

# Simulation de trajectoires électroniques par méthode de Monte-Carlo : stratégies possibles et applications au MEB et à la microanalyse X

Jean-Louis POUCHOU

O.N.E.R.A., Département des Matériaux Métalliques et Procédés,  
29 avenue de la Division Leclerc, 92320 Châtillon (France)

[pouchou@onera.fr](mailto:pouchou@onera.fr)

## 1. Introduction

Au milieu des années 60, c'est à Bishop [1] ainsi qu'à Shimizu & al. [2] que l'on doit les premières simulations par méthode de Monte-Carlo appliquées au domaine de la microanalyse. A cette époque, en raison des performances limitées des systèmes informatiques, tant en vitesse de calcul qu'en capacité mémoire, ce sont des modèles très simplifiés qui ont été proposés, comme nous le verrons plus loin. Des approches de ce type ont été mises en œuvre pendant plusieurs décennies par divers auteurs, parmi lesquels Hénoc & Maurice [3], Mykklebust & al. [4], Pouchou & al. [5], Joy & al. [6], Cazaux & al. [7], Gauvin & al. [8].

A partir de la fin des années 80 ont commencé à émerger des approches plus rigoureuses, grâce aux travaux de Murata & al. [9], Reimer & al. [10], et Salvat & al. [11]. Se sont également engagés dans cette voie des équipes comme celles de l'Université d'Aix-la-Chapelle [12] ainsi que celle à laquelle participe l'auteur [13].

Ce papier décrira dans un premier temps les hypothèses sur lesquelles reposent les deux approches simplifiées (diffusion simple et diffusion multiple) développées au temps des pionniers, mais qui peuvent encore rendre des services aujourd'hui dans les domaines d'application où les approximations mises en œuvre restent acceptables.

Dans un deuxième temps, on donnera les principes généraux des schémas de simulation qui correspondent à la tendance actuelle : recherche d'une plus grande rigueur dans la description des phénomènes physiques qui interviennent lors de l'interaction d'un faisceau d'électrons de moyenne énergie avec la matière, et prise en compte des interactions individuelles, de façon à permettre un champ d'applications le plus vaste possible.

## 2. Les modèles simplifiés de simulation

Dans ces modèles, on s'efforce de simplifier le calcul à l'extrême en ne considérant comme aléatoire qu'un seul processus : la diffusion élastique. C'est ce processus qui est à l'origine de l'essentiel de la déflexion des trajectoires électroniques dans la matière et de la forme de la "poire de diffusion" des électrons qui en résulte. Les processus inélastiques, quant à eux, sont responsables de la perte d'énergie des électrons au cours de leur parcours, mais ne donnent lieu qu'à des diffusions aux petits angles, ce qui permet de négliger leur influence sur la forme générale de la "poire de diffusion".

### 2.1. Approche de diffusion simple

Dans l'approche dite de diffusion simple, le problème sera donc abordé comme suit :

- on considérera une seule variable aléatoire, l'angle de diffusion élastique  $\theta$ , qui sera tiré entre 0 et  $\pi$  selon une loi de distribution définie par la section efficace différentielle de diffusion élastique,

cependant que sa composante azimutale sera tirée dans un ensemble d'angles uniformément distribués entre 0 et  $2\pi$ .

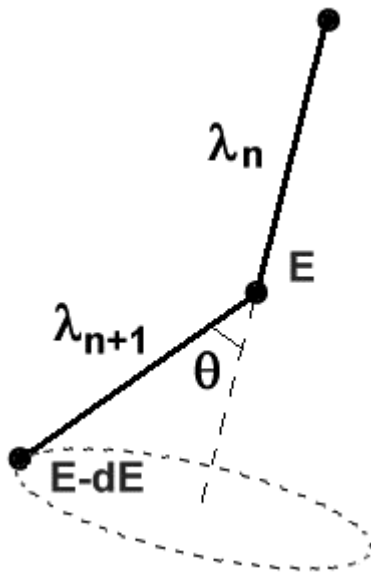


Fig. 1 – Schéma d'un élément de trajectoire

- la perte d'énergie résultant des interactions inélastiques n'est pas traitée de manière statistique: au cours d'une étape élémentaire de la trajectoire, elle est évaluée à l'aide d'une loi de perte moyenne d'énergie (loi de Bethe, ou autres relations comme celles de Joy, Love & Scott, ou Pouchou & Pichoir qui évitent les divergences à basse énergie). L'utilisation d'une de ces lois revient donc à omettre le caractère discret des pertes d'énergies que subit l'électron incident lors de son parcours dans la matière, et à supposer que son ralentissement est continu.

La loi de Bethe, qui exprime la perte moyenne d'énergie  $dE$  au long d'un élément de parcours massique  $d\rho s$ , s'écrit:

$$dE/d\rho s = -2\pi e^4 Z N_0 / A E. \ln(1.166E/J)$$

où  $E$  est l'énergie courante de l'électron,  $\rho$  la masse volumique du milieu ralentisseur,  $s$  le parcours,  $e$  la charge de l'électron,  $Z$  le numéro atomique de la cible,  $A$  sa masse atomique,  $J$  son potentiel moyen d'ionisation, et  $N_0$  le nombre d'Avogadro.

