La possibilité d'observer en microscope électronique à balayage (MEB ou SEM) des échantillons non métallisés, en utilisant l'effet de neutralisation de la charge excédentaire par les ions positifs produits par l'interaction électron primaire-gaz a conduit de nombreux fabricants à proposer, depuis le début des années 1990, des microscopes de type ESEM (Environmental SEM), CPSEM (Controlled Pressure SEM), VPSEM (Variable Pressure SEM), LVSEM (Low Vacuum SEM). Ces microscopes qui diffèrent par la nature du gaz dans la chambre d'analyse, le mode opératoire, le domaine de pression utilisable, et par leurs diverses applications, peuvent tous être regroupés sous le vocable de microscopes à haute pression (HPSEM: High Pressure SEM). Ces nouveaux microscopes (VPSEM) permettent d'élargir considérablement le champ d'investigation à tous les types de matériaux : isolants tels que les polymères, les fibres synthétiques, les textiles; matériaux biologiques dans leur état naturel; matériaux archéologiques ne supportant aucune préparation préalable; liquides etc...

La présence du gaz dans l'enceinte d'analyse a essentiellement deux fonctions qui sont la préservation de l'échantillon notamment pour les échantillons hydratés, biologiques et la possibilité de créer des ions positifs lors de l'interaction gaz -électron. Les charges ainsi créées vont venir sur la surface de l'échantillon afin de permettre l'annihilation des charges négatives accumulées à la surface de l'échantillon pour les isolants.

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

Ce travail s'intéresse essentiellement à la description de l'interaction électron-gaz dans le ESEM et son effet sur le profil du faisceau primaire. Pour cela, nous nous sommes appuyés sur des calculs de type Monte-Carlo pour simuler les trajectoires électroniques dans le gaz et déterminer les rayons du SKIRT et les pourcentages de déviation. L'étude est orientée sur la vapeur d'eau, gaz moléculaire d'une utilité quasi-incontournable dans les ESEM, pour les observations biologiques et pour l'observation d'échantillons hydratés.

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

INTRODUCTION GENERALE

électronique, et en mettant l'accent 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 décrite. Les équations de base y sont rappelées. la présentation de l'application de la méthode de Monte Carlo au cas qui nous intéresse. Une première application concernant l'effet des différents paramètres du VPSEM (distance de travail, énergie du faisceau, pression du gaz dans l'enceinte d'analyse, nature chimique du gaz) sur les trajectoires électroniques est présentée.

Le troisième chapitre, nous nous sommes d'abord intéressés au calcul les le profil total du faisceau d'électrons dans les deux gaz choisis dioxyde de carbone (CO_2) et la vapeur d'eau (H_2O), ce qui nous a conduits à déterminer des limites pour les distances de travail en fonction de la pression et de la tension utilisées. Les rayons du skirt sont alors systématiquement déterminés, les fractions d'électrons non déviés ainsi que la variation du nombre moyen de collision par électron. A partir de cette comparaison qui fait apparaître un écart entre les différents comportements du faisceau dans les deux gaz, nous mettons en particulier en évidence des propriétés intéressantes de les deux gaz et souligné des phénomènes, souvent non considérés, se produisant dans le domaine des faibles pressions.

Chapitre I :
Microscope
électronique à
balayage sous
atmosphère gazeuse

I.1. Introduction :

Dans ce chapitre, nous allons aborder graduellement le principe de microscopie électronique à balayage sous atmosphère gazeuse en rappelant brièvement les principes de base de la microscopie électronique, comme amélioration apportée à la microscopie optique et en mettant l'accent sur l'utilisation du dioxyde de carbone dans les microscopes électroniques à balayage environnementaux.

I.2. Microscopie électronique :

La microscopie électronique est une technique puissante qui permet l'observation, l'analyse et la description de phénomènes statiques ou dynamiques survenant à l'échelle micrométrique ou sub-micrométrique.

Un microscope électronique 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 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 sont composés de 3 éléments principaux : canon à électrons, colonne électronique et détecteurs. L'ensemble est maintenu sous vide.

La Microscopie Electronique 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. Il existe deux types de microscopes électroniques : le

CHAPITRE I : Microscope électronique à balayage sous atmosphère gazeuse

microscope électronique en transmission (MET ou TEM en anglais) et le microscope électronique à balayage (MEB ou SEM pour scanning electron microscope, en anglais).

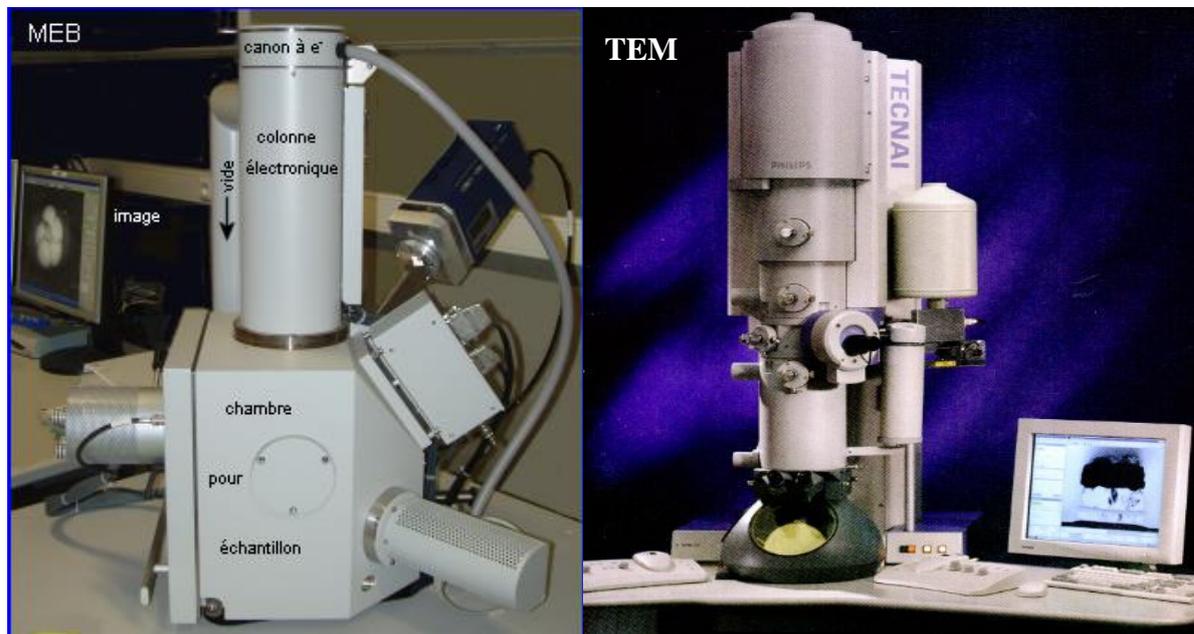


Figure N° 01 : Présentation générale de 2 microscopes électroniques, un MEB et un TEM .

I.3. Microscopie électronique à balayage

I.3.1. Historique:

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

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

CHAPITRE I : Microscope électronique à balayage sous atmosphère gazeuse

n'a malheureusement pas été suffisante pour convaincre à cette époque la communauté de l'utilité du SEM.

Le développement du SEM a été repris en 1948 par Oatley à université de Cambridge où, pendant un certain nombre d'années, lui et ses étudiants chercheurs construisit cinq SEM avec une amélioration de leurs performances dont la première était comment pourrait-on révéler la nature d'une surface en trois dimensions (Mc Mullen, 1952, 1953 dans [1]), puis les étudiants qui l'ont suivi ont fait plusieurs contributions importantes au développement du SEM et ses applications, ce qui a conduit à un instrument avec une résolution de 10 nm vers les années 1960. Quelques exemples de la littérature à ce moment-là comprennent [1]: Smith et Oatley (1955), Smith (1956); Oatley et Everhart (1957); Wells (1957); Everhart et Thornley (1960); Broers (1965) et Pease et Nixon (1965). Le point culminant de ce travail a été la production d'un premier SEM disponible dans le commerce en 1965: le Cambridge.

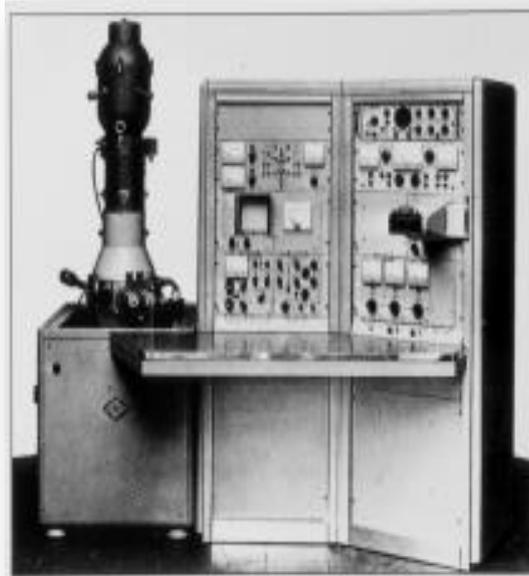


Figure N° 02 : Le premier microscope électronique à balayage disponible dans le commerce la cambridge instruments stereoscan MK1 , 1965

Cela a marqué le début d'une nouvelle ère. La résolution du SEM n'a pas été aussi bonne que celle du TEM, mais les difficultés de préparation des échantillons minces pour le TEM ont été

évitées. En outre, il est apprécié que la capacité d'observer la surface des échantillons, de visualiser la topographie des caractéristiques et d'obtenir des informations quantitatives ait été très précieuse dans un même endroit.

I.3.2. Définition et principe de fonctionnement :

Le microscope électronique à balayage (SEM) est un des instruments les plus souples, disponibles actuellement pour l'examen et l'analyse des caractéristiques microstructurales d'échantillons solides. 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 N° 03). Dans cet instrument, 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.

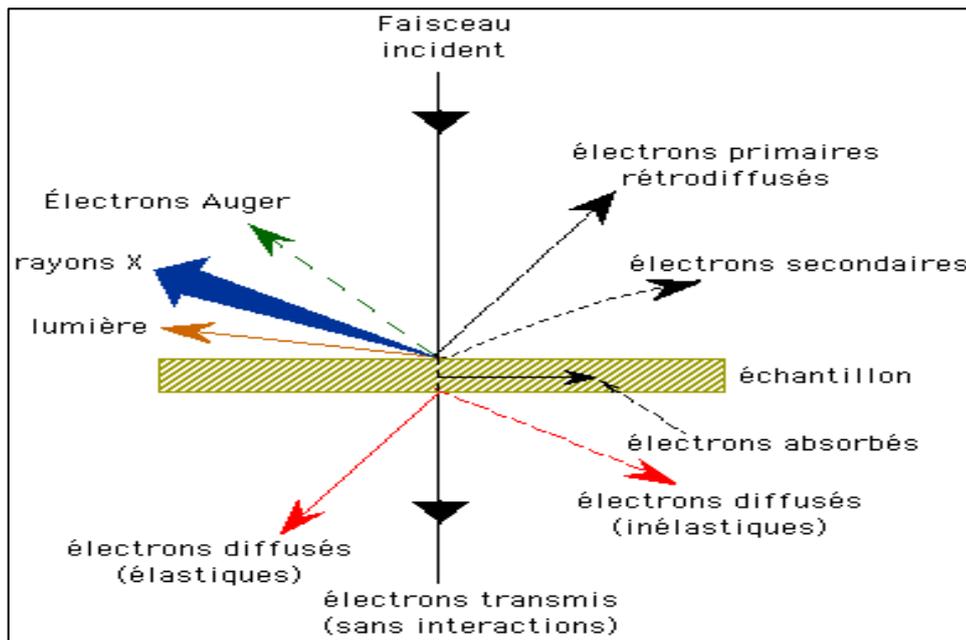
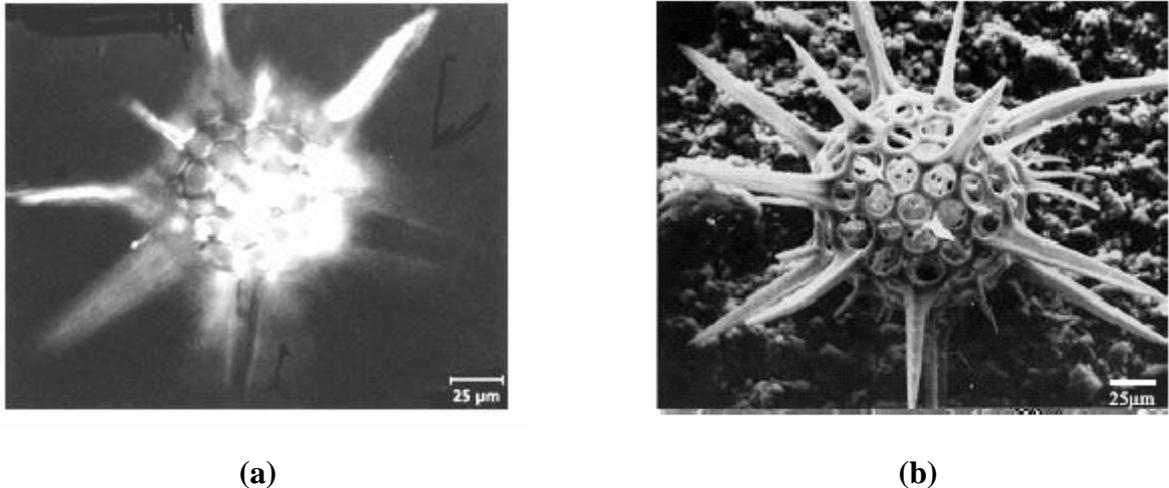


Figure N° 03 : Représentation schématique de l'interaction entre un faisceau d'électrons et la surface d'un échantillon .

Une des caractéristiques principales du SEM est sa haute résolution qui peut être de l'ordre du nm. Une autre caractéristique essentielle de cet appareil est la possibilité de visualisation en 3 dimensions grâce à la grande profondeur de champ et à l'effet de relief procuré par les signaux d'électrons secondaires et rétrodiffusés. Ces deux caractéristiques sont excellemment illustrées par la figure N° 04, qui montre deux images comparées d'un même objet, prise en microscopie optique et en SEM .



**Figure N° 04 : Micrographies comparées d'un micro-organisme [2, 3] plancton marin-
adiolarian *trochodiscus longisipinus*.**

a) Image obtenue au microscope optique.

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

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

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

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

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

CHAPITRE I : Microscope électronique à balayage sous atmosphère gazeuse

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

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

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

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

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

Avec l'intérêt grandissant pour ces deux types de matières (matériaux isolants, organismes biologiques) en technologie et biotechnologie, il était impératif de développer une nouvelle technique permettant leur observation microscopique sans les altérer. C'est dans ce contexte qu'est

apparue une nouvelle famille de SEM, fonctionnant sous environnement gazeux. L'interaction du faisceau d'électrons primaire avec les entités (atomes ou molécules) du gaz conduit à l'ionisation de ces entités lesquelles vont venir neutraliser la charge négative excédentaire qui apparaît à la surface de l'échantillon.

