

Collisions inélastiques :

Emission de photons et d'électrons secondaires

C. Bonnelle

Laboratoire de Chimie Physique Matière et Rayonnement, UMR 7614
Université Pierre et Marie Curie

Au cours de leur cheminement dans un matériau, les électrons subissent diverses interactions, des interactions élastiques, au cours desquelles les électrons sont déviés mais pas, ou très peu, ralentis, et des collisions inélastiques qui induisent une perte d'énergie des électrons, accompagnée d'une plus ou moins faible déviation de leur trajectoire. Nous nous intéressons ici aux collisions inélastiques d'un faisceau d'électrons, incident sur une cible solide. L'énergie E des électrons incidents détermine le type d'interactions que peuvent subir les électrons ainsi que la probabilité de ces interactions. Cette énergie diminue au fur et à mesure du parcours des électrons dans la cible. L'évolution de E est différente pour chacun des électrons. Une donnée importante est le nombre d'électrons d'énergie E , $n(E)$, présents à la profondeur x dans le matériau, ou encore la distribution énergétique des électrons. L'épaisseur dans laquelle peut se produire une interaction donnée est aussi un paramètre important. Pour déterminer $n(E)$ et les épaisseurs, il faut connaître les différentes interactions et leur probabilité en fonction de l'énergie.

1. INTERACTIONS ELECTRON - MATIERE

1.1. Interaction électron – électron

Au cours d'une collision inélastique entre un électron incident et un électron de la cible, l'électron incident transfère une partie de son énergie à l'électron cible qui est ionisé ou excité. Considérons tout d'abord l'interaction avec les *électrons de valence*. Leur énergie de liaison est faible. Ces électrons peuvent être ionisés au cours de chocs caractérisés par une faible perte d'énergie. Ces interactions sont, soit individuelles, soit collectives. Dans le premier cas, elles donnent lieu à l'émission discrète d'électrons secondaires de faible énergie. Dans le deuxième cas, il y a émission d'un quantum d'onde, le plasmon, associé au mouvement collectif des électrons de valence. La présence d'un faisceau incident de particules chargées induit en effet un mouvement d'ensemble des électrons quasi-libres du solide, c'est-à-dire des électrons de valence. Les énergies de plasmons sont comprises entre environ 2 et 20 eV.

Ces différentes émissions n'entraînent aucune perturbation du système atomique car, par suite de leur grande mobilité, les électrons de valence se réorganisent très rapidement pour faire écran au trou positif créé au cours de l'ionisation.

Considérons maintenant l'interaction avec les *électrons atomiques*, ou électrons de cœur. Leur énergie d'ionisation est caractéristique de la sous-couche n_lj considérée. Les chocs se font avec une perte d'énergie supérieure ou égale à l'énergie d'ionisation E_{n_lj} (qui varie entre 20 eV et 90 keV). Cette interaction s'accompagne de l'émission d'électrons secondaires, d'énergie $E - E_{n_lj}$.

La création d'une lacune dans une sous-couche n_lj normalement remplie produit une perturbation du cœur atomique. La distribution électronique de l'atome perturbé se réorganise très rapidement, dans des temps de l'ordre de 10^{-15} à 10^{-16} seconde, avec émission d'électrons Auger et de photons X. Ces émissions sont caractéristiques de la composition chimique de la cible.

1.2. Interaction électron - champ coulombien des noyaux

Lorsqu'un électron incident se déplace dans le champ coulombien d'une charge positive, donc dans le champ des noyaux, sa trajectoire est modifiée. Elle subit une courbure. Un électron en

mouvement le long d'une trajectoire non rectiligne émet un rayonnement continu en fréquence, appelé rayonnement de freinage ou Bremsstrahlung. L'énergie de ce rayonnement peut prendre toutes les valeurs jusqu'à l'énergie incidente E_0 .

2. PROBABILITES DES INTERACTIONS

La probabilité qu'un électron incident interagisse selon le processus i par unité de son parcours dans la cible est la section efficace, σ_i . Cette grandeur peut être visualisée comme une aire entourant chaque particule de la cible et telle que tout électron incident frappant cette aire peut interagir avec la particule. Elle s'exprime en cm^2 ou en barn ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$). A chaque interaction correspond une section efficace.