- la contribution des interactions inélastiques à la diffusion des trajectoires est négligée, ou prise en compte très grossièrement en introduisant un facteur correctif dit facteur de Fano.

- l'expression utilisée pour la section efficace de diffusion élastique est de type "Rutherford écrantée". Cette section efficace différentielle s'écrit:

$$\sigma_e(\theta) = Z^2 e^4 / \{16 E^2 [\sin^2(\theta/2) + \alpha]^2\}$$

où  $\alpha$  est le paramètre d'écran qui prend en compte l'écrantage de la charge du noyau par les électrons orbitaux.

Il en résulte l'expression suivante de la section efficace totale de diffusion élastique:

$$\sigma_e^T = \{\pi Z^2 e^4 / [4E^2 \alpha(1+\alpha)]\}$$

Le libre parcours moyen entre chocs élastiques successifs sur les atomes  $Z$  est par définition proportionnel à l'inverse de la section efficace, le coefficient de proportionnalité étant le nombre  $N$  d'atomes  $Z$  par unité de volume:

$$\Lambda_e = N / \sigma_e^T$$

On peut montrer que le nombre effectif de chocs diffusants par unité de longueur suit une loi de Poisson. Par conséquent, il est aisé d'échantillonner la longueur d'étape  $\lambda$  entre chocs (le libre

parcours élastique) autour du libre parcours moyen par tirage d'un nombre aléatoire  $R$  uniformément réparti dans l'intervalle  $]0,1[$ , et application de la relation  $\lambda = -\Lambda_e \ln(R)$ .

- L'avantage de la section efficace de "Rutherford écrantée" tient au fait que sa forme mathématique est telle que la fonction de répartition  $G(\theta) = \int_0^\theta \sigma_e(\theta) d\theta$  de l'angle de diffusion élastique peut être inversée, c'est-à-dire que l'on peut obtenir directement de façon analytique un angle  $\theta = G^{-1}(R)$  à partir d'un nombre aléatoire  $R$  tiré dans une distribution uniforme  $[0, 1[$ . Cette propriété particulière rend le calcul rapide et aisé, puisqu'il évite de passer par un échantillonnage numérique de la fonction de répartition et la création d'un tableau d'angles équiprobables de diffusion, ce qui sera nécessaire dans les autres approches que nous décrirons par la suite.

## 2.2. Approche de diffusion multiple

L'approche de diffusion simple que nous venons de voir a l'avantage de la simplicité et d'une faible exigence en ressources mémoires. Si elle reste aujourd'hui une alternative possible aux modèles évolués plus récents, elle avait à l'époque des pionniers l'inconvénient d'une certaine lenteur de calcul, en raison du nombre élevé d'événements diffusants qu'il convenait de traiter pour chaque trajectoire (typiquement un millier pour des électrons incidents d'énergie usuelle). C'est pourquoi une autre approche simplifiée, dite de diffusion multiple, a été développée et plus souvent utilisée.

Comme dans l'approche de diffusion simple, on ne considère comme aléatoires que les chocs élastiques. Mais au lieu de décrire la trajectoire par tirage d'étapes définies par le libre parcours entre chocs successifs, on définit arbitrairement une longueur d'étape fixe en découpant le parcours maximum de l'électron en un nombre réduit de segments égaux (par exemple 50). En moyenne, dans une telle étape, un électron d'énergie courante  $E$  subit donc  $m$  chocs élastiques. Ce nombre  $m$ , généralement (mais pas nécessairement) supérieur à 1, est donné par la section efficace totale de diffusion  $\sigma_e^T$ . Le nombre effectif  $p$  de chocs au cours d'une telle étape suit une loi de Poisson de paramètre  $m$ . Ainsi, pour obtenir la fonction de répartition de l'angle de diffusion "multiple" résultant de  $p$  chocs successifs distribués selon une loi de Poisson de paramètre  $m$ , il convient de convoluer les sections efficaces différentielles de diffusion simple décomposées en polynômes de Legendre (méthode de Goudsmit et Saunderson).

Si  $P_n$  représente le polynôme de Legendre d'ordre  $n$ , la fonction de distribution de l'angle de diffusion "multiple" à l'issue d'une étape comportant en moyenne  $m$  chocs s'écrit:

$$G(\theta) = \int_0^\theta \left\{ \exp(m\alpha_1 - m) - \sum_{i=1}^n [\exp(m\alpha_n - 1 - m) - \exp(m\alpha_{n+1} - m)] P_n(\cos\theta) \right\}$$

Les coefficients  $\alpha_i$  successifs peuvent être calculés par la relation de récurrence

$$n\alpha_{n+1} = (2n+1) \cdot (1+2\alpha) \cdot \alpha_n - (n-1)\alpha_{n-1}$$

à partir des deux premiers d'entre eux:

$$\alpha_0 = 1$$

$$\alpha_1 = 1 + 2\alpha + 2\alpha(1+\alpha) \cdot \ln[\alpha/(1+\alpha)]$$

Une trentaine de termes suffit en général à assurer la convergence du calcul.

Dans cette approche, la fonction de distribution  $G(\theta)$  de l'angle de diffusion n'a plus une forme mathématique "sympathique", et il n'est plus possible de réaliser un tirage direct, par voie analytique, de l'angle de diffusion. Celui-ci doit se faire à partir d'un ensemble d'angles équiprobables qui doit être préalablement construit en échantillonnant  $G(\theta)$  en un nombre de valeurs suffisant (typiquement 100 à 200) pour assurer une précision acceptable.