I.4. Microscope électronique à balayage à haute pression :

I.4.1. Généralité sur l'ESEM:

Depuis environ les années 50, les chercheurs ont conduit des expériences avec un pompage différentiel, ouverture limitée "chambres environnementales" pour le TEM, tandis que d'autres ont travaillé avec des réservoirs scellés par un film mince, avec une fenêtre transparente aux électrons (voir, par exemple, Swift et Brown, 1970; Parsons, 1975 dans référence [5]). Puis, en 1970, Lane a démontré l'utilisation d'une ouverture limitée dans la chambre d'un SEM, 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 SEM capable de maintenir une forte pression tout en assurant le contrôle de l'image, par l'adaptation de la chambre d'analyse elle-même du SEM (Robinson, 1975). Une image stable d'eau liquide a également été montrée par Robinson lors du Congrès international sur la Microscopie Electronique (ICEM 8) à Canberra, en Australie (Robinson, 1974). Il travaillait sur une modification du JEOL JSM 2 SEM, ayant un système d'ouverture (PLA) de 100 μm pour séparer la région du haut vide contenant la source d'électrons de celle de la chambre d'échantillon, à une pression plus élevée. La pression maximale de vapeur d'eau était 665 Pa (5 torr), et l'eau liquide a été maintenue par un refroidissement de la chambre et un réservoir d'eau glacé autour de l'échantillon. Un détecteur à l'état solide, d'électrons rétrodiffusés (ESB) a été utilisé, avec une résolution raisonnable allant jusqu'à un grossissement de 2000x. La présence du système d'ouverture avait réduit le taux de balayage du faisceau d'électrons ainsi que le champ de vision était limité, et le minimum était un grossissement de 100x (Robinson, 1996).

À cette époque, l'objectif était l'observation des spécimens biologiques, sans recours à la préparation. Il avait d'ailleurs observé que l'imagerie d'objets non isolants à des pressions au-dessus de ~ 10 Pa, semble réduire les effets de charges. L'explication se concentre sur l'idée que le film

d'eau liquide a été responsable de l'octroi de cette conductivité. Bien sûr, cela ne pouvait pas expliquer pourquoi l'imagerie avec des gaz autres que l'eau a un effet similaire.

Moncrieff et al. (1978) avaient proposé que les collisions entre les électrons et les molécules de gaz, entraînent la production d'ions positifs (voir Von Engel, 1965), et leurs attractions vers la charge négative de l'échantillon, qui était le mécanisme observé de la neutralisation de la charge excédentaire (références citées dans [5]).

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 [5]). 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 ($\sim 37^{\circ}\text{C}$) nécessite une pression de vapeur d'eau au-dessus de 6,65 kPa (50 torr) et d'une distance de travail ne dépassant pas 0,5 mm. Comme il devient physiquement difficile ou impossible de travailler avec un spécimen hydraté, aussi proche du système d'ouverture (PLA), ces critères définissent la limite supérieure de la pression. Maintenant, afin de maintenir la différence de pression entre deux zones séparées par une seule PLA, pour une chambre à une pression de 6,65 kPa, la taille d'ouverture devrait être ramenée à $\sim 13 \mu\text{m}$ (Robinson, 1996 dans [5]). 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 [5]) avaient obtenus des résultats similaires au Royaume-Uni, en utilisant l'acronyme MEATSEM (moist environment ambient-temperature SEM), et après une année Neal et Mills (1980) (dans [5]) ont construit le même prototype en utilisant un système Stereoscan Mk II de Cambridge.

CHAPITRE I : Microscope électronique à balayage sous atmosphère gazeuse

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 [5]).

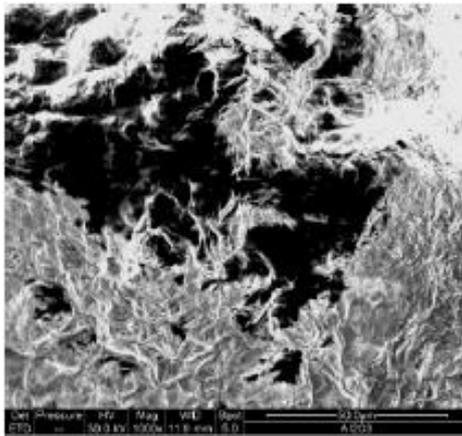
Dans les années 1990, d'autres instruments commençaient à être disponibles. Il s'agit du faible vide, (LVSEM, JEOL); naturel SEM (NSEM, Hitachi); SEM à environnement contrôlé (ECO SEM, Amray Inc) et le EnVac (Gresham Camscan).

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 contrôlé, CPSEM, a été présenté par Philips Electron Optics. Au cours de cette même année, Philips a acquis Electroscan et son groupe ESEM technology, et par la suite fusionné avec le FEI, qui est connue sous le nom de FEI Company en 2002 [5].

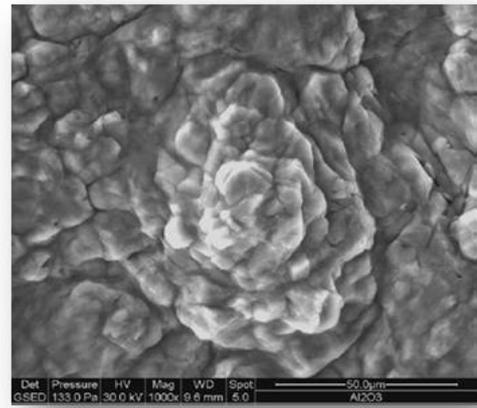
I.4.2. Définition :

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

Les électrons issus de l'interaction électron-matière sont ensuite collectés pour permettre l'observation de l'échantillon. On peut dans ces conditions, choisir de travailler avec des tensions d'accélération plus élevées pour obtenir de bonnes résolutions. En analyse X, la détection des photons est alors possible. L'amélioration de la qualité de l'image est bien illustrée par la figure N° 05, où un même échantillon d'AlO₂ est examiné dans un microscope environnemental (les différents types de microscopes travaillant sous pression de gaz seront vus plus bas dans ce paragraphe) avec la même tension accélératrice de 15kV, et la même distance de travail de 12mm, sous vide et sous pression d'oxygène



(a)



(b)

Figure N° 05 : Comparaison de deux images d'un échantillon d'AlO₂ obtenues [6]

(a) : sous vide à 10-3Pa (b) : sous pression de O₂ à 300Pa

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

Quelques exemples d'utilisation du EPSEM qui sont en relation avec la chimie des surfaces :

- L'étude des corrosions des aciers inoxydables où les différents produits formés peuvent être contrôlés et analysés in situ avant et après formation [7].
- La morphologie de l'acide nitrique et des films de glace a été examinée pour simuler des surfaces des nuages de la stratosphère dans le but d'obtenir une base de données sur les solubilités et les vitesses de réaction hétérogènes [7].
- Etude de la biocorrosion de matériaux par observation et microanalyse [7].

Le microscope électronique à balayage à haute pression (ESEM) comme défini précédemment englobe différents types de microscopes qui sont utilisés pour des utilisations bien précises avec des gammes de pression et des modes de détections bien définis. On peut citer parmi ces microscopes [8]:

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

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

2- l'ESEM (Environmental Scanning Electron Microscope) qui comprend les ESEM qui fonctionnent avec une gamme de pression comprise entre 10^{-4} jusqu'à des pressions de 640 Pa, et pour certains auteurs jusqu'à 50 torrs [9]. Souvent, cette appellation est réservée aux microscopes fonctionnant sous pression de vapeur d'eau.

I.4.3. Principe de fonctionnement :

Après avoir défini le ESEM sur la base ses applications, nous décrivons dans ce qui suit son principe physique de fonctionnement.

La figure N° 6 résume les interactions essentielles conduisant à l'ionisation du gaz dans la chambre d'analyse.

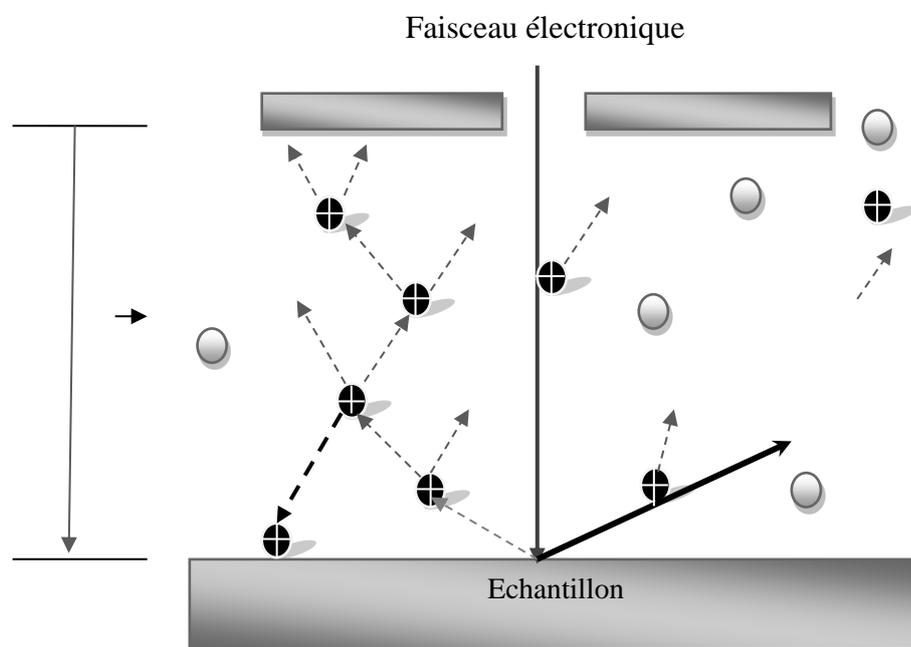


Figure N° 06 : Les différentes collisions ionisantes dans un gaz au-dessus de la surface d'un échantillon non conducteur.

Les collisions :

A: ionisation due au faisceau primaire

B: ionisation due aux électrons rétrodiffusés

C: ionisation due aux électrons secondaires

D: ionisation due au champ électrique

Il convient de noter que malgré que certains auteurs [10] fassent intervenir un terme dû aux électrons secondaires dans le courant d'ionisation, l'événement C de la figure I.4 demeure hypothétique, l'énergie des électrons secondaires n'étant probablement pas suffisante pour produire l'ionisation des molécules ou atomes gazeux. Les différentes interactions susceptibles de se produire dans la chambre d'analyse seront décrites plus loin dans ce chapitre.

A l'instar des SEM conventionnels, le ESEM comprend une région qui doit être maintenue sous un vide secondaire (moins de 10^{-2} Pa). De plus, de part sa définition, le ESEM doit comporter une région de haute pression (jusqu'à plusieurs centaines de Pa). Ces deux régions sont séparées par un système d'ouvertures (PLA : "Pressure limiting aperture"). Le système de base comprend deux ouvertures notées PLA1 et PLA2 (pompage différentiel à deux étages). La région comprise entre PLA1 et PLA2 est une zone intermédiaire où la pression n'est pas uniforme (figure 1.7).

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

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

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

La première modification apportée au ESEM par rapport au SEM est l'incorporation d'un système de pompage différentiel montré sur la figure N°07. Un système de pompage à deux étages est le minimum requis pour le fonctionnement de tout ESEM. Un tel système permet d'obtenir un vide dans la colonne optique, qui autorise l'utilisation de filaments en tungstène. Mais, l'utilisation de filaments en LaB_6 ou de canons à émission de champ, requière un système plus sophistiqué à plusieurs étages.

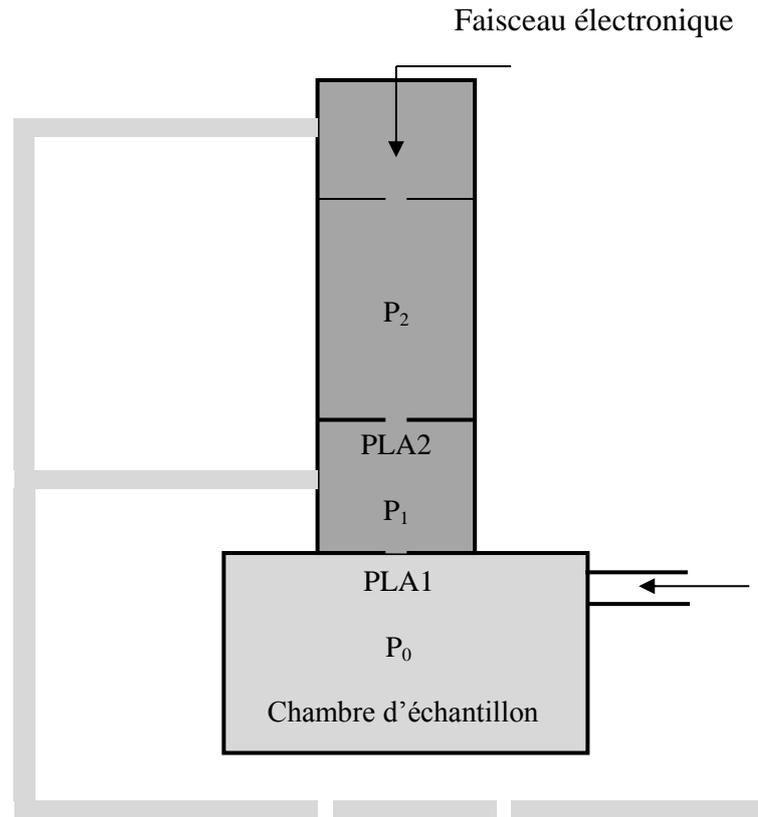


Figure N° 07 : Système de pompage différentiel à deux étages.

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

I.4.4. Les différentes interactions dans ESEM :

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

On peut distinguer quatre entités qui interagissent les unes avec les autres : faisceau, gaz, échantillon, signaux. Par conséquent, les multiples réactions qui ont lieu dans l'ESEM peuvent être classées en 6 catégories [11]:

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

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

I.4.4.1. Interaction du faisceau avec le gaz :

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

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

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

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

L'altération du gaz initialement neutre doit également être étudiée puisque cette altération va inévitablement influencer sur le rôle du gaz comme milieu environnemental. En effet, le but initial de l'introduction du gaz dans la chambre est de garantir la pression nécessaire pour garder intactes certaines propriétés de l'échantillon (par exemple, maintenir une phase liquide ou permettre une certaine réaction chimique). Il est donc primordial de connaître à quel degré le gaz remplit sa fonction d'agent environnemental.

I.4.4.2. Interaction faisceau-échantillon

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

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

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

I.4.4.3. Interaction échantillon-signal

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

I.4.4.4. Interaction signal-gaz

Cette interaction conduit à une modification mutuelle du signal et du gaz. L'étude de cette interaction s'inscrit dans un large domaine de la physique des particules et de la chimie des radiations (physique des plasmas, ionisation des gaz, physique nucléaire etc...). L'effet du gaz sur un signal donné et vice-versa peut être considéré comme une première étape dans la chaîne conduisant à la détection du signal. L'idée de mettre à profit la présence du gaz comme moyen de détection des signaux en même temps que son rôle de milieu environnemental a été introduite par Danilatos [12, 13]. Ceci implique une nouvelle technologie pour les détecteurs qui doivent être capables de capter les signaux ainsi modifiés.

La modification du gaz par le signal est comparable à celle causée par le faisceau primaire, excepté le fait que l'interaction concerne une plus large zone dans le gaz. En outre, les distributions spatiales du produit de l'interaction sont différentes dans les deux cas, ce qui permet de différencier les deux effets.