2.1. Sections efficaces inélastiques électron-électron

Elles ont été calculées pour les atomes libres à l'aide de la théorie de Bethe [1][2]. Elles sont fonction de E , de l'énergie nécessaire pour produire l'interaction, E_i , et du numéro atomique Z de la cible (Fig. 1). Leur variation en fonction de E est de la forme :

$$\sigma_i = f(E, E_i, Z) \propto \frac{\log E}{E}$$

Les chocs électron-électron les plus probables sont les "chocs mous", c'est-à-dire les chocs avec faible perte d'énergie. Ils concernent les électrons de valence. Ainsi, pour des électrons de 2 keV dans l'aluminium, les sections efficaces, exprimées en Å^2 , sont :

$\sigma_{e\text{-valence}}$	$\sim 0,1$	σ_{plasmon}	$\sim 0,1$
$\sigma_{e\text{-}2s,2p}$	$\sim 10^{-3}$		
$\sigma_{e\text{-}1s}$	$\sim 10^{-4}$		

En fin de parcours, les électrons incidents n'interagissent qu'avec les électrons faiblement liés. Lorsque leur énergie cinétique devient de l'ordre de quelques électronvolts, les électrons se déplacent librement dans les états inoccupés de la cible et s'écoulent vers la masse par l'intermédiaire des pièces métalliques avec lesquelles la cible est en contact électrique. Dans le cas de matériaux isolants ou semiconducteurs, des électrons peuvent être piégés dans des états localisés de faible énergie, par exemple dans les états de défaut.

La probabilité qu'un électron subisse un choc inélastique par unité de parcours est

$$\sum_i \sigma_i(E) \cdot N_{\text{cible}}$$

où N_{cible} est le nombre d'atomes cibles par unité de volume.

La distance moyenne parcourue entre deux chocs inélastiques est le libre parcours moyen inélastique $\Lambda_i(E)$. Par définition :

$$\Lambda(E) = \frac{1}{\sum_i \sigma_i(E) \cdot N_{\text{cible}}}$$

Dans les solides, $\Lambda_i(E)$ est minimal, de l'ordre de 4 à 5 Å , pour $50 < E < 100 \text{ eV}$. A énergie égale, les électrons ont un parcours plus faible que les photons. En microanalyse, ce sont donc les électrons qui limitent l'épaisseur analysée.

2.2. Sections efficaces radiatives

Ce sont les probabilités d'interaction d'un électron incident avec le champ du noyau conduisant à l'émission du rayonnement de freinage. Pour des énergies E jusqu'à 100 keV, la section efficace radiative est en première approximation donnée par la relation :

$$\sigma_{\text{rad}} \cong \frac{16}{3} Z^2 \alpha r_e^2 \approx \text{cte}$$

où α est la constante de structure fine et r_e le rayon classique de l'électron [3]. Pour le tungstène, σ_{rad} est de l'ordre de $1,5 \cdot 10^{-23}$ / e- / noyau / unité de parcours. Elle est négligeable par rapport aux sections efficaces de chocs inélastiques avec les électrons de valence. Mais il faut noter qu'un électron peut perdre la totalité de son énergie au cours d'un choc radiatif. La perte d'énergie radiative, $-dE/dx$, peut donc être importante.

3. DISTRIBUTION ENERGETIQUE ET PARCOURS

3.1. Distribution électronique

Considérons un faisceau parallèle d'électrons monocinétiques perpendiculaire à la surface d'un matériau. Pour déterminer la distribution des électrons dans le matériau, il faut prendre en compte l'ensemble des processus élastiques et inélastiques. Les collisions élastiques produisent des déviations pouvant amener une retrodiffusion des électrons vers l'arrière et donc une diminution du nombre d'électrons à une profondeur donnée.

Le nombre d'électrons d'énergie E à la profondeur x , $n(E)$, est :

$$dn(E) = -\Sigma \sigma(E) \cdot n(E) \cdot N_{\text{cible}} \cdot dx = -\sigma_t(E) \cdot n(E) \cdot N_{\text{cible}} \cdot dx$$

où $\sigma_t(E)$ est la somme des sections efficaces élastiques et inélastiques.