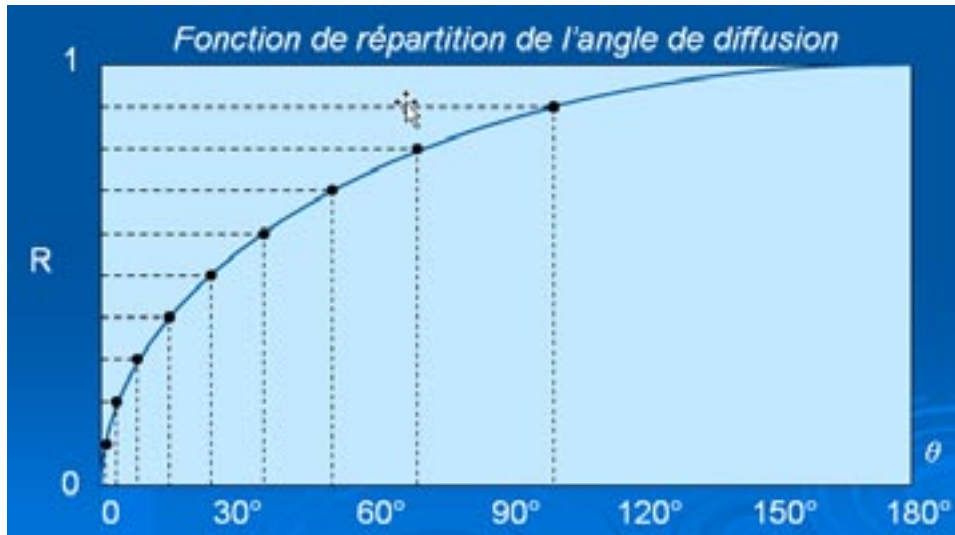


Fig. 2 – Echantillonnage de la fonction de répartition en vue de la création d'un ensemble d'angles équiprobables de diffusion.

Dans l'approche de diffusion multiple, un certain nombre de calculs préliminaires doivent donc être réalisés avant d'entreprendre la simulation des trajectoires proprement dite:

- calcul du parcours maximum de l'électron incident, définition du nombre d'étapes, calcul de la longueur d'étape;
- calcul des énergies moyennes d'étapes, des sections efficaces de diffusion élastiques et du nombre moyen de chocs correspondants;
- calcul des fonctions de distribution de l'angle de diffusion "multiple" pour chaque étape, et création d'un tableau d'angles équiprobables pour chacune.

Au final, et malgré le temps consacré à ces calculs préliminaires (dont les résultats sont réutilisables pour des problèmes concernant les mêmes éléments chimiques à une même tension d'accélération), l'approche de diffusion multiple présente l'avantage, par rapport à la diffusion simple, de réduire très significativement le temps de calcul. Ce point était très important jusqu'aux années 80, ce qui explique l'utilisation préférentielle de cette méthode à cette époque. Aujourd'hui, étant donné la puissance des calculateurs, il est préférable de revenir à l'approche de diffusion simple si l'on souhaite écrire un petit programme de simulation. Au-delà de la facilité d'écriture, l'approche en diffusion simple ne présente pas certains inconvénients de la diffusion multiple, en particulier un certain manque de résolution spatiale dû à la longueur plus importante des segments de trajectoires (cet inconvénient peut conduire dans des cas particuliers, par exemple incidence très oblique du faisceau, à des biais appréciables dans les résultats).

### 2.3. Principales applications possibles des approches simplifiées (diffusion simple ou multiple)

Ces approches ont été principalement appliquées à des cibles homogènes ou de structure géométrique simple (par exemple échantillons stratifiés), pour une incidence quelconque du faisceau, et dans un domaine d'énergies comprises entre 10 et 40 kV (au-delà, il faut tenir compte du caractère relativiste des particules; en deçà, on sort du domaine de validité de l'approximation de Born qui sous-tend les expressions utilisées).

Si les cibles sont plus minces que la pénétration maximale des électrons, on peut s'intéresser à la transmission (fraction d'électrons transmis, distribution en énergie, distribution angulaire).

Dans le cas de cibles massives, on peut s'intéresser aux électrons rétrodiffusés (nombre, distribution angulaire, distribution énergétique, profondeur d'échappement).