I.4.4.5. Interaction gaz-échantillon

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

I.4.4.6. Interaction faisceau primaire-signal

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

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

I.5. La détection :

En mode pression contrôlée, le détecteur Everhart-Thornley est inutilisable. En effet, à partir de 10^{-2} mbar, il y a ionisation de l'atmosphère résiduelle par les électrons incidents et réémis, et apparition d'un plasma qui piège les secondaires. Le détecteur "historique" et le plus performant actuellement sont constitué d'une électrode annulaire polarisée, placée devant l'objectif face à l'échantillon ; on mesure la variation de potentiel du plasma, dépendante de l'émission secondaire. Une autre méthode consiste à mesurer la variation de l'intensité lumineuse du plasma, elle-même aussi dépendante de l'émission secondaire. Enfin, on peut utiliser uniquement les rétrodiffusés qui, à énergie moyenne ou élevée et à pression pas trop haute, sont peu déviés par le plasma, mais donnent une moins bonne résolution.

Il convient de noter qu'il existe plusieurs approches différentes pour la détection du signal dans le ESEM, 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 dans [5]).
- Collecte du signal d'électrons secondaires amplifié par le gaz (Danilatos, 1990a ; Thiel et al. 1997 ; Toth et al. 2006 dans [5]).
- Luminescence du gaz le signal photonique obtenu est amplifié par un photomultiplicateur (Danilatos, 1989b ; Morgan et Phillips, 2006 dans [5]).
- Utilisation d'un détecteur d'électrons secondaires conventionnel de type Everhart-Thornley, séparé physiquement de la haute pression régnant dans la chambre d'échantillon (Jacka et al 2003 ; Slowko 2006 dans [5]).

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

a) Image par les électrons secondaires :

Comme précédemment souligné, le détecteur Everhard-Thornley ne fonctionne pas à des conditions de pression très élevée, ceci est dû à la production d'une décharge à haute tension. Une gamme de détecteurs d'électrons secondaires a été élaborée basée sur l'attraction d'électrons secondaires vers la grille polarisée. Dans tous les cas, les électrons émis interagissent avec le gaz et une cascade d'amplification du signal d'électrons se produit vers grille polarisée. Les électrons émis sont accélérés à un point où ils peuvent ioniser une molécule de gaz, puis le processus se répète avec l'électron résultant. Le signal d'électrons résultant est appelé signal d'électrons secondaires du gaz (GSE). Le plus souvent, le détecteur GSE mesure le flux du signal dans la grille polarisée, une deuxième variante mesure le courant d'échantillon qui est en fait le flux d'ions nappant la surface de l'échantillon, et résultant de l'amplification électrons-gaz. La troisième variante, mesure la luminescence du gaz après recombinaison. La cascade des électrons et les divers détecteurs GSED sont indiquées dans la figure N°08 [14]

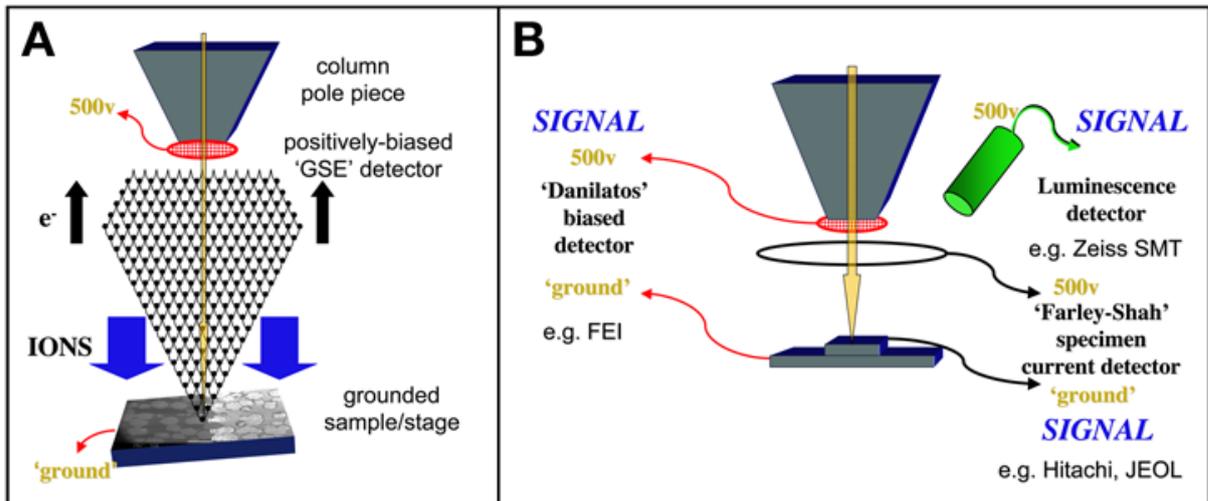


Figure N° 08 : Schéma illustrant (A) le processus d'amplification de gaz et (B) détecteurs d'électrons secondaires à gaz (GSE) utilisés dans le microscope à balayage à pression variable et dans le microscope électronique à balayage environnemental. [14]

Le faisceau primaire et les électrons rétrodiffusés contribuent au signal GSED détecté. Le niveau de contribution est en fonction des paramètres de diffusion. La diffusion est en relation inverse avec l'énergie du faisceau primaire, c'est-à-dire une faible énergie du faisceau incident entraîne un degré très élevé de diffusion. Certaines variétés de détecteur recueillent en parallèle le signal d'électrons rétrodiffusés et le soustrait du signal GSE pour fournir un signal pur de type SE. On trouvera une étude complète sur le processus d'amplification et les mécanismes de contraste dans la référence [14].

Tous les GSED dépendent de la tension de polarisation qui est intitulée "Contraste" vis-à-vis le fonctionnement du GSED, afin de générer les processus d'amplification nécessaires. Pratiquement, il est utile de noter sa valeur, lorsque les conditions d'imagerie sont bonnes pour permettre à la cohérence et la reproductibilité de l'image. Le plus haut niveau de polarisation du GSED est limité par la valeur où une il y a production d'une décharge électrique entre le détecteur et l'échantillon, ou d'un arc électrique. La tension spécifique d'utilisation dépend de la pression du gaz, du type et de la conception du détecteur, c'est-à-dire, des conditions générales de fonctionnement.

b) Image par les électrons rétrodiffusés :

À l'origine, l'imagerie en mode VPSEM a été fondée à la fois sur des détecteurs BSED de type solide et de type scintillateur et les résultats obtenus restent excellents sur des échantillons biologiques (voir Figure I.9). Dans la pratique, la limitation pour le VPSEM et l'ESEM est dans l'épaisseur de l'assemblage du BSED qui est placé directement au-dessus de l'échantillon à la

normale. Un BSED épais peut compromettre sérieusement le minimum possible atteint par la distance de travail et doit être évité. Pratiquement, une longue distance de travail, pourra limiter la qualité d'image à des pressions modérés et / ou une faible tension d'accélération.

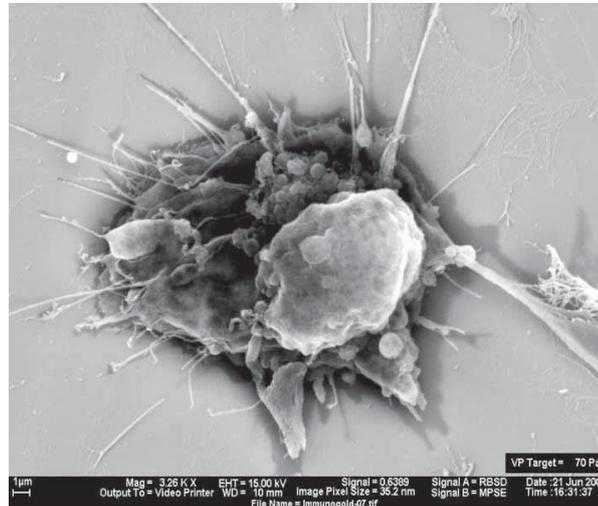


Figure N° 09 : Image BSE-GSE mixte de cellules cancéreuses cultivées sur verre [14]

I.6. Procédé DIC et intérêt du CO_2 en ESEM :

Le procédé de la détente instantanée Contrôlée (DIC) a été inventé en 1988 par l'équipe du Professeur Karim Allaf de l'université technologique de Compiègne. Son principe est fondé sur une chute abrupte de pression vers le vide à la suite d'un traitement thermique de courte durée. La DIC comporte les étapes suivantes:

1. Porter une substance à une température comprise entre 100°C et 120°C tout en élevant la pression généralement jusqu'à 4 ou 5 bars pendant quelques secondes seulement.
2. Après une phase de stabilisation, le vide est fait dans la chambre du réacteur DIC. Sous l'effet de cette dépression, la structure moléculaire de la substance est modifiée. Le résultat visible est une expansion de la substance traitée par effet de "puffing".
3. Retour à la pression et à la température ambiante.

L'ensemble du processus dure moins d'une minute dans la plupart des cas.

La DIC trouve ses principales applications dans le séchage (dessiccation) des fruits et légumes, l'extraction des huiles essentielles et des antioxydants de ces mêmes fruits et légumes, et la décontamination de substances alimentaires ou médicales par un effet thermo-mécanique.

CHAPITRE I : Microscope électronique à balayage sous atmosphère gazeuse

Afin de mieux appréhender le sujet de ce mémoire, nous allons présenter un peu plus en détail cette dernière application qui est la décontamination des produits alimentaires et plus précisément les produits déshydratés à usage alimentaire :

Les graines, les poudres et les produits pulvérulents sont très largement représentés dans les industries agroalimentaires. En effet, 80 % des ingrédients mis en œuvre sont sous forme déshydratée ; c'est pourquoi leur stabilité microbiologique est depuis longtemps étudiée. Du fait des exigences de qualité toujours croissantes de la part du consommateur, l'innocuité de produits tels que le lait en poudre, les farines, les épices, les ovoproduits, les champignons déshydratés et les poudres d'algues, fait l'objet d'une grande attention de la part des industriels. De plus, les nouvelles tendances alimentaires et notamment l'engouement pour les plats ethniques, aux goûts relevés, ont contribué à l'explosion du marché des épices et des aromates au cours de la dernière décennie. De composition variable, la microflore de ces produits est connue pour être présente en grande quantité, du fait des conditions de production artisanales (récolte, séchage, stockage...). La présence de cette microflore adaptée aux faibles teneurs en eau rend difficile la décontamination des poudres alimentaires. Deux types de micro-organismes sont présents dans les produits pulvérulents : les formes végétatives et les formes sporulées. De nombreux auteurs ont rapporté que la résistance thermique des spores et des formes végétatives est plus importante dans des milieux pauvres en eau. En effet, le stress osmotique subi par les micro-organismes lors de la contamination des produits pulvérulents a pour effet une augmentation de la thermotolérance des levures et des bactéries. Bien que réalisable, l'opération de destruction des micro-organismes dans les produits solides se heurte à des difficultés à plusieurs niveaux. Elles sont réduites lorsque ces produits solides sont contenus dans une phase aqueuse et de nouveaux traitements comme le chauffage ohmique ou les micro-ondes permettent une décontamination efficace. Dans le cas des solides divisés traités en vrac comme les épices et les herbes aromatiques, le problème se pose au niveau de l'homogénéité du traitement et du pouvoir de pénétration de la chaleur. C'est pour répondre à ce besoin que sont apparus de nouveaux procédés innovants actuellement en cours de développement, notamment la détente instantanée contrôlée (DIC).

En définitive, la décontamination est réalisée par destruction des cellules bactériennes.

On attribue le généralement les effets létaux d'un stress thermique à la dénaturation des protéines, des membranes et de plusieurs organites cellulaires. Cependant, même si les températures induisent des altérations de différentes structures de la cellule et des composants biochimiques, la perte de l'intégrité membranaire serait la principale cause de mort cellulaire pendant le stress thermique.

CHAPITRE I : Microscope électronique à balayage sous atmosphère gazeuse

D'autre part, le principe de stérilisation par CO₂ sous pression utilise la diminution du pH intracellulaire (formation d'acide carbonique) des microorganismes, facilitant ainsi leur destruction lors du traitement thermique.

On peut donc prévoir que l'efficacité de la décontamination serait largement favorisée par l'utilisation simultanée de ces deux procédés antimicrobiens : la DIC et le dioxyde de carbone sous pression.

Il serait intéressant de visualiser ce processus en microscopie électronique à balayage à haute pression et de visualiser les modifications des structures des aliments. Dans le cadre du présent travail, il est important d'évaluer la faisabilité d'une telle approche par la modélisation de l'élargissement du faisceau sous l'action du CO₂ dans des conditions de haut et bas vide dans une gamme d'énergie comprise entre 5 et 25 kV.

Chapitre II :

Etude de l'interaction
électron-gaz dans la
chambre d'analyse de
l' ESEM par la
Méthode de monte
Carlo

CHAPITRE II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

II.1. Introduction :

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

L'interaction du faisceau d'électrons avec un gaz dans un VPSEM produit plusieurs phénomènes tels que la diffusion d'électrons primaires et la génération (i) d'électrons secondaires, (ii) d'ions positifs et / ou négatifs, (iii) rayons X, (iv) atomes et / ou molécules excités, (v) scintillation du gaz (vi) dissociation moléculaire. Ces phénomènes, généralement dégradent la qualité d'image par l'introduction d'une composante de bruit de fond qui s'ajoute au signal émis par l'échantillon. Les électrons primaires qui sont dispersés introduisent «directement» un bruit de fond par la génération d'électrons secondaires et de rayons X de l'échantillon à de très grandes distances, loin du point d'impact du faisceau d'électrons, réduisant ainsi le rapport signal / bruit dans les images et la microanalyse X, respectivement. Les électrons primaires dispersés contribuent à ce qui est appelé SKIRT qui entoure la fraction d'électrons non diffusées [27]. Les phénomènes additionnels cités ci-dessus (i à vi), qui sont produits en conjonction avec la diffusion du faisceau primaire, introduisent «indirectement», un bruit de fond au signal désiré. Cependant, ces signaux peuvent être amplifiés dans le gaz, et détectés avec les électrons émis par l'échantillon. Cette composante de bruit de fond ajoutée au signal, dépend du mode de détection utilisé.

La diffusion du faisceau d'électrons est de première importance, car le taux de diffusion des électrons primaires détermine les limites fondamentales de la résolution spatiale, rapport signal/bruit, et le contraste dans les images ainsi que la microanalyse X obtenues dans un VPSEM. Plusieurs auteurs, comme Adamiak & Mathieu [15], Danilatos [13, 16,17], Farley & Shah [18], Gillen et al. [19], Kadoun et al. [20], Phillips et al. [21], Stowe & Robinson [22], Thiel et al. [23], Wight et al. [24, 25] et Wight & Zeissler [32] ont étudiés la diffusion électrons-gaz dans un VPSEM. Avant toute analyse théorique directe de la diffusion du faisceau d'électrons et la formation de skirt dans le VPSEM, il est essentiel de connaître les sections efficaces associées à l'interaction électron-gaz, puis l'effet de cette interaction sur le transfert du faisceau d'électrons à travers la couche gazeuse et à la distribution spatiale des électrons (profil du faisceau).