Le nombre d'électrons à la profondeur x est obtenu en intégrant l'expression précédente. Lorsqu'on considère une zone superficielle de la cible, on peut négliger la variation des sections efficaces dans l'épaisseur considérée. On obtient alors pour le nombre relatif d'électrons à la profondeur x , appelé « taux de transmission » des électrons,

$$\frac{n(E)}{n_0(E_0)} = \exp\left(-\sigma_t(E) \cdot N_{\text{cible}} \cdot x\right) = \exp\left[-\frac{x}{\Lambda(E)}\right]$$

où $\Lambda(E)$ est le libre parcours total des électrons, c'est-à-dire la distance moyenne entre deux chocs déterminée en prenant en compte les différents types de chocs. Cette relation n'est utilisable que dans les limites indiquées ci-dessus.

Dans le cas général, on utilise des lois semi empiriques comportant des paramètres ajustables qui sont déterminés par comparaison avec les données expérimentales. Ainsi, le taux de transmission à la profondeur x est donné par des expressions de la forme :

$$\eta = \frac{n(E)}{n_0(E_0)} = \exp\left[-\frac{x}{X_0}\right]^p$$

où p est une fonction de l'énergie incidente des électrons, E_0 , et du numéro atomique de la cible et $X_0 = C E_0^n$. Le paramètre C est une fonction du numéro atomique Z et de la densité ρ du matériau; n est compris entre 1 et 2 et augmente avec E_0 . Lorsque le numéro atomique Z augmente, l'exposant p augmente et la transmission des électrons diminue.

La fonction de distribution énergétique à la profondeur x :

$$\frac{1}{n_0} \frac{dn}{dE} = g(E_0, x, E_x, \rho)$$

est définie par la relation :

$$\eta = \frac{n(E)}{n_0(E_0)} = \frac{1}{n_0} \int_{E_{x\min}}^{E_{x\max}} \frac{dn}{dE} dE_x = \int_{E_{x\min}}^{E_{x\max}} g dE_x$$

où $E_{x\min}$ et $E_{x\max}$ sont les énergies minimales et maximales des électrons à la profondeur x .

Un exemple de distribution énergétique d'électrons de 0,8 à 4 keV après traversée de 22 nm d'aluminium est présenté figure 2 [4].

3.2. Profondeur et parcours

La profondeur $x = X_0$ correspond à un taux de transmission égal à $1/e$. Elle est appelée « profondeur d'échappement ». Elle est approximativement égale à 80% du libre parcours moyen inélastique. Les électrons sont ralentis dans une épaisseur ≈ 2 à $3 X_0$.

Le « parcours moyen » $R(E_0)$ d'un électron d'énergie incidente E_0 est la distance moyenne parcourue par l'électron jusqu'à son complet ralentissement. Il est donné par la relation :

$$R(E_0) = \int_{E_0}^0 dx = \int_0^{E_0} \frac{dE}{-(dE/dx)}$$

où (dE/dx) est la perte moyenne d'énergie par unité de parcours, appelée « pouvoir d'arrêt ». Les pouvoirs d'arrêt ont été calculés pour tous les éléments dans un large domaine d'énergie.

Le « parcours projeté » R_p est égal à la projection de la trajectoire dans la direction d'incidence, soit :

$$R_p = x = X_0(E_0) \left| \ln \frac{n(E)}{n_0(E_0)} \right|^{1/p}$$

Il existe de nombreuses formules semi-empiriques de la forme $R_p = C(Z,r) E_0^n$ permettant d'évaluer R_p . Le parcours projeté R_p est différent de l'épaisseur traversée à cause des déviations et de la rétrodiffusion dues aux chocs élastiques. Ces derniers ont pour effet de réduire l'épaisseur effective de la cible contribuant à un processus d'ionisation d'énergie donnée.

Enfin, on appelle « épaisseur réduite » le rapport x/R_p .

3.3. Calcul

Deux types de modèles sont utilisés pour déterminer ces différentes grandeurs, des modèles analytiques avec simulation Monte Carlo [5] et des modèles semi empiriques où tous les phénomènes physiques sont pris en compte et décrits à l'aide de paramètres ajustables. Ces paramètres sont ajustés à l'aide d'expériences de spectroscopie, X et Auger, induites par électrons.

Pour illustrer les modèles semi empiriques, je citerai le modèle INTRIX [6]. Il permet d'obtenir la distribution énergétique en profondeur dans un large domaine d'énergie E_0 directement à partir des paramètres physiques, sections efficaces inélastiques, coefficients de rétrodiffusion et distribution angulaire.