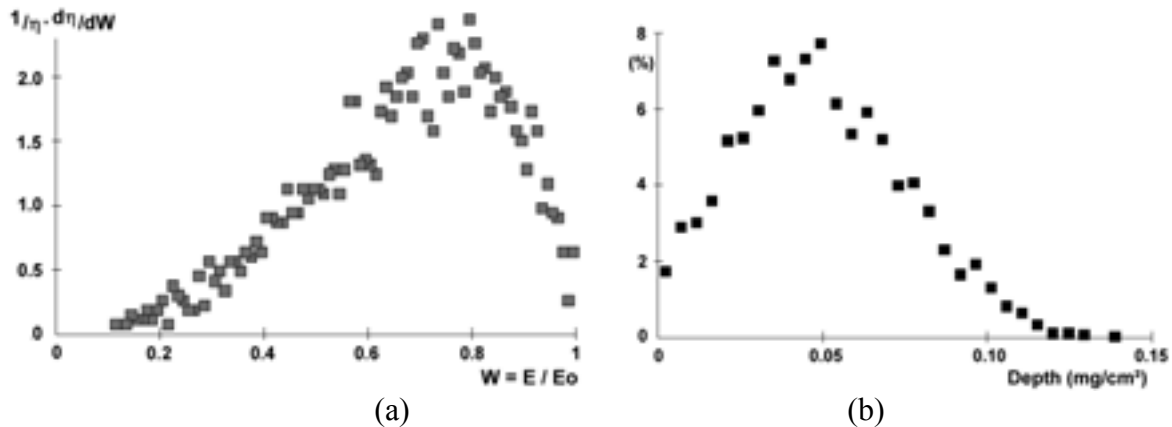


Fig. 3 – Distribution énergétique (a) et distribution des profondeurs d'échappement (b) des électrons rétrodiffusés par NiAl à 10 kV (logiciel MC2, diffusion simple).

Nota: avec une masse volumique de  $\sim 7 \text{ g/cm}^3$ , une profondeur massique de  $0.1 \text{ mg/cm}_2$  représente  $\sim 143 \text{ nm}$ .

Les applications à la microanalyse X ont été nombreuses. Elles ont en particulier contribué à la mise au point des modèles analytiques de quantification couramment utilisés à l'heure actuelle, ce qui inclut l'analyse sous incidence oblique et l'analyse d'échantillons stratifiés. Dans ces approches simplifiées de simulation, il n'est pas tenu compte du caractère aléatoire des ionisations, et seuls des taux moyens de production de photons X sont calculés: ainsi, le nombre d'ionisations créées au cours de chaque étape d'une trajectoire est obtenu en faisant essentiellement le produit de la longueur d'étape par la section efficace d'ionisation du niveau atomique concerné, pour l'énergie courante de l'électron. Si l'échantillon est virtuellement découpé en tranches d'épaisseurs, il est alors possible de stocker le nombre moyen d'ionisations créées au cours d'une étape dans la tranche d'épaisseur traversée. Ainsi, on peut obtenir la distribution en profondeur  $\phi(\rho z)$  du rayonnement engendré, qui est à la base de l'analyse quantitative, puisque l'aire de cette distribution est représentative de l'effet de numéro atomique, et que sa forme régit l'effet d'absorption du rayonnement dans la cible. Ces calculs qui ne font pas intervenir le caractère aléatoire des ionisations permettent d'obtenir très rapidement des résultats statistiquement significatifs. A titre d'exemple, les distributions  $\phi(\rho z)$  de la figure 4 ci-dessous ont été obtenus en quelques dizaines de secondes à l'aide du logiciel MC2 (J.L. Pouchou), en simulant 10000 trajectoires seulement.

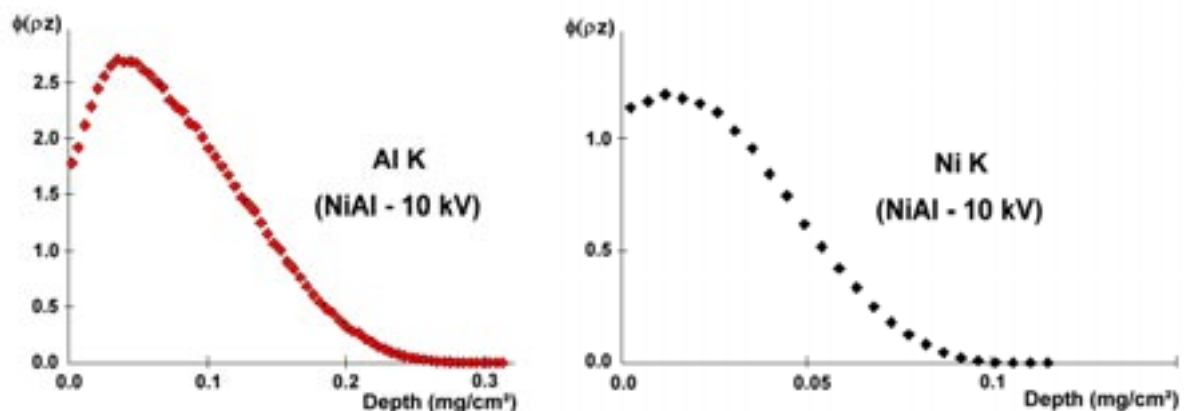


Fig. 4 – Distribution en profondeur des ionisations Al K et Ni K dans NiAl à 10 kV (logiciel MC2, approche simplifiée en diffusion simple).

Nota: avec une masse volumique de  $\sim 7 \text{ g/cm}^3$ , une profondeur massique de  $0.1 \text{ mg/cm}_2$  représente  $\sim 143 \text{ nm}$ .

### 3. Les modèles évolués de simulation

#### 3.1. Principes généraux

La tendance actuelle, qui n'est devenue envisageable que grâce à l'accroissement des performances des calculateurs, est d'élaborer des schémas de simulation de plus en plus rigoureux, c'est-à-dire comportant de moins en moins d'hypothèses simplificatrices et s'appuyant sur des lois physiques offrant de meilleures garanties de validité, en particulier aux plus basses énergies considérées.