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

II.2. Sections efficaces de diffusions :

Il est d'une importance fondamentale d'étudier la diffusion du faisceau d'électrons résultant de la collision des électrons avec les molécules ou les atomes du gaz.

Lors du passage du faisceau d'électrons primaires issu de la colonne optique, à travers la masse gazeuse, un certain pourcentage d'entre eux est l'objet d'événements diffusants. La fraction des électrons diffusés dépend du type de gaz, de la pression de la chambre (P), de l'énergie du faisceau (E) et de la distance de travail (L).

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

Une des premières études de la diffusion des électrons sous faible pression de gaz dans un microscope a été réalisée par Moncrieff et al. [1]. Dans son papier, une analyse théorique de la diffusion d'électrons dans un microscope à faible vide contenant N_2 a été comparée aux résultats expérimentaux obtenus. Cependant, les études ont été réalisées avec un seul régime de diffusion. Ils utilisaient la section efficace différentielle théoriquement obtenues par Lenz [27] qui décrit la diffusion simple des électrons avec les atomes dans les solides. Ces auteurs ont suggéré que cette section efficace de diffusion atomique de Lenz peut être également applicable à la diffusion simple dans les gaz, avec une légère modification dans sa formulation mathématique afin de tenir compte de la diffusion par des gaz moléculaires. Cette hypothèse est fondée sur le fait que la probabilité pour que les électrons subissent plus d'une collision est faible. Les sections efficaces différentielles obtenues par Lenz ont été générées en utilisant la section efficace de Rutherford modifiée en utilisant le modèle théorique de Wentzel [28].

Les sections efficaces inélastiques différentielles atomiques de diffusion utilisées sont issues de la diffusion Compton des rayons X. Toutefois, les facteurs de diffusion incohérents nécessaires ont été obtenus uniquement pour les grands angles de diffusion. Pour les faibles angles de diffusion Moncrief et al. [1] ont utilisé une expression analytique de la section efficace inélastique de Burge et Smith [29]. Puisque l'azote (N_2) a été utilisé dans des expériences, les sections efficaces atomiques différentielles ont été modifiées pour tenir compte des molécules diatomiques.

CHAPITRE II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l'ESEM par la Méthode de monte Carlo

Les sections efficaces élastiques différentielles moléculaires ont été obtenues en utilisant l'approximation indépendante du centre de diffusion de Massey et al. [30], qui donne simplement une section efficace élastique différentielle deux fois supérieure à celle de la section efficace différentielle atomique, multiplié par une expression basée sur des effets de diffraction entre les atomes de la molécule. Cependant de nombreuses hypothèses ont été formulées dans cette approche, tels que (i) les atomes dans la molécule peuvent être considérés séparément comme des centres de diffusion, (ii) les configurations de la liaison moléculaire n'ont pas d'incidence sur les trajectoires électroniques par rapport à ceux d'un atome, (iii) la diffusion multiple au sein d'une molécule est négligeable, (iv) aucune ionisation ne se produit dans le gaz [9]. Les sections efficaces différentielles moléculaires ont été obtenues en supposant que la diffusion moléculaire est incohérente, ce qui conduit à une section efficace différentielle moléculaire d'une valeur exactement double par rapport à celle de la section efficace différentielle inélastique atomique.

Farley et Shah [18] ont également examiné la diffusion d'un faisceau d'électrons sous pression de N_2 et H_2O . Les sections efficaces de diffusions théoriques de N_2 ont été obtenues en utilisant les mêmes méthodes et hypothèses de calcul que ceux de Moncreiff et al. [9]. Toutefois, les sections efficaces de diffusions théoriques obtenues par Farley et Shah [18] sont plus élevées d'environ 50% pour une même énergie du faisceau d'électrons. Cette différence est attribuée à l'utilisation de rayons atomiques différents et de l'absence d'une expression traduisant la diffraction dans la section efficace différentielle de diffusion élastique moléculaire utilisée.

Gauvin a étudié théoriquement la diffusion des électrons [30], pour obtenir de nouvelles procédures de correction afin de réduire les effets du skirt sur les résultats de la microanalyse X quantitative dans l'ESEM ou VPSEM. Sa théorie est basée sur la diffusion simple sous l'hypothèse que les collisions inélastiques sont négligeables, et donc la majorité des électrons diffusés sont provoquées par des collisions élastiques. Cependant, il est important de noter ici que cette hypothèse n'est valable que si l'on s'intéresse uniquement à la fraction d'électrons non diffusés. Pour une étude plus complète incluant les profils de diffusion, la distribution des électrons à l'intérieur du skirt, la taille du spot etc., la section efficace inélastique doit être prise en compte. Dans le cadre du présent travail, nous avons effectivement tenu compte des deux types de section efficace.

Danilatos a également étudié la diffusion des électrons sous pression de gaz [16,17]. Contrairement à Moncreiff et al. [9], Farley et Shah [18], et Gauvin [31], dont les travaux étaient

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

basés sur des diffusions simples, Danilatos [16] a effectué des analyses théorique et expérimentale plus complètes, fondées sur la diffusion multiple.

Danilatos [17] a également utilisé l'équation de Lenz [26] pour calculer les sections efficaces de gaz monoatomiques, mais au lieu d'utiliser les modèles théoriques de Wentzel [26], il choisi d'utiliser des formules élaborées par Jost et Kessler [31] qui ont étudié la diffusion multiple des électrons.

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

a). Gaz monoatomique

On trouve dans la littérature des travaux expérimentaux ayant abouti à la détermination de la section efficace différentielle pour les gaz rares Ne, Ar, Kr , He et Xe [94, 95], mais ces résultats ne sont pas toujours concordants et ne couvrent pas toute la gamme d'énergie et d'angles de diffusion. Tout comme Danilatos ,nous avons décidé d'adopter les formules théoriques utilisées par Jost et Kesler [31] pour $\frac{d\sigma}{d\Omega}$. Ces formules, basée sur les travaux de Lenz [26] sont les suivantes:

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

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

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

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

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

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

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

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

avec R : rayon de l'atome .

J : énergie d'ionisation

E : énergie du faisceau électronique (en eV)

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

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

Deux difficultés majeures apparaissent lors du calcul de la section différentielle par (II. 1) et (II. 2) :

- **Détermination du rayon atomique R** : C'est la distance sur laquelle le noyau, écranté par les électrons des différentes orbitales de l'atome est "actif" et interagit avec l'électron incident. Ce paramètre est inclus dans le modèle atomique de Wentzel [98] pour le potentiel:

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

Différentes expressions de R ont été proposées [32, 33], mais le modèle le plus adapté semble être celui proposé par Burge et Smith [28] qui s'écrit en fonction de l'amplitude de diffusion $f_e(0)$, du rayon de Bohr, et du numéro atomique Z :

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

Ce choix est conforté par le fait que cette relation est en accord avec les résultats expérimentaux pour la mesure de $f_e(0)$ réalisés par Ibères et Vainshtein [34].

- **Choix du potentiel d'ionisation** : Une des possibilités est d'utiliser le potentiel de première ionisation.

Reimer [35] propose cependant de prendre pour J , le potentiel moyen d'ionisation donné par la formule :

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

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

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

Pour $Z \leq 13$, le potentiel moyen d'ionisation s'écrit [36] :

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

Tableau N° 01 : Valeurs du numéro atomique Z et de l'amplitude de diffusion $f_e(\theta)$ pour différents atomes

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

b). Gaz moléculaire

La section efficace de diffusion des molécules n'est pas simplement la sommation de la section efficace élastique et la section efficace inélastique. On doit en effet tenir compte du fait que certains des électrons externes participent aux liaisons entre atomes. Ici aussi, les données expérimentales manquent pour les gaz usuels tels que O_2 , N_2 ou H_2O (vapeur d'eau).

Nous reprenons dans ce qui suit, la démonstration faite par Danilatos [31], basée sur la théorie développée par Mott et Massey [38].

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

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

Avec les conditions suivantes :

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

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

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

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

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

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

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

Ces paramètres sont consignés dans le tableau (N°02) pour les gaz usuels.

Tableau N° 02 : Valeur de la distance interatomique r_{ij} , et de la distance maximum d'interaction r_m et du rapport $2\pi d_0/\lambda$ pour différents gaz moléculaires

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

Remarque :

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

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

N°02, que la condition (II. 14) est satisfaisante tout le temps alors que la condition (II. 13) est d'autant plus satisfaite que l'énergie du faisceau est élevée (faibles longueurs d'ondes). C'est en tenant compte de ces limitations que l'on procédera à l'intégration de l'équation (II. 12) pour le calcul de la section efficace moléculaire totale.

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

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

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

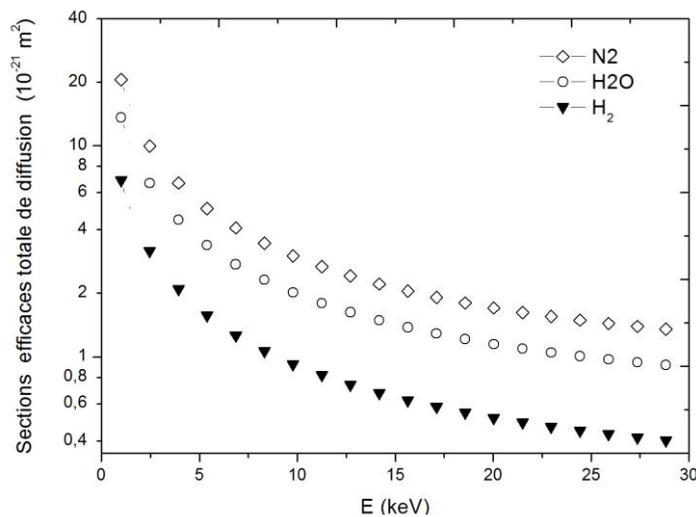


Figure N° 10 : La section efficace totale de diffusion de quelque gaz moléculaire en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons.

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

La figure N°10 montre trois sections efficaces de diffusion en fonction de l'énergie du faisceau primaire pour N₂, H₂O, H₂ obtenus en utilisant la théorie énoncée plus haut. Ils ont également été choisis parce qu'ils sont des gaz couramment employés dans VPSEM. Les courbes ont été générées par intégration numérique des équations (II.12) et (II.16), de θ_0 et θ_E respectivement radians à π . On peut voir que la section efficace de diffusion N₂ est la plus grande, suivis par H₂O, en dépit de la théorie classique montrant que H₂O a le plus grand diamètre suivie par N₂. Les diamètres de N₂ et H₂O sont de 3,75 Å et de 4,60 Å, respectivement [39]. Cela démontre que la probabilité de diffusion d'électrons par les gaz est inversement proportionnelle aux diamètres atomiques et moléculaires et révèle aussi les complexités à dériver des expressions mathématiques des sections efficaces de diffusion du fait que les énergies d'ionisation et les

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

amplitudes de diffusion ne sont pas directement liées à la taille atomique ou moléculaire. Avec ces plusieurs hypothèses indiquées ci-dessus, la théorie néglige les effets de l'ionisation, la dissociation, le transfert de charge et la recombinaison dans le gaz, ainsi que le champ électrique résultant entre les électrodes et l'accumulation de charge de l'échantillon.

REMARQUE IMPORTANTE

Pour les gaz moléculaires, compte tenu de la complexité et des nombreuses hypothèses incluses dans le calcul théorique des sections efficaces ainsi que du nombre considérable d'interactions (dissociation, ionisation, vibration ...), nous avons préféré utiliser des sections efficaces extraites directement de l'expérience. Quand les résultats expérimentaux ne sont pas disponibles, dans certains cas, des formules théoriques autres que celles décrites précédemment seront utilisées, afin de tenir compte de toutes les réactions possibles.

II.3. Transfert du faisceau d'électron-équations de base :

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

La fuite inévitable de gaz par PLA1 est automatiquement compensée grâce à une source externe par le biais d'une valve de contrôle. Cette micro-fuite étant relativement faible, on peut considérer la vitesse du gaz dans la chambre égale à zéro. En conséquence, la pression du gaz est constante à travers la chambre avec des gaz non sujets à la condensation (à la température ambiante). Cependant, pour un gaz qui peut se condenser tel que la vapeur d'eau, aucun gradient de température ne doit exister si on désire obtenir une densité stable et homogène du gaz.

La densité du gaz commence graduellement à diminuer à partir d'une distance qui est de l'ordre de grandeur du diamètre de l'ouverture de PLA1 au-dessous du PLA1, pour chuter brutalement immédiatement au-dessus de PLA1. Les propriétés complètes de l'écoulement sont très difficiles à déterminer et dépendent de la nature du gaz et des conditions initiales du gaz dans la chambre. Les propriétés du gaz dans la zone de transition sont encore plus difficiles à étudier (l'écoulement subit continuellement des oscillations de régime). Jusqu'à présent, seule une simulation par la méthode de Monte-Carlo peut donner une bonne description des propriétés de l'écoulement du gaz.

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

La région de transition qui s'étend à partir de la pression P_0 de la chambre de l'échantillon jusqu'à la pression du vide P_1 au-dessus de PLA1, est schématiquement décrite dans le diagramme de la figure N°11 Cette zone de transition commence par une zone de déplétion sur environ un diamètre D au-dessous du PLA1 et se termine au voisinage du plan appelé "Mach disk" qui est l'onde de choc créé par la collision entre les molécules du gaz sortant à une vitesse supersonique de PLA1 et les molécules en équilibre à la pression P_1 . Au-delà du Mach disk la pression redevient pratiquement uniforme.

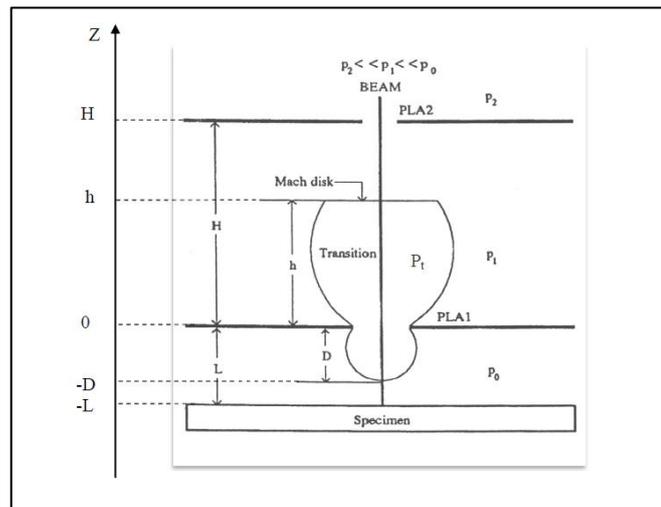


Figure N° 11 : Les différentes zones de concentration de gaz entre l'échantillon et PLA2

Ce schéma général contient trois zones de pression (P_0 , pression de transition P_t, P_1), mais le développement qui va suivre ne fait intervenir que les deux premières zones (P_0 et P_t), lorsque la pression dans la chambre est très grande, ou lorsque PLA1 est très large, ou lorsque la distance entre PLA1 et PLA2 est très petite. Lorsque seules ces deux zones sont présentes, Mach disk est remplacé par l'onde de choc créée par la collision des molécules avec la surface de PLA2. Finalement, la pression au-dessus de PLA1 est quasiment égale à P_1 tel que $P_2 \ll P_1 \ll P_0$.