4. ELECTRONS SECONDAIRES

La distribution en énergie des électrons secondaires comporte une distribution continue comprise entre environ 0 - 50 eV et des pics d'énergie discrète de très faible intensité, d'énergies comprises entre 50 eV et l'énergie incidente E_0 . La distribution continue est essentiellement due à l'ionisation des électrons de valence; elle est appelée distribution des « électrons secondaires vrais ». Rappelons que les chocs mous, c'est-à-dire les chocs avec faible perte d'énergie, sont prédominants. C'est pourquoi la présence d'électrons de faible énergie domine la distribution. Les électrons secondaires d'énergie supérieure à environ 50 eV forment un fond continu d'intensité suffisamment faible pour être négligé. Les pics discrets correspondent aux électrons Auger émis à la suite de l'ionisation d'un niveau de cœur.

L'émission des électrons secondaires est isotrope. On définit le taux d'émission $\delta(E)$ par la relation :

$$\delta(E) = \int n(E, x) \cdot p(E, x) \cdot dx$$

où $n(E, x) dx$ est le nombre moyen d'électrons secondaires émis par électron incident dans dx à la profondeur x ; $p(E, x)$ est la probabilité d'échappement d'un électron secondaire produit à la profondeur x , c'est-à-dire la probabilité qu'un électron atteigne la surface et s'échappe du matériau. Soit ΔE l'énergie moyenne nécessaire pour produire un électron secondaire.

$$n(E, x) = - \frac{1}{\Delta E} \frac{dE}{dx}$$

$$p(E, x) \approx \eta(E, x)$$

Au maximum de la courbe $\delta(E)$, le parcours des électrons primaires est égal à la profondeur d'échappement des électrons secondaires. Lorsque l'angle d'incidence augmente, le volume d'interaction et la longueur d'échappement diminuent. Le taux d'émission augmente.

La variation du rendement électronique secondaire en fonction de l'énergie a été mesurée récemment pour deux oxydes, le saphir et la silice, dans l'équipe de G. Blaise [7]. Les mesures ont été effectuées à très faible densité électronique, de l'ordre de $5 \cdot 10^3 \text{ pA} \cdot \text{cm}^{-2}$. Pour effectuer une mesure correcte du rendement, il est en effet nécessaire de s'affranchir des effets de charge ce qui n'est possible qu'en utilisant de très faibles taux d'irradiation. Dans ces conditions, le rendement électronique atteint des valeurs importantes; il est, par exemple, de l'ordre de 10 pour le saphir.

5. CONCLUSION

La distribution énergétique des électrons dans un matériau quelconque et l'épaisseur concernée par une interaction particulière i peuvent être déterminées à l'aide de modèles analytiques ou semi-empiriques.

Certains de ces modèles sont bien adaptés au domaine des faibles énergies. C'est le cas du modèle INTRIX. L'intérêt des expériences à basse énergie est de permettre la caractérisation des nanomatériaux avec une bonne résolution en profondeur. Il faut en effet que l'énergie utile, $E_0 - E_i$, n'excède pas 10 à 100 eV pour qu'elle soit dissipée dans une profondeur de l'ordre de quelques nanomètres seulement.

- [1] MOTT N.F., MASSEY H.S.W., The Theory of Atomic Collisions, Oxford, Clarendon Press; 3ème édition. 1965, chapitre XIX.
- [2] McGUIRE E.J., Phys. Rev. A 3, 267-279 (1970).
- [3] CAUCHOIS Y., HENO Y., Cheminement des particules chargées, Gauthier-Villars, Paris, 1964.
- [4] STAUB P.F., J. Phys. D Appl. Phys. 28, 252-257 (1995).
- [5] POUCHOU J.-L., exposé suivant.

- [6] STAUB P.F., X-Ray Spectrom., 27, 43-57 (1998).
 [7] BRAGA D., Thèse, Université d'Orsay (2003).
 [8] LOTZ W., Z. Phys 216, 241-247 (1968) et 232, 101-107 (1970).