Il s'agit ici de considérer individuellement toutes les interactions possibles entre les électrons en mouvement et les atomes de la cible, et de prendre en compte le caractère aléatoire de toutes ces interactions. Dans ce type d'approche, tout recours à des lois de comportement moyen sera proscrit: par exemple, le ralentissement des électrons incidents sera maintenant un processus discret résultant des pertes d'énergie individuelles produites par les diverses interactions inélastiques successives.

En plus des électrons incidents, on se préoccupera des électrons secondaires les plus énergétiques produits au cours de certaines de ces interactions, et on les suivra à leur tour pour prendre en compte leurs interactions avec les atomes de la cible et les émissions qui en résultent éventuellement.

Dans le logiciel Hurricane que nous développons avec SAMx, l'approche suivante est adoptée: la diffusion élastique est traitée en utilisant les sections efficaces de Mott, dont la validité est supérieure à celle de Rutherford, en particulier à basse énergie et pour des cibles lourdes. Le calcul de ces sections efficaces, souvent appelé méthode des déphasages, consiste en une analyse des ondes partielles, solutions des équations de Dirac ou de Schrödinger (suivant que le problème est relativiste ou non). Ce calcul repose sur une expression du potentiel d'interaction pour lequel nous avons adopté la formulation de Salvat [14]. Compte tenu de sa complexité, ce calcul doit être fait préalablement à la simulation proprement dite. En pratique, les sections efficaces de diffusion élastique sont calculées et pour tous les éléments de la classification périodique et pour un certain nombre de classes d'énergie fixes (50 pour ce qui nous concerne). A partir de ces sections efficaces sont calculés et stockés des ensembles d'angles équiprobables de diffusion. Au cours de la simulation, pour l'énergie courante de l'électron, les angles équiprobables de diffusion par les différents éléments de la cible sont obtenus par interpolation des valeurs tabulées.

En ce qui concerne les processus inélastiques de diffusion, le calcul doit prendre en compte les évènements suivants :

- les interactions collectives avec les couches électroniques externes (excitation de plasmons de volume) [15]
- les interactions individuelles avec les électrons des couches externes: création de paires électron-trou [16]
- les interactions avec les couches électroniques profondes: excitation des niveaux atomiques [17]
- les interactions avec les noyaux (rayonnement de freinage): ce processus qui contribue très minoritairement à la perte d'énergie de l'électron incident n'est actuellement pas pris en compte dans notre calcul. Néanmoins, si l'on s'intéresse au fond continu des spectres de rayons X, ce processus doit être inclus dans la simulation, par exemple en utilisant des expressions proposées par Salvat [18].

Chaque processus est caractérisé par une section efficace qui donne :

- la probabilité d'interaction selon ce processus (section efficace totale)
- la distribution de probabilité de la perte d'énergie en résultant
- la distribution de probabilité de l'angle de déflexion en résultant.

Au cours de la simulation, le tirage d'un processus d'interaction s'effectue comme suit:

- pour chaque élément chimique présent et chaque processus possible  $k$ , on calcule les sections efficaces totales d'interaction correspondantes  $\sigma_k^T$ , dont on déduit les libres parcours moyens

$\Lambda_k = 1 / N \cdot \sigma_k^T$  (N est le nombre d'atomes concernés par unité de volume)

- pour l'ensemble des processus, le libre parcours moyen entre interactions est donné par la relation  $\Lambda^{-1} = \sum_1^n \Lambda_k^{-1}$

- la sélection d'un processus particulier s'effectue donc en échantillonnant l'intervalle  $[0, \Lambda^{-1}]$  conformément au schéma ci-dessous, qui suppose que cinq processus d'interaction différents sont possibles (n=5).

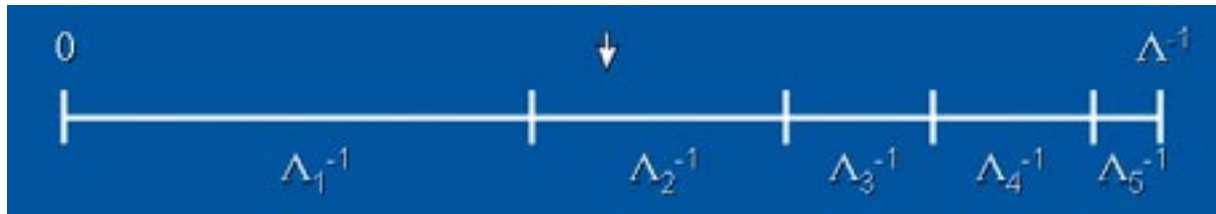


Fig. 5 – Echantillonnage des processus d'interactions

- une fois tiré le processus actif k, le libre parcours correspondant, qui résulte du caractère poissonien des interactions, s'obtient par la relation  $\lambda = -\Lambda \ln(1 - R)$  où R est un nombre aléatoire extrait d'une distribution uniforme entre 0 et 1.