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

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

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

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

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

Il est important de déterminer quelle est la valeur maximale de m qui permet d'obtenir une image ou de réaliser une microanalyse de manière satisfaisante. On remarque d'après la relation (II. 17), que pour $m = 3$, seule une fraction égale à 5% du faisceau primaire survit sans déviation. On peut considérer que cette valeur est la valeur maximale tolérée de m pour un bon fonctionnement du VPSEM. Le régime de diffusion caractérisé par la condition $m < 3$ est appelé régime "**oligo-scattering**" (oligo-diffusion). D'autres régimes caractérisant l'interaction électron-gaz sont définis, mais ne concernent pas directement le domaine d'utilisation du VPSEM. Ainsi, si on note m_e , le nombre moyen de collisions élastiques par électron, on définit le régime "**plural scattering**" (diffusion plurielle) par $1 < m_e < 25$ et le régime "**multiple scattering**" par $m_e > 25$ [84].

Un cas très important, est celui dit du "**single scattering**" où plus de 95% des électrons primaires subissent au plus une seule collision. Ce régime est caractérisé par la condition [84].

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

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

II.4. Profil du faisceau électronique :

II.4.1. Formulation du problème

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

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

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

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

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

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

Le libre parcourt moyen de l'électron (λ_e) qui est la distance moyenne entre deux chocs successifs est donnée par la formule suivante [40]:

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

Dans le cas où le gaz est suffisamment dilué ou lorsque la distance parcourue L est faible de sorte que l'électron ne subit presque jamais plus d'une seule collision, on peut aisément montrer [106] que la probabilité qu'un électron rentre en collision est égale au nombre moyen de collision.

Pour étudier le comportement du faisceau d'électrons après qu'il rentre en collision avec les atomes du gaz, on doit calculer la probabilité de distribution $V_1(r)$, telle que $V_1(r)2\pi r\delta r$ soit la probabilité qu'un électron se déplaçant initialement sur l'axe d'un cercle de rayon r , soit dévié à l'intérieur de l'anneau élémentaire de surface $2\pi r\delta r$ dans le plan situé à la distance L de PLA1 (fig. N°12).

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

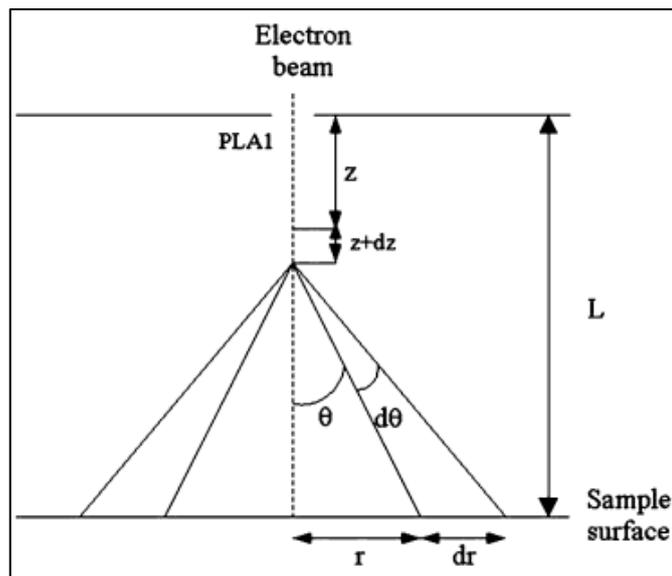


Figure N° 12 : Un électron se déplaçant le long de l'axe de PLA1 subit une collision entre z et $z+dz$ avec un angle entre θ et $d\theta$ et rencontre un plan situé à une distance L de PLA1 dans un anneau d'épaisseur δr

Deux cas sont à envisager :

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

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

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

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

L'hypothèse qu'un électron ne subit pas plus d'une collision n'est vraie que pour des très basses pressions. Cependant, pour les pressions utilisées dans les VPSEM, on a $m=1$ et souvent $m=2$ ou 3 suivant le choix des paramètres d'utilisation. Dans le cas le plus fréquent où $m=1$, 37% des électrons ne subissent aucune collision; 37% subissent 1 collision 18% subissent 2 collisions; 6% subissent 3 collisions, 1.5% subissent 4 collisions etc. Par suite, on n'est pas certain que la prédiction de la probabilité de distribution soit toujours donnée par l'équation (N°12).

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

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

La probabilité de distribution $V(r)$ pour la diffusion multiple de l'électron a été publiée par Jost et Kesler (1963) [36] qui se sont basés sur la théorie de la distribution angulaire des électrons diffusés dans un milieu [41]. Avec un nombre moyen de collision m quelconque, cette probabilité de distribution est :

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

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

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

L'équation générale précédente (II. 22) n'est valable que pour des angles de diffusion $\theta = \frac{r}{L-z}$ très faibles, ce qui est en accord avec les angles de diffusions qui se produisent dans le VPSEM parce que la plupart des électrons sont diffusés dans un cône de demi-angle 10^{-2} ou 10^{-1} rad. Cependant, il y a 2 difficultés majeures pour résoudre cette équation :

1. On doit connaître la section efficace différentielle pour différents gaz pour des énergies variant de 5 à 50 keV. Cela n'est pas facile pour les gaz utilisés tel que N_2 , O_2 , H_2O , puisque les données expérimentales ou théoriques font souvent défaut.
2. La seconde difficulté est la résolution de l'intégrale triple de l'équation (II. 22) parce que les fonctions à intégrer sont des fonctions qui oscillent avec des fréquences et des amplitudes variables, et l'intégration numérique demande un grand temps de calcul.

Ces difficultés peuvent être surmontées en ayant recours à des calculs numériques de type Monte-Carlo. Cette méthode a été plus utilisée pour simuler les trajectoires des électrons dans des cibles de nature solide, mais pour les gaz, cette méthode a été peu exploitée, excepté quelques logiciels commerciaux de simulation.

Afin de résoudre le problème soit analytiquement soit numériquement, nous avons besoin à la fois de la section efficace différentielle et de la section efficace totale.

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

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

Le profil d'un faisceau infiniment fin (c.à.d dont le diamètre de la sonde est négligé) peut être utilement décrit en introduisant le rayon réduit ρ défini par [43]:

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

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

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

Schumacher [42] a montré que le faisceau centré qui passe dans le gaz subit un élargissement sous la forme d'une jupe (skirt), qui est constitué par les électrons diffusés autour de l'axe d'incidence. Ce phénomène est appelé Skirting. La conséquence sur le fonctionnement du VPSEM est qu'il est possible d'utiliser la partie du faisceau non déviée à condition que la taille originale de la sonde électronique soit bien plus petite que la largeur du skirt et que cette partie du faisceau contienne suffisamment d'électrons pour avoir un bon contraste.

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

Ce rayon de skirt est représenté sur la figure (N°13). La courbe obtenue a la forme d'un "S" qui diminue quand m diminue sans pour autant passer par $\rho_{1/2} = 0$ pour $m \rightarrow 0$. C'est raisonnable comme comportement parce que le skirt du faisceau est fini lorsque $m \rightarrow 0$ et la probabilité qui lui correspond $V(\rho) \rightarrow 0$.

Une autre interprétation est que pour une extrême basse pression il est improbable que l'électron subisse une collision mais lorsque cela se produit, il en résulte un élargissement fini du faisceau d'électron. Cela est présenté sur la figure (N°13).

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

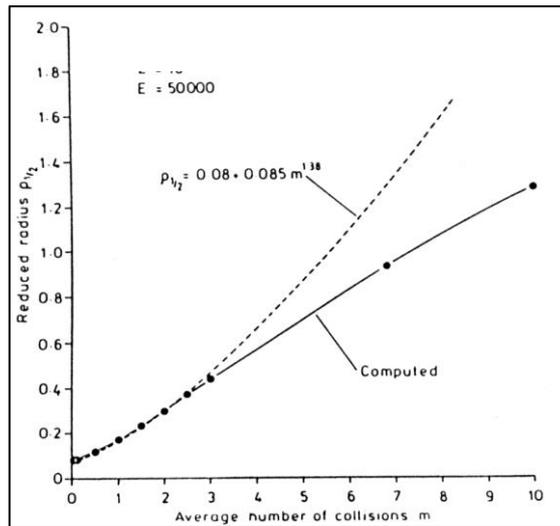


Figure N° 13 : Variation du rayon du skirt pour différents nombres moyens de diffusion

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

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

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

Pour le carbone et pour $m > 5$, Reimer et al [43] donnent la relation :

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

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

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

On obtient l'équation finale de $r_{0,5}$:

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

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

Une relation semblable à celle (II.28) ont été obtenues pour Ar pour une tension d'accélération de 10 keV et à la température 293K [49]:

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

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

Smith et Schumacher [44] ont donné une formule pour calculer le skirt qui est la suivante :

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

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

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

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

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

En général, et pour la majorité des gaz, le rayon de skirt $r_{0.5}$ peut être décrit analytiquement par l'expression suivante [16]:

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

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

Z : nombre atomique du gaz

E : énergie du faisceau, (eV)

P : pression, (Pa)

T : temperature, (K)

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

Remarque : le rayon $r_{0.5}$ ou $\square_{0.5}$ est pratique pour harmoniser les résultats et sert de base de comparaison. Cependant, il ne décrit pas l'étendue réelle du skirt. D'autre part, il est statistiquement difficile de définir r (100%). Pour cela, il nous semble que le rayon le mieux à même de décrire l'élargissement est $r_{0.9}$ qui a la même définition que $r_{0.5}$ en utilisant 90% des électrons au lieu de 50%. De plus ; une relation du type II.32 est difficilement exploitable quand il s'agit d'un mélange de gaz. Par conséquent, nous pensons que la meilleure estimation de l'étendue du skirt est représentée par le calcul de $r_{0.9}$ par un programme de simulation du type Monte Carlo, comme nous le verrons plus loin.

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

II.5.Monte-Carlo dans le gaz :

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

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

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

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

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

a) Description des collisions

Dans le microscope électronique à balayage à haute pression, existe une zone de transition près du PLA. Cela signifie que les électrons du faisceau primaire ne sont pas forcés à faire des collisions avec les molécules de gaz lors de leur première entrée dans la chambre d'analyse. Un choix pourrait être fait entre deux solutions (collision avec une probabilité p , ou pas de collision) en choisissant un nombre aléatoire ($0 < \text{RND} < 1$) et en précisant que si $\text{RND} > p$, alors il n'y a pas de collision et l'électron suit son parcours sur une distance L_p , sinon, une collision se produit. La probabilité de collision, p , est déterminée par [45]:

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

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

où n est la densité atomique (moléculaire) du gaz et $\sigma_t(E)$ est la section efficace totale de collision avec un atome ou molécule. L_p peut être défini comme le libre parcours moyen qui est la distance moyenne parcourue par toutes les particules (atomes ou molécules) entre deux collisions mutuelles [16] :

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

b) Parcours électronique entre deux chocs

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

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

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

c) Angles de diffusions

L'angle de déviation est donné par :

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

R_{n2} une variable aléatoire répartie d'une façon uniforme sur l'intervalle,] 0, 1. Cette dernière équation peut être aussi donnée par la forme différentielle de la section efficace de Rutherford où : $a = 0.0034Z^{0.67} / E^2$, est un facteur de diffusion.

Pour les angles de diffusion **inélastique** nous avons utilisé la relation d'Egerton 1996 [46]:

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

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

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

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

d) Pouvoir d'arrêt

La perte d'énergie est décrite par une expression introduite par Bethe [135] et modifiée par Joy et Luo [47] :

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

où E est l'énergie de l'électron (keV), Z et A sont, respectivement, le nombre atomique et la masse atomique de la cible (ici c'est le gaz), ρ est la densité du gaz, et S c'est la distance mesurée

CHAPITER II : Etude de l'interaction électron-gaz dans la chambre d'analyse de l' ESEM par la Méthode de monte Carlo

le long de la trajectoire de l'électron. J , est le potentiel moyen d'ionisation en keV. Finalement l'énergie perdue sera calculée par la relation suivante :

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

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

e) Trajectoire de l'électron

Une fois que l'électron entre en interaction avec la cible, il change de direction et s'enfonce dans le volume du gaz tout en cédant une partie de son énergie. Les coordonnées de l'électron sont calculées par suivant les relations [48] :

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

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

Chapitre III:

Résultats et
discussion sur
interaction électron-
gaz dans le ESEM-
application au
DIOXIDE de carbone
CO₂ et comparaison
avec H₂O

CHAPITE III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM-application au DIOXIDE de carbone CO₂ et comparaison avec H₂O

III. 1 Application aux trajectoires dans CO₂ et H₂O:

Nous avons choisi de comparer les résultats pour CO₂ avec d'une part, la vapeur d'eau, gaz moléculaire largement utilisé dans le domaine des observations biologiques.

L'application directe de programme pour tracer les trajectoires électroniques dans l'ESEM. On a fait varier la pression du gaz, l'énergie du faisceau d'électrons, la distance de travail et la nature de l'élément chimique, afin de voir l'effet de ces paramètres sur le comportement du faisceau électronique lors de son passage dans la chambre d'analyse.

m : le nombre de collisions par électron.

R : pourcentage des électrons rétrodiffusés.

Remarque : Tous les résultats de ce mémoire ont été obtenus à la température ambiante.