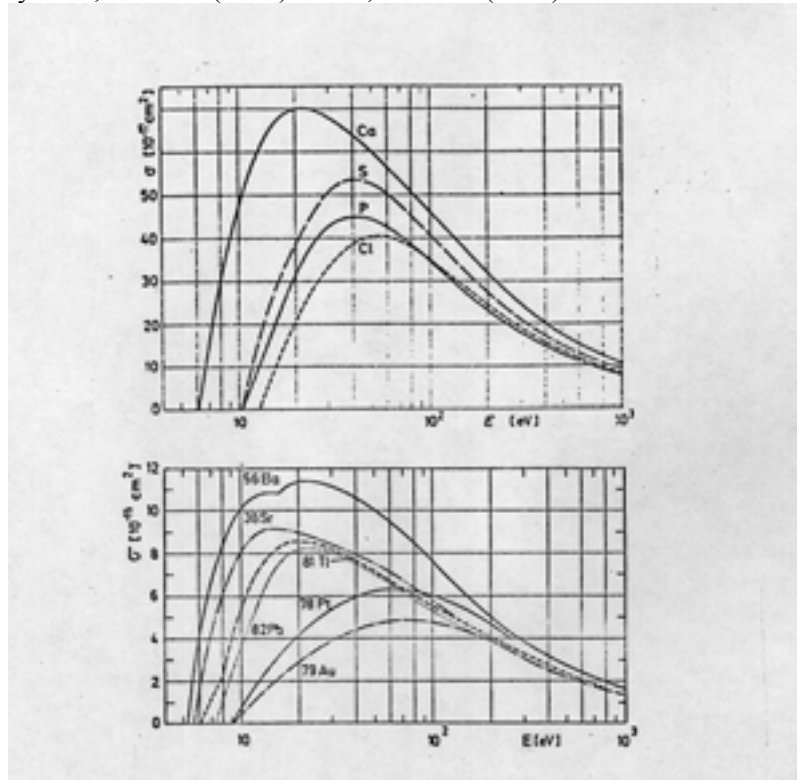


Fig. 1. Sections efficaces d'électro-ionisation d'après [8].

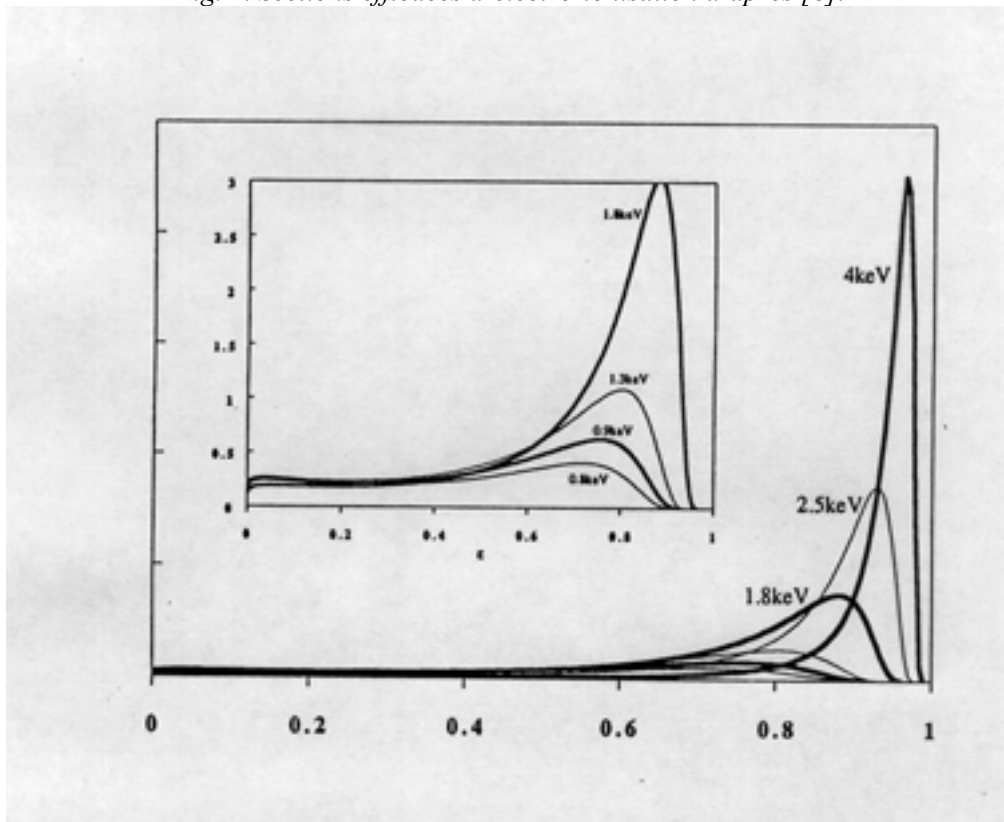


Fig. 2. Distributions énergétiques d'électrons transmis à travers un film d'aluminium de 22nm d'épaisseur d'après [4].