### 3.2. Applications des modèles de simulation évolués

L'objectif de ces modèles est de donner plus de possibilités d'étudier des aspects variés de la microscopie électronique à balayage et de la microanalyse, et en particulier ceux qui ne peuvent que partiellement ou imparfaitement être abordés à l'aide de modèles analytiques ou d'approches simplifiées de simulation. Ces approches évoluées sont bien adaptées par exemple pour étendre les investigations au domaine des échantillons rugueux, poreux, ou chimiquement hétérogènes à l'échelle du volume exploré par le faisceau électronique. Ce dernier aspect est très vaste, puisqu'il peut inclure l'étude fine du signal d'électrons rétrodiffusés ou de rayons X à la traversée d'une interface, de même que l'analyse de petites particules dans ou sur une matrice, ou encore l'analyse X moyenne d'un échantillon présentant une hétérogénéité chimique à une échelle dimensionnelle comparable ou inférieure à celle de la "poire d'excitation". Dans le futur, si certaines difficultés à très basse énergie (au-dessous de 50 eV) parviennent à être résolues, on pourra peut-être envisager aussi des applications au domaine des électrons secondaires.

Dès lors que l'on met en œuvre une simulation d'évènements individuels, certaines questions se posent immédiatement: "Quel est le nombre total d'interactions que je vais devoir traiter ? Le processus qui m'intéresse est-il un processus rare ou fréquent ? Combien de trajectoires faudra-t-il simuler pour obtenir un résultat statistiquement significatif pour ce processus particulier ? Combien de temps cette simulation prendra-t-elle ?"

Une partie des réponses à ces questions est contenue dans la figure 6, constituée de copies d'écran du logiciel Hurricane après simulation de 10000 trajectoires dans NiAl à 10, 15 et 20 kV:

- la ligne "Events" montre que le nombre total d'interactions est d'environ 500 à 1000 par électron incident, selon la tension d'accélération.
- la ligne "Elastic Scattering" montre qu'une majorité de ces interactions (près de 60 %) sont des chocs élastiques.
- les interactions collectives ("Volume Plasmon"), avec plus de 20 %, représentent la deuxième source d'interactions (c'est d'ailleurs le processus principal de perte d'énergie de l'électron incident).
- l'excitation individuelle des électrons externes ("Electron-hole Pair") vient en troisième position avec plus de 10 % des interactions.

- enfin, les ionisations des niveaux profonds ("Ionization") représentent moins de 4 % des évènements. De surcroît, la majorité d'entre eux concerne les couches les moins liées au noyau, donc les moins utilisables en microanalyse X, cependant que les ionisations sur les couches K les plus profondes (lignes "Al" et "Ni") sont extrêmement rares. Pour le nickel en particulier, le nombre d'ionisations K est très faible (14 pour 10000 électrons à 20 kV, et 1 à la tension de 10 kV qui correspond certes à un taux d'excitation peu favorable du niveau Ni K, mais que l'on est néanmoins susceptible d'employer pour l'analyse de couches minces superficielles).

	20 kV	15 kV	10 kV
<b>Description</b>	<b>Total</b>	<b>Total</b>	<b>Total</b>
Electrons	10000	10000	10000
Backscattered	2996	2969	2907
Out of Limits	0	0	0
Events	10781616	8089347	5401083
Elastic Scattering	6264563	4680008	3098790
Volume Plasmon	2433086	1818109	1211362
Electron-hole Pair	1242066	954271	659817
Secondary Electron	444426	338032	230507
Ionization	397475	298927	200607
Al	701	474	266
Ni	14	10	1

Fig. 6 – Interactions dans NiAl à 10, 15 et 20 kV (logiciel Hurricane).

Au vu de ces résultats, il est clair que l'un des obstacles principaux à l'utilisation en microanalyse X d'une simulation des interactions individuelles sera la rareté des évènements intéressants, ce qui imposera des temps de calcul longs pour obtenir des résultats statistiquement significatifs. Il va sans dire que le nombre de trajectoires nécessaires sera d'autant plus important que l'élément chimique intéressant sera présent en faible quantité dans le volume analysé, soit en raison d'une faible concentration dans l'ensemble du volume exploré, soit parce qu'il est ségrégué dans une phase très minoritaire dans le volume. Selon les caractéristiques de l'échantillon étudié, on ne pourra guère obtenir de résultat significatif en microanalyse X avec moins de 100000 trajectoires dans les cas les plus favorables. Dans les cas les plus défavorables, on pourra avoir besoin de simuler plusieurs millions de trajectoires. Selon le cas, le temps de calcul pourra ainsi varier entre 1 heure et quelques dizaines d'heures (avec un PC travaillant à 3 GHz). Pour traiter des échantillons de microstructure complexe, le calcul aura généralement recours à un maillage de l'espace qui imposera aussi des ressources mémoires assez importantes (au moins 1 Go).

Pour compléter le commentaire de la figure 6, il convient de noter les points suivants:

- le nombre d'électrons rétrodiffusés (ligne "Backscattered" qui comptabilise en fait tous les électrons ressortant de l'échantillon avec une énergie supérieure à 50 eV) varie assez peu avec la tension, et correspond pour le matériau considéré à une fraction d'électrons de ~29 à ~30 %.

- le nombre d'électrons secondaires rapides (d'énergie supérieure à 50 eV, valeur de coupure dans le programme) créés tout au long du parcours de l'électron, à l'occasion des processus "Electron-hole Pair" et "Ionization", est de quelques dizaines par électron incident, ce nombre augmentant presque linéairement avec la tension d'accélération.