III.1.1. Effet de la pression :

- 250Pa

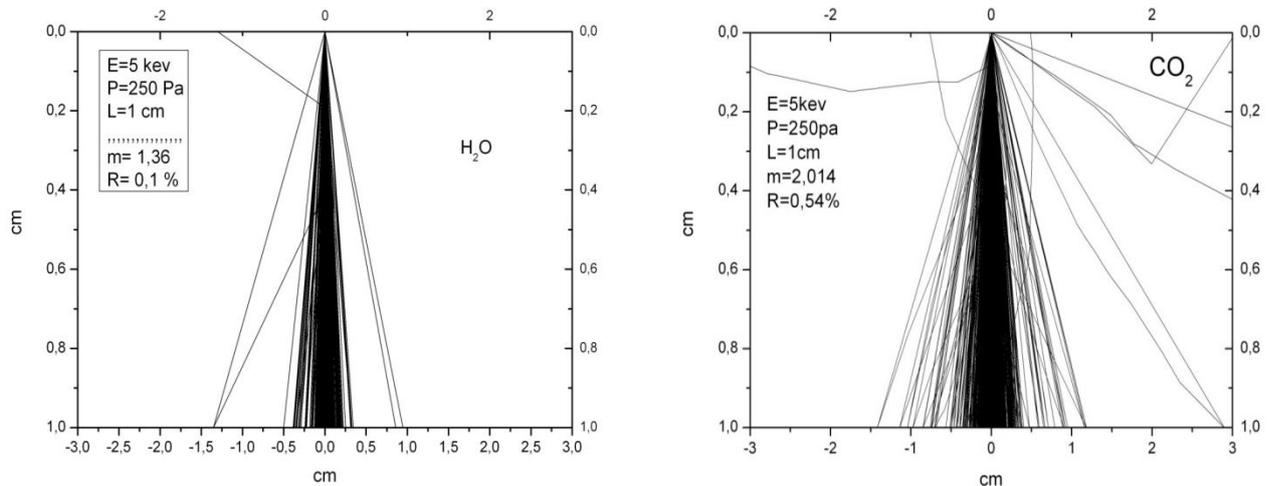


Figure N° 14 : Trajectoires électroniques pour les deux gaz (H₂O et CO₂) à la pression de 250 Pa

CHAPITE III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM-application au DIOXIDE de carbone CO₂ et comparaison avec H₂O

- **P=1300 Pa**

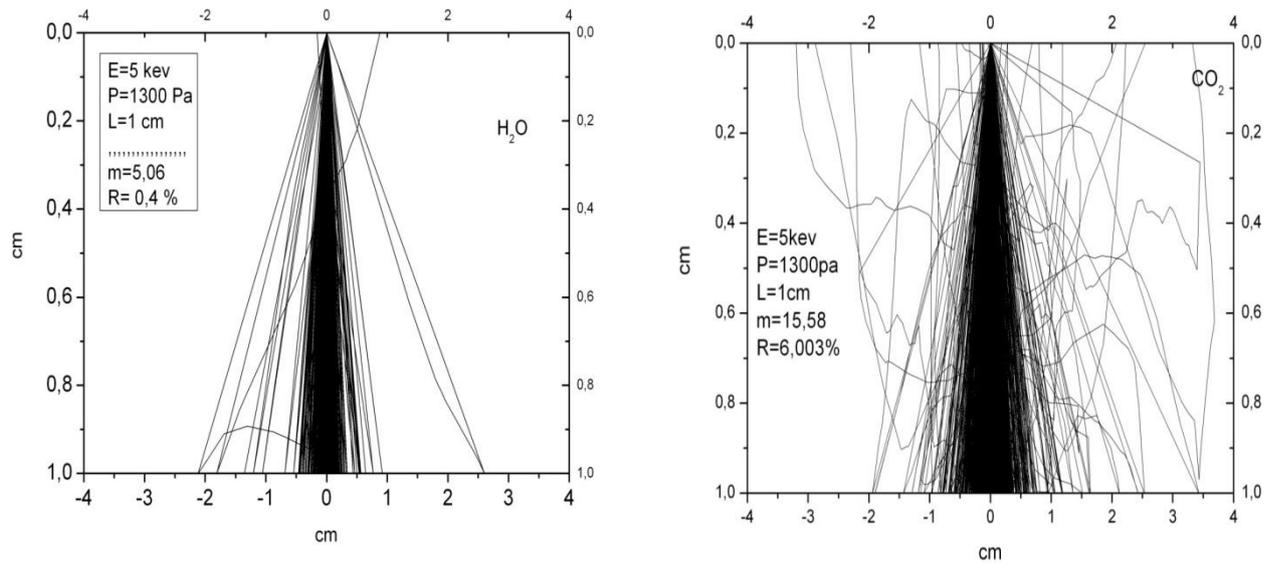


Figure N° 15 : Trajectoires électroniques pour les trois gaz (H₂O et CO₂) à la pression 1300 Pa.

On voit bien dans tous les cas, l'effet de la présence du gaz qui se traduit par un élargissement du faisceau (skirting).

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

Pour le CO₂ on voit bien que l'augmentation de la pression du gaz entraîne une augmentation de l'élargissement du faisceau électronique, les électrons rétrodiffusés, ainsi que le nombre moyen de collision par électron.

III.1.2. Effet de l'énergie :

Afin d'étudier l'effet de l'augmentation de l'énergie, nous avons effectué nos calculs d'abord pour 10 keV, puis à plus grande énergie (30 keV).

- **E=10 keV**

CHAPITE III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM-application au DIOXIDE de carbone CO₂ et comparaison avec H₂O

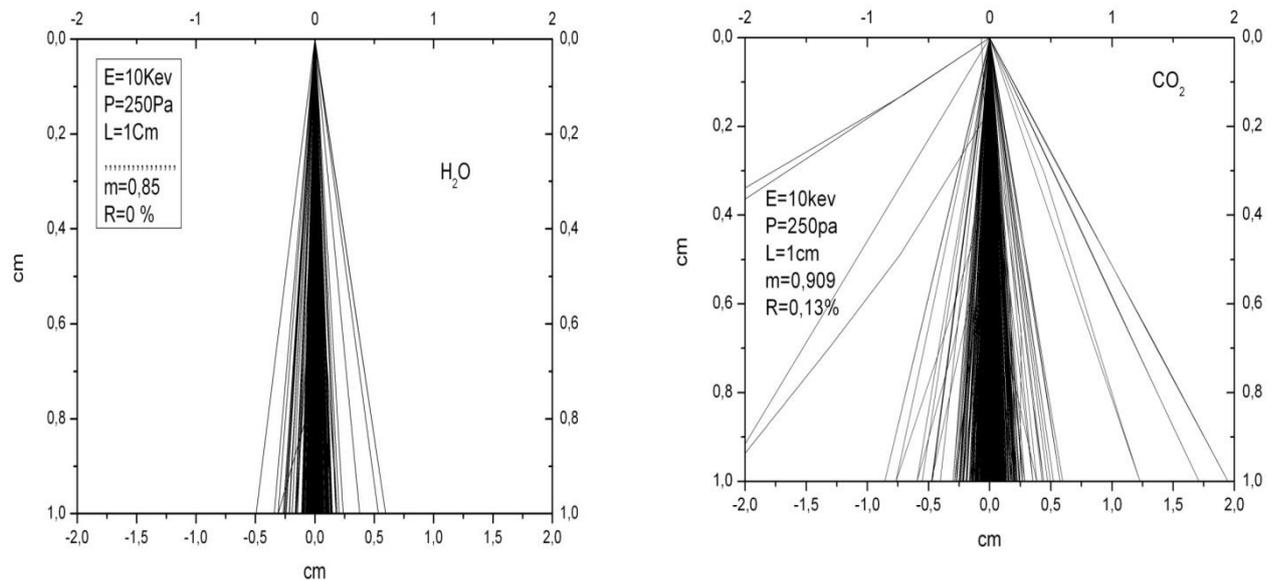


Figure N° 16 : Trajectoires électroniques pour les deux gaz (H₂O et CO₂) à énergie 10 keV

- E=30 keV pour H₂O, et E=25 keV pour le CO₂.

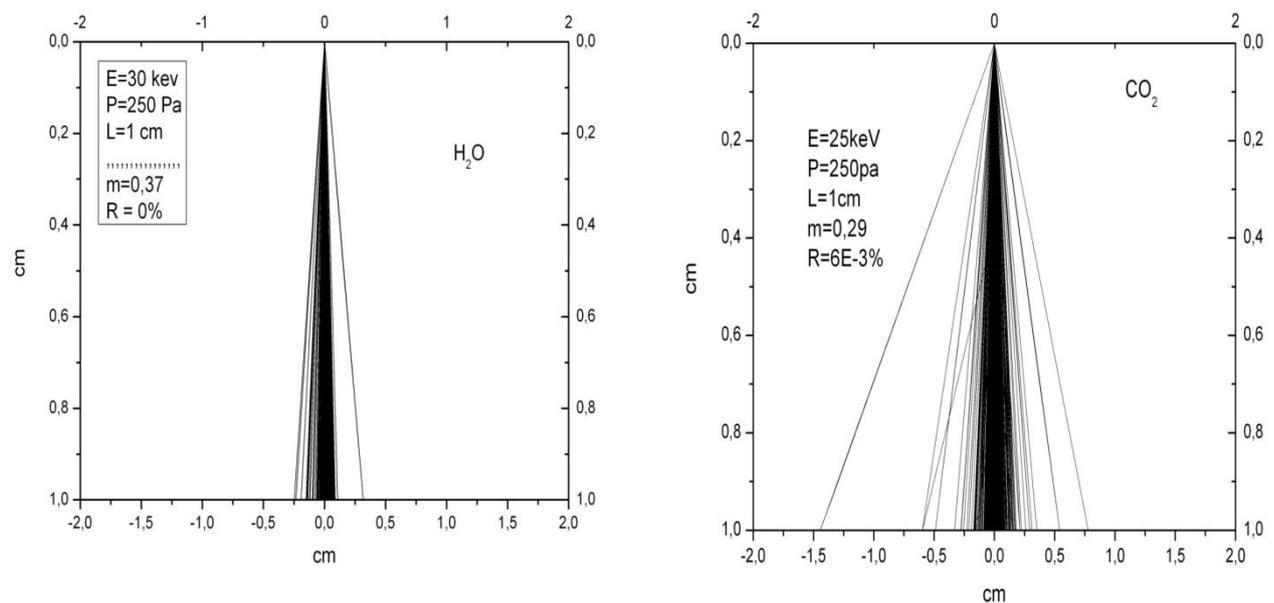


Figure N° 17 : Trajectoires électroniques pour les deux gaz (H₂O et CO₂) à grande énergie (30 keV) pour, H₂O et 25 keV pour le CO₂

On voit bien sur ces dernières figures, que pour la même pression et la même distance de travail, l'élargissement du faisceau diminue en augmentant l'énergie du faisceau incident. De plus, nous avons vérifié pour le CO₂ que les électrons rétrodiffusés apparaissant sur la figure N°17 obtenue à 5 keV disparaissent à 25 keV du fait de la prédominance de la section efficace de diffusion inélastique à grande énergie, d'où les faibles angles de déviations. L'élargissement du

CHAPITE III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM-application au DIOXIDE de carbone CO₂ et comparaison avec H₂O

faisceau est dû à l'augmentation du nombre de collisions qui augmentent si le libre parcours moyen diminue.

III.1.3. Effet de la distance de travail :

- **L=0.5cm**

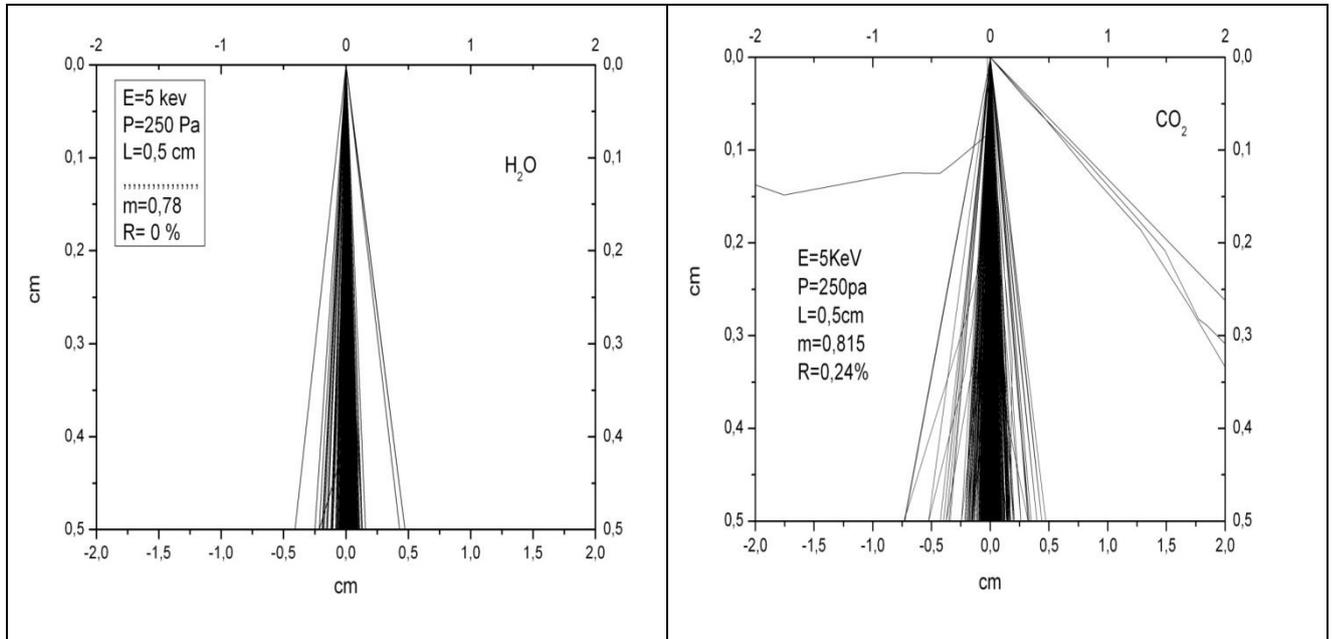


Figure N° 18 : Trajectoires électroniques pour les deux gaz (H₂O et CO₂) pour une distance de travail de 0.5

- **L=3cm :**

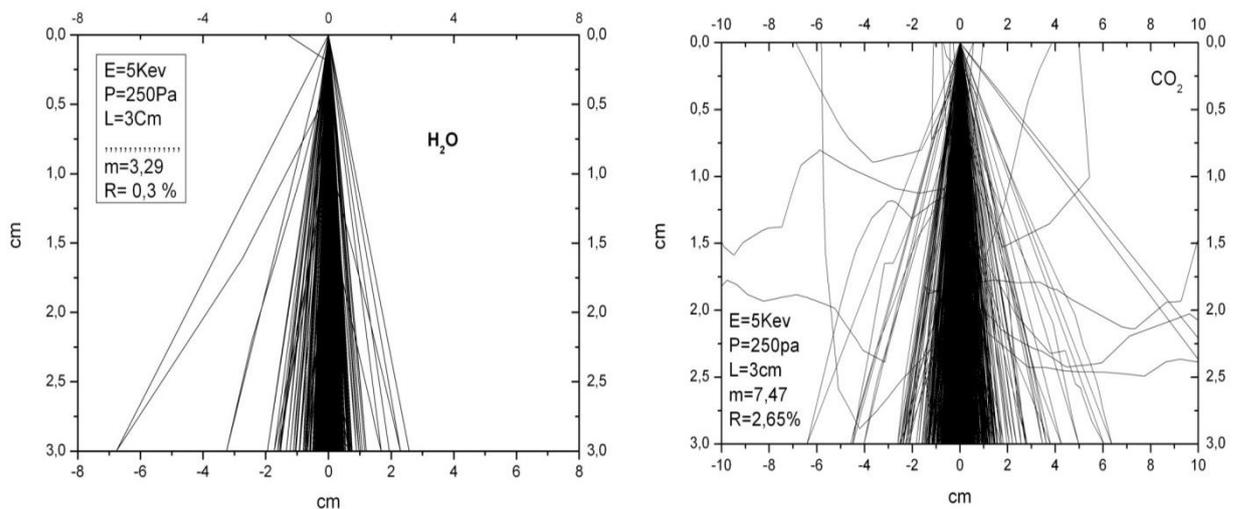


Figure N° 19 : Trajectoires électroniques pour deux gaz (H₂O et CO₂) pour une distance de travail 3 cm.

Nous vérifions qu'en augmentant la distance de travail, l'élargissement du faisceau augmente, cette augmentation est due à l'augmentation du nombre de collisions.

CHAPITE III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM-application au DIOXIDE de carbone CO₂ et comparaison avec H₂O

Le pourcentage d'électrons rétrodiffusés augmente pour le CO₂ et la vapeur d'eau.

Pour l' H₂O l'augmentation de la distance de travail donne un élargissement plus faible que l'élargissement pour CO₂ (figure N° 19).