### 3.2.1. Exemple 1 : rétrodiffusion à l'interface entre deux matériaux de numéros atomiques différents

Cet exemple est relatif à une ségrégation verticale d'un matériau tel que ZnO, plus lourd que la matrice environnante ( $\text{SiO}_2$ ). On effectue une traversée perpendiculairement à l'interface avec un faisceau de 5 kV auquel est attribué un diamètre de 1 nm. La simulation montre que de part et d'autre de l'interface, le coefficient de rétrodiffusion présente des anomalies remarquables. En particulier, du côté du matériau le plus lourd, le coefficient de rétrodiffusion est localement significativement plus élevé ( $\sim 0.35$ ) que celui de ZnO massif ( $\sim 0.3$ ). De même, du côté du matériau le plus léger, il est localement plus faible que celui de  $\text{SiO}_2$  massif. Des simulations de ce type peuvent s'avérer utiles pour analyser finement les contrastes en électrons rétrodiffusés au voisinage d'une interface, soit pour éviter des interprétations erronées de ceux-ci, soit pour optimiser par exemple les conditions de seuillage d'images destinées à la micrographie quantitative par analyse d'images.

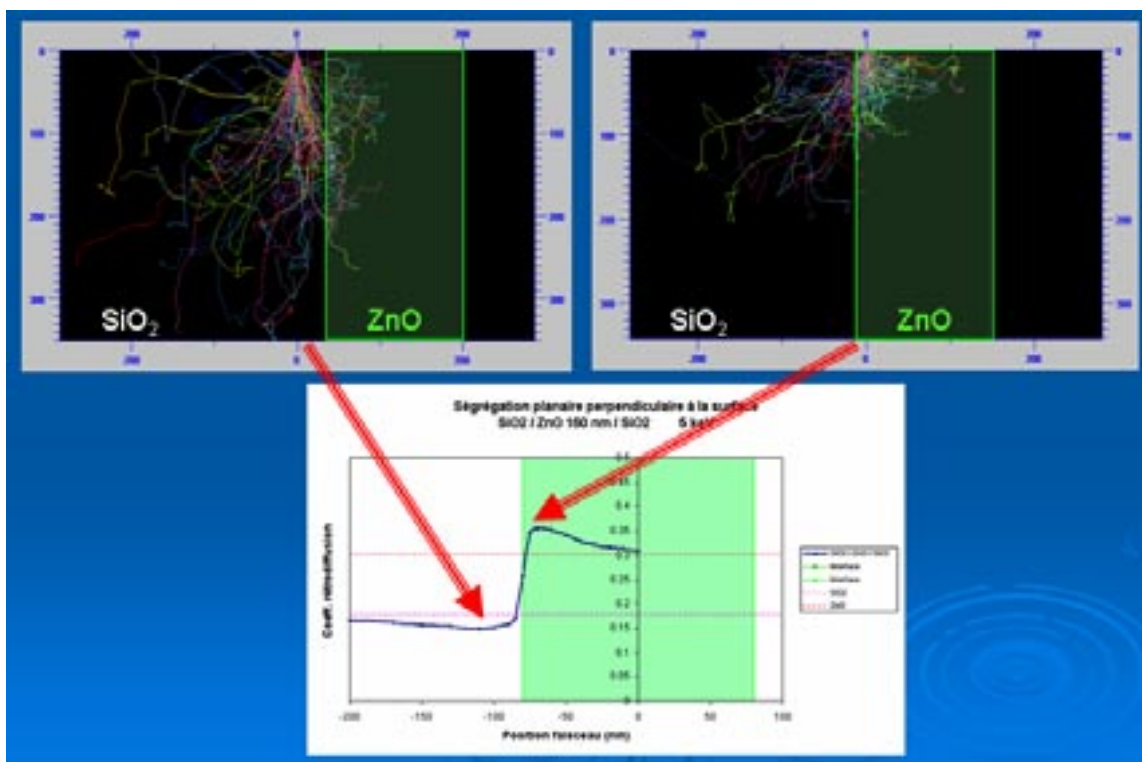


Fig. 7 – Variation du coefficient de rétrodiffusion à la traversée d'une ségrégation de ZnO dans une matrice de  $\text{SiO}_2$  (logiciel Hurricane)

### 3.2.2. Exemple 2 : simulation de la rétrodiffusion et de l'émission X au voisinage d'une cavité superficielle.

Cet exemple illustre l'effet d'une cavité hémisphérique à la surface d'un échantillon de SiC, choisi en raison du niveau d'absorption très différent des rayonnements X caractéristiques de ses deux constituants. Des profils au travers de cette cavité sont simulés, avec un faisceau de 10 kV et de 1 nm de diamètre. La figure 8 montre le profil selon le diamètre de la cavité parallèle à la direction du spectromètre X. Par rapport aux valeurs correspondant à une surface plane, on observe au voisinage de la cavité de fortes variations du coefficient de rétrodiffusion et de l'intensité C K émergent sous  $40^\circ$ . Alors que la rétrodiffusion se caractérise par un profil symétrique, l'émission X du carbone donne un profil très dissymétrique en raison de l'aspect directionnel de l'effet d'absorption. En rassemblant plusieurs lignes de profil parallèles et en les important dans un logiciel tel que

QuickGrid, on peut simuler des images de rétrodiffusion et de cartographie X, comme le montre la figure 8.