III.1.4 Effet de la nature chimique de l'élément :

D'après les figures précédentes, on voit que pour la même énergie, même pression et la même distance de travail, l'élargissement est plus important pour le CO₂ que pour la vapeur d'eau, Cette différence est due à la nature chimique de l'élément choisi. Plus ce dernier possède une section efficace de diffusion grande, plus le nombre de collisions des électrons augmente, ce qui entraîne un élargissement plus important.

III.1.5. Conclusion sur l'effet des quatre paramètres :

D'après les figures précédentes, nous ne constatons que chaque paramètre à un effet sur le comportement du faisceau électronique lors de son passage dans la chambre d'analyse.

On voit sur les figures (N°14 jusqu'on N°19) pour un gaz donné, que l'élargissement du faisceau électronique augmente avec l'augmentation de la distance de travail et la pression et diminue avec l'augmentation de l'énergie.

Pour le CO₂, on note bien que le nombre des électrons rétrodiffusées qui apparaissent est plus important pour une grande pression et grande distance de travail (voir figure III. 3, III. 6). Pour l'He les électrons rétrodiffusés apparaissent pour une faible énergie et grande pression (III. 3). Pour la vapeur d'eau le profil du faisceau reste intermédiaire entre les deux gaz.

Le comportement du faisceau électronique dans les deux gaz sous l'effet des quatre paramètres : l'énergie, la pression, la distance de travail et la nature du gaz provient de la différence de la section efficace de diffusion,. Le libre parcours moyen de l'électron dans le gaz est inversement proportionnel à la section efficace de diffusion (équation II.12), donc il est plus petit dans CO₂ que dans H₂O ou. La probabilité d'obtenir des électrons rétrodiffusés dans CO₂ est par conséquent plus grande.

III.2.Variation de la fraction diffusée en fonction du rayon de skirt :

Dans ce paragraphe nous avons calculé pour chaque énergie et différentes pressions, les rayons qui contiennent différentes fractions des électrons diffusés.

CHAPITE III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM-application au DIOXIDE de carbone CO₂ et comparaison avec H₂O

Pour H₂O P=133.3 Pa

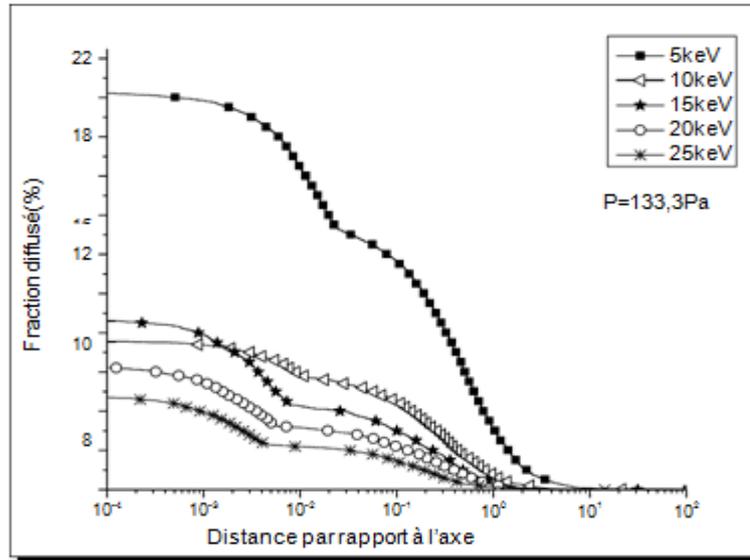


Figure N° 20 : Pourcentage de la fraction diffusée pour différentes énergies.

E=15 keV :

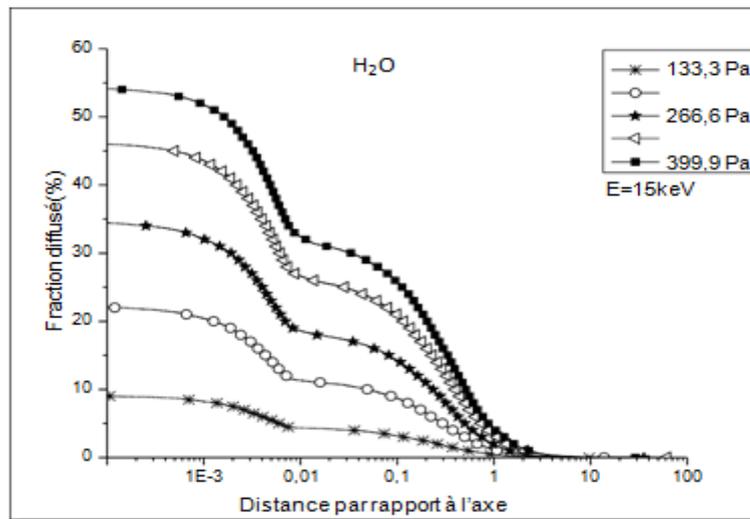


Figure N° 21 : Pourcentage de la fraction diffusée pour différentes pressions.

Pour le CO₂ : P=133.3 Pa

CHAPITE III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM-application au DIOXIDE de carbone CO₂ et comparaison avec H₂O

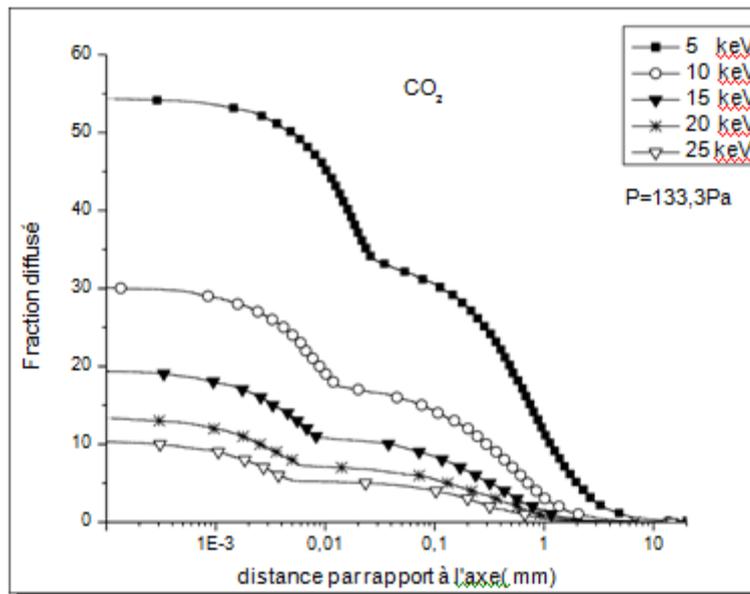


Figure N° 22 : Pourcentage de la fraction diffusée pour différentes énergies.

E=15 keV :

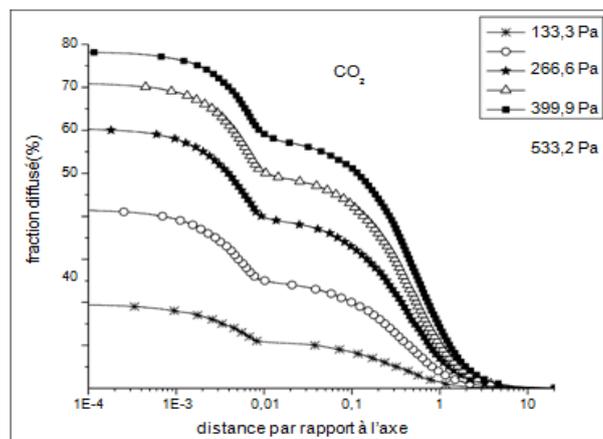


Figure N° 23 : Pourcentage de la fraction diffusée pour différentes pressions.

La forme des courbes (N°20 à N°23) est composée de deux régions : intérieure et extérieure, qui correspondent respectivement à la diffusion inélastique et élastique. Nous constatons aussi que la fraction des électrons diffusés augmente à mesure que la pression du gaz est augmentée pour une énergie donnée et qu'elle diminue quand on augmente l'énergie du faisceau à pression constante. Ceci résulte de la relation II.9 qui donne le nombre moyen de collision m . Lorsqu'on augmente l'énergie du faisceau, la section efficace diminue et m diminue d'où le rétrécissement du faisceau.

CHAPITE III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM-application au DIOXIDE de carbone CO₂ et comparaison avec H₂O

III.3. Calcul de la fraction des électrons non diffusés :

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

1.Cas de H₂O :

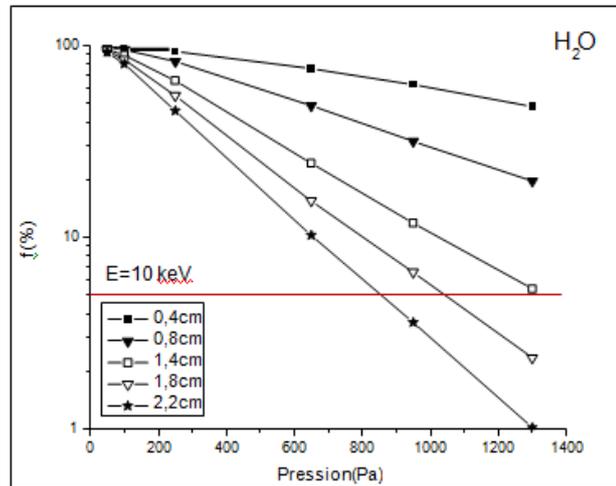


Figure N° 24 : Variation de la fraction des électrons non diffusés en fonction de la pression et pour différentes distances de travaux pour H₂O

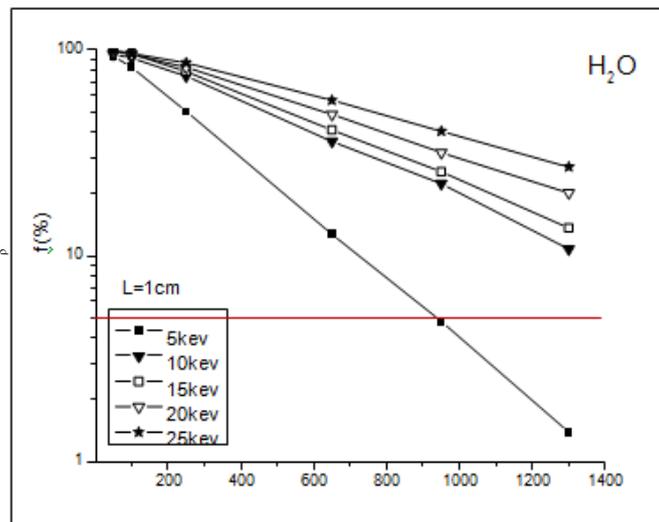


Figure N° 25 : Variation de la fraction des électrons non diffusés en fonction de la pression et pour différentes Energies pour H₂O

CHAPITE III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM-application au DIOXIDE de carbone CO₂ et comparaison avec H₂O

2.Cas de CO₂ :

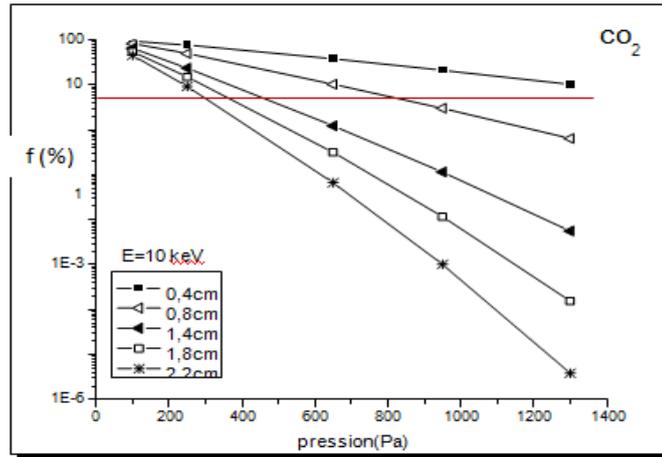


Figure N° 26 : Variation de la fraction des électrons non diffusés en fonction de la pression et pour différentes distances de travail pour CO₂

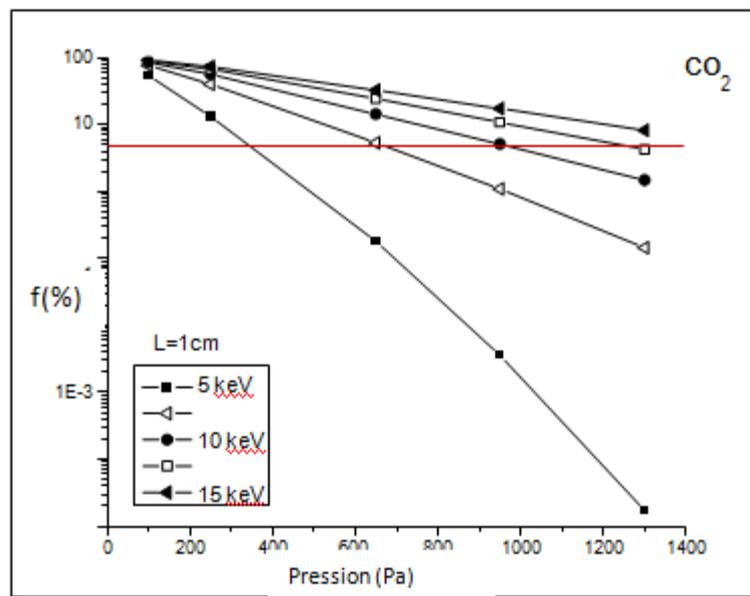


Figure N° 27 : Variation de la fraction des électrons non diffusés en fonction de la pression et pour différentes Energies pour CO₂

On constate d'après les graphes (N°24 à N°27) que la fraction des électrons non diffusés diminue avec la diminution de l'énergie et l'augmentation de la pression et la distance de travail.

L'examen de ces courbes montre que les fractions des électrons non diffusés diminue avec la pression avec une allure exponentielle ceci apparait clairement sur la figure (N°28) où nous avons regroupé des courbes typiques pour les trois gaz pour l'hélium en utilisant les

CHAPITE III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM-application au DIOXIDE de carbone CO₂ et comparaison avec H₂O

résultats de mémoire [50] avec nos résultats. Quand on augmente la pression, la diminution de la fraction des électrons non diffusés est plus lente pour He et H₂O que pour CO₂. L'effet de la pression est donc plus prononcé sur CO₂ que sur les deux autres gaz.

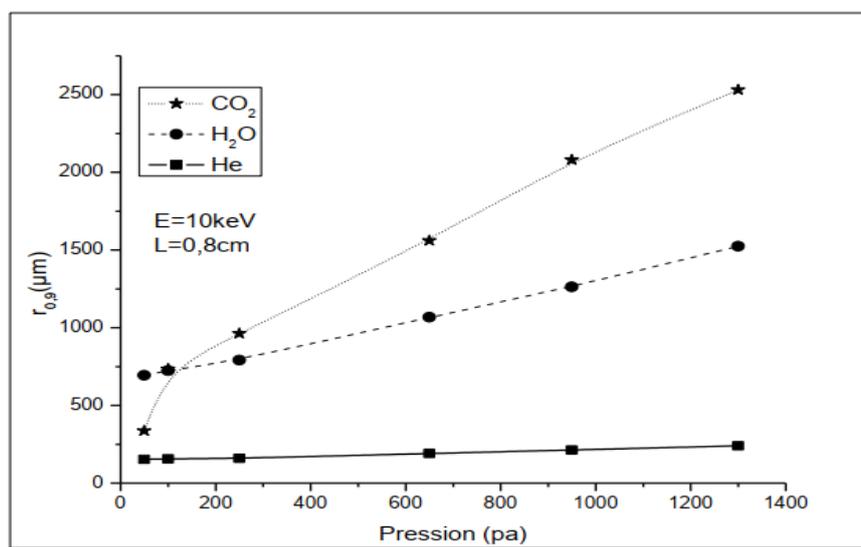


Figure N° 28 : Variation de la fraction des électrons non diffusés en échelle logarithmique en fonction de la pression pour, He, H₂O et CO₂

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.

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.

III.4. Domaine des faibles pressions :

Compte tenu des résultats précédents, nous pensons que le domaine des faibles pressions mérite une attention particulière. Rappelons tout d'abord que le profil du faisceau d'électrons s'élargit à mesure que la pression du gaz est augmentée pour une énergie donnée et qu'il se rétrécit quand on augmente l'énergie du faisceau, à pression constante. On a remarqué que cet élargissement apparaît grand pour le CO₂ que pour la vapeur d'eau, et l'hélium à grande pression (figure N°28). Une première interprétation des résultats résultent

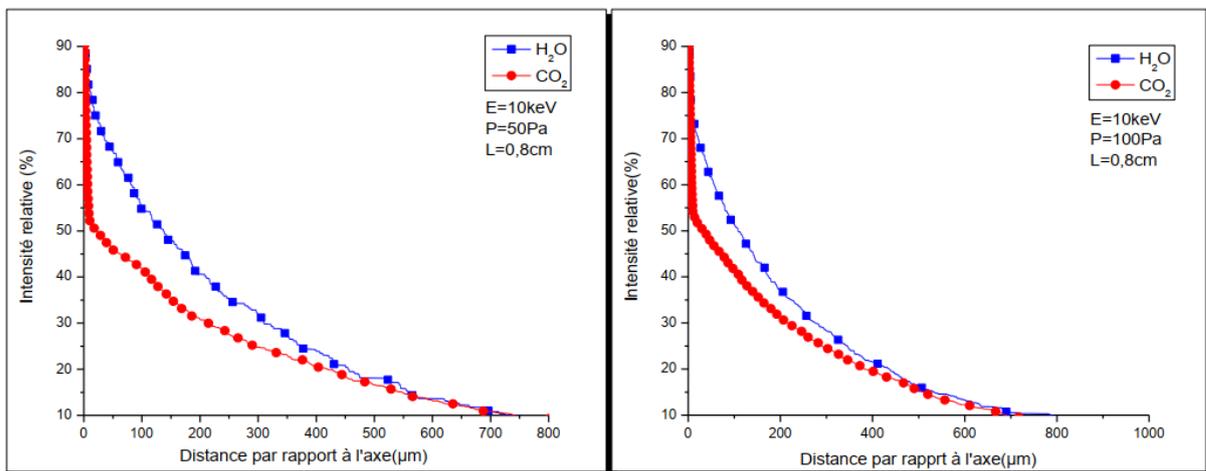
CHAPITE III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM-application au DIOXIDE de carbone CO₂ et comparaison avec H₂O

immédiatement de la relation (II.9) qui donne le nombre moyen de diffusion par électron m . En effet, quand on augmente la pression, ce nombre augmente, et le faisceau s'élargit. De même, quand on augmente l'énergie du faisceau électronique, la section efficace diminue et m diminue, d'où le rétrécissement du faisceau.

Cependant cette approche est mise en défaut dans le domaine des faibles pressions à 10 keV et 0,8 cm. Pour $P < 100$ Pa le CO₂ donne un élargissement plus faible que celui de H₂O.

En outre et à partir de ce graphe, on voit de nouveau que l'effet de la pression est plus prononcé pour le CO₂, comme déjà observé pour les fractions non diffusées.

Afin de mieux observer le profil du faisceau à faible pression, nous avons tracé les figures ci- dessous pour H₂O et CO₂.



a-50 Pa

b-100 Pa

Figure N° 29 : Profil du faisceau pour H₂O et CO₂ à faibles pressions.

Ces résultats mettent en évidence un domaine de pression (basses pressions) et de tension (basses et moyennes tensions), où le gaz CO₂ apparaît meilleur que H₂O à la fois du point de vue de la minimisation du skirt que du profil diffusé.

CHAPITE III : Résultats et discussion sur interaction électron-gaz dans le ESEM-application au DIOXIDE de carbone CO₂ et comparaison avec H₂O

III.5. Conclusion :

Ce chapitre rassemble les résultats de nos calculs Monte Carlo sur les effets des deux gaz que nous avons choisi (H₂O et CO₂) sur le comportement du faisceau électronique du microscope. Il apparaît clairement que; les deux autres gaz ont des comportements intéressants, la vapeur d'eau présentant les meilleures caractéristiques.

Cependant, nous avons montré que dans le domaine des basses pressions et pour des tensions pas trop élevées, ces deux gaz sont interchangeables, ce qui ouvre de belles potentialités pour le dioxyde carbone comme gaz à utiliser dans la chambre d'analyse pour certaine applications particulières où ce gaz a son utilité.

Conclusion Générale

Conclusion générale

Nous avons défini graduellement le principe de microscopie électronique à balayage sous pression de gaz, comme amélioration apportée à la microscopie électronique, en mettant l'accent sur l'utilisation du le dioxyde de carbone, un gaz moléculaire pouvant être utilisé dans la chambre d'analyse

Nous avons commencé par décrire tout un ensemble d'outils destinés à l'étude de l'interaction du faisceau d'électrons de la sonde avec le gaz dans la chambre d'analyse et à l'effet de cette interaction sur le transfert du faisceau d'électrons à travers la couche gazeuse et à la distribution spatiale des électrons (profil du faisceau), afin de prédire par la simulation Monte Carlo, le comportement du faisceau électronique lors de sa traversée de la chambre d'analyse du microscope.

Nous avons choisi de mener ce travail sur deux moléculaire(CO_2) et (H_2O)

On constate aussi que la fraction des électrons non diffusés diminue exponentiellement quand la pression augmente. La diminution de la fraction des électrons non diffusés est plus lente pour H_2O que pour CO_2 . L'effet de la pression est donc plus prononcé sur CO_2 que sur les deux autres gaz. 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. Nous avons tracé sur les graphes de H_2O et CO_2 une ligne horizontale à $f_p = 5\%$ correspondant au minimum requis pour le signal restant. Pour le CO_2 et pour des basses tensions (ici 5 keV) et une distance de travail de 1 cm (habituellement utilisée dans les ESEM), il faut une pression inférieure à environ 300 Pa, ce qui n'est pas le cas de la vapeur d'eau qui donne un bon signal même si cette pression est doublée. La ligne horizontale n'est pas tracée pour He car ce gaz convient à toute pression dans les domaines étudiés.

Le CO_2 donne un skirt plus faible que celui de H_2O . Jusqu'à environ 133 Pa (1 Torr), c'est le CO_2 qui se présente comme le meilleur candidat du point de vue de la minimisation du skirt, mais au-delà de cette pression l'utilisation de la vapeur d'eau peut donc s'avérer profitable. A faible pression l'électron subit au plus 1 collision, donc au maximum au plus une déviation avec un angle θ qui varie suivant la nature de la diffusion élastique ou inélastique (ionisation). D'autre part, la contribution à la section efficace totale de diffusion à grande énergie est totalement d'origine inélastique (probabilité de diffusion à très faible angle) et qui est la plus grande pour le CO_2 suivit de la vapeur d'eau, ce qui entraîne un faible élargissement pour le CO_2 devant celui la vapeur d'eau. Nous pouvons conclure qu'en général, le CO_2 est un mauvais candidat du point de vue du skirt.

CONCLUSION GENERALE

Mais son bon potentiel d'ionisation (bonne section efficace inélastique) permet d'envisager un mélange de gaz contenant le CO₂ pour sa facilité d'ionisation et donc de neutralisation de charge et de l'hélium pour ses vertus de minimisation du skirt. Ceci bien entendu, en gardant en mémoire les exigences d'applications comme la DIC. Cependant, si ce gaz est utilisé seul, et compte tenu de nos résultats, nous préconisons son utilisation à faibles pressions et grande énergie où il peut surclasser la vapeur d'eau, surtout à faible distance de travail. Ceci peut constituer les conditions optimales pour l'observation en ESEM de la destruction des microorganismes sous CO₂.

Références Bibliographiques

- [1] 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).
- [2] Swift, J.A. and Brown, A.C. (1970). Environmental Cell for Examination of Wet Biological Specimens At Atmospheric Pressure By Transmission Scanning Electron Microscopy. *J. Phys. E – Sci. Instr.*, 3(11), 924.
- [3] Parsons, D. (1975). Radiation Damage in Biological Materials, in *Physical Aspects of Electron Microscopy and Microbeam Analysis*. B. Siegel, New York: pp. 259–265.
- [4] Lane, W.C. (1970). The environmental cold stage. *Proceedings of the Third Scanning Electron Microscopy Symposium*, IIT Research Institute, Chicago, IL, 60616.
- [5] Robinson, V.N.E. (1975). The elimination of charging artifacts in the scanning electron microscope. *J. Phys. E: Sci. Instr.* 8(8), 638–640.
- [6] Robinson, V.N.E. (1974). A wet stage modification to a scanning electron microscope. *Proc. 8th Int. Cong. Electron Microscopy*, Canberra, Aust. Acad. Sci.
- [7] Robinson, V.N.E. (1996). SEM at high chamber pressures. <http://www.microscopy.com/MicroscopyListserver/MicroscopyArchives.html> (November 19, 1996).
- [8] Von Engel, A. (1965). *Ionized Gases*, Clarendon Press, Oxford
- [9] Moncrieff, D.A., Barker, P.R. and Robinson, V.N.E. (1979). Electron scattering by the gas in the scanning electron microscope, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 12(4), 481–488.
- [10] Shah, J.S. and Beckett, A. (1979). A preliminary evaluation of moist environment ambient temperature scanning electron microscopy (MEATSEM). *Micron*, 10, 13–23.
- [11] Neal, R.J. and Mills, A. (1980). Dynamic Hydration Studies In An SEM. *Scanning*, 3(4), 292–300.
- [12] Danilatos, G.D. (1990b). U.S. Patent No. 4,897,545: Electron detector for use in a gaseous environment, ElectroScan Corporation.
- [13] Danilatos, G. (1989a). Mechanisms of Detection and Imaging in the ESEM. *J. Microsc.*, 160(pt. 1), 9–19.
- [14] Farley, A.N. and Shah, J.S. (1991). High-Pressure Scanning Electron-Microscopy Of Insulating Materials – A New Approach. *J. Microsc.–Oxford*, 164, 107–126.
- [15] 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
- [16] Danilatos, G.D. (1988). Foundations of environmental scanning electron microscopy. *Advances in electronics and electron physics*, 71, 109-250

Références Bibliographiques

- [17] Danilatos G.D. (1994a). Environmental scanning electron microscopy and microanalysis. *Mikrochimica Acta*, 114/115, 143–155
- [18] 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 .
- [29] Gillen, G., Wight, S., Bright, D. and Herne, T. (1998). Quantitative secondary ion mass spectrometry imaging of self-assembled monolayer films for electron beam dose mapping in the environmental scanning electron microscope. *Scanning*, 20, 400–409.
- [20] Kadoun A, Belkorissat R, Khelifa B, Mathieu C. *Vacuum* 2003; 69: 537–543.
- [21] 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
- [22] 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.
- [23] Thiel, B.L., Bache, I.C. and Smith, P. (2000). Imaging the probe skirt the environmental SEM. *Microsc. Microanal.*, 6(Suppl. 2), 794–795.
- [24] Wight, S., Gillen, G. and Herne, T. (1997). Development of environmental scanning electronmicroscopy electron beam profile imaging with self-assembledmonolayers and secondary ion mass spectroscopy. *Scanning*, 19, 71–74.
- [25] Wight, S.A. (2001). Experimental data and model simulations of beam spread in the envi-ronmental scanning electron microscope. *Scanning*, 23, 320–327
- [26] Lenz, F. (1954). Zur streuung mittelschneller elektronen in kleinste winkel (Scattering of medium energy electrons in very small angles). *Zeitschrift Naturforschung*, 9a,185–204
- [27] Wentzel, G. (1926). Dispersion of corpuscular rays as di raction appearances. *Zeitschrift furPhysik*, 40, 590–593
- [28] Burge, R.E., Smith, G.H. (1962). A new calculation of electron scattering cross-sections and a theoretical discussion of image contrast in the electron microscope. *Proceedings of the Physical Society*, 79, 673–690 .
- [29] Massey, H.S.W., Burhop, E.H.S. & Gilbody, L.B. (1969). *Electronic and Ionic Impact Phenomena*. Clarendon Press, Oxford, 2nd edition
- [30] Gauvin, R. (1999). Some theoretical considerations on X-ray microanalysis in the environmental or variable pressure scanning electronmicroscope. *Scanning*, 21(6), 388–393.

Références Bibliographiques

- [31] Jost, K. & Kessler, J. (1963). Die Ortsverteilung mittleschneller Elektronen bei Mehrfachstreuung (The spatial distribution of medium energy electrons during plural scattering). *Zeitschrift Physik*, 176, 126–142
- [32] Williams, E. (1939). *Proc. Roy. Soc, A*, 169, 531
- [33] Leisgang, S., *Zeits. (1952).Naturf*, 132, 183
- [34] Bers, A., Vainstein, B. K. (1962). *International Cristallographic tables Vol III*. Kynoch Press, Birmingham
- [35] Reimer, L. (1985). *Scanning Electron Microscopy*, Springer-Verlag, Berlin
- [36] Eli, Napchan. (2004). *Physics Used in MC-SET*. Department of Materials, Imperial College, London
- [37] Bers, A., Vainstein, B. K. (1962). *International Cristallographic tables Vol III*. Kynoch Press, Birmingham
- [38] Mott, N. F., Massey H. S. W. (1965). *The Theory of atomic Collision*. Oxford Clarendon Press
- [39] McDaniel, E.W. (1964). *Collision Phenomena in Ionized Gases*, Wiley, New York
- [40] 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.
- [41] Bothe, W., *Zeits. (1921).Phys*, 5, 63
- [42] Schumacher, B. W. (1968). *Ontario Research Foundation Physics Research report*, 6604
- [43] Reimer, L., Gilde, H., Sommer, K. H. (1970). *Optik*, 30, 590
- [44] Smith, R. C., Schumacher B. W. (1974). *J. Chem. Phys*, 60, 103
- [45] Bogaerts A, Straaten MV, Renaat G. (1995). *Spectrochimica Acta Part B*, 2, 179-176.
- [46] Egerton, R.F.(1996). *New York: Plenum Press*.
- [47] Joy, D.C., Luo S.(1989). *Scanning*,11, 176–80.
- [48] Deraz, M. (1996). *Simulation et corrélation du courant EBIC par la méthode de Monte Carlo*. Mémoire de magistère, université de Sidi Bel Abbés.
- [49] 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
- [50] ABDENNEBI Souria NADJEM Farouk (2021) *Mémoire de Maintenance D'un Microscope Électronique A Balayage Pression Variable (VPSEM), Etude Par La Méthode De Monte Carlo De Interaction Electron-Gaz* Université de Ghardaïa.