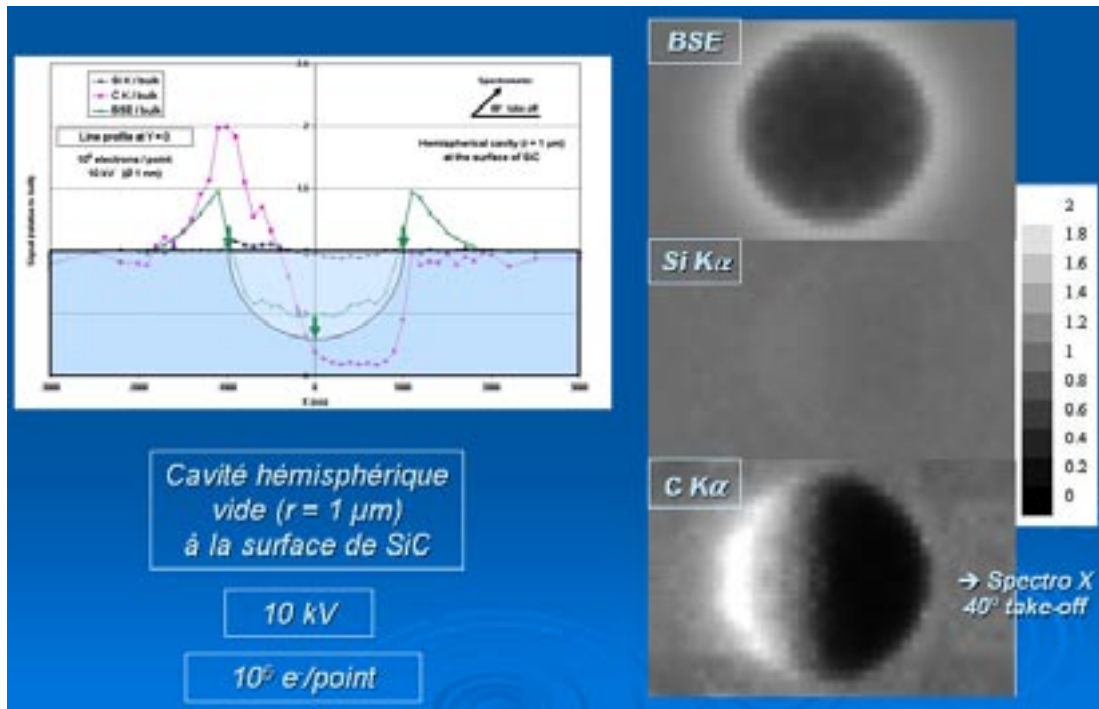


Fig. 8 – Simulation du coefficient de rétrodiffusion et de l'émission X au voisinage d'une cavité hémisphérique à la surface de SiC (5 kV, logiciel Hurricane).

### 3.2.3. Exemple 3 : analyse globale d'un échantillon chimiquement hétérogène.

Il n'est pas rare que des utilisateurs de système de microanalyse X cherchent à obtenir la composition moyenne d'un échantillon chimiquement hétérogène, soit en utilisant un faisceau largement défocalisé, soit en balayant une zone étendue sur la surface de l'échantillon, et en appliquant ensuite aux intensités X mesurées des procédures classiques de quantification. On sait que par principe, ce type de pratique est incorrecte, mais il est souvent difficile d'évaluer l'erreur que l'on est susceptible de commettre, dans la mesure où elle peut être très différente selon la nature chimique et la dimension des phases constituant l'échantillon, ainsi que selon les conditions opératoires (particulièrement la tension d'accélération).

Une simulation de Monte-Carlo peut apporter une réponse à ce type de question.

L'exemple qui suit est une représentation très simplifiée de la microstructure biphasée  $\gamma/\gamma'$  que l'on rencontre dans les aubes de turbines aéronautiques "monocristallines" en superalliage de nickel. Pour les besoins de cet exemple, la matrice  $\gamma$  peut schématiquement être assimilée à du nickel pur, cependant que  $\gamma'$  peut être assimilée au composé  $\text{Ni}_3\text{Al}$ . Ce composé est arrangé sous forme de précipités de forme "cuboïde", alignés de façon plus ou moins parfaite, selon l'axe de l'aube (cf. schéma dans fig. 9). La question peut se poser en ces termes: "Selon la dimension des cubes de  $\text{Ni}_3\text{Al}$ , et en gardant constant le rapport volumique des deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$ , quel est l'écart entre l'intensité  $\text{Al K}\alpha$  émergeant d'un tel matériau et celle qu'émettrait un matériau homogène ayant la même teneur globale en Ni et en Al ?".

On peut montrer par simulation que cet écart dépend de la dimension du motif constituant la microstructure, ainsi que de la position de la surface de l'échantillon par rapport à l'empilement supposé régulier de cubes. Ainsi, à 15 kV et en supposant un arrangement dans lequel la distance entre cubes est égale à 1.2 fois l'arête des cubes et où la surface de l'échantillon est confondue avec

la face supérieure d'une couche de cubes, on obtient un niveau d'erreur qui croît avec la dimension des cubes pour atteindre environ 30 % en valeur relative lorsque la dimension des cubes atteint 1  $\mu\text{m}$ . En effet, lorsque la dimension du motif augmente, l'analyse passe progressivement d'une analyse volumique à une analyse de plus en plus surfacique, dont le résultat devient régi par la fraction surfacique des phases en présence, et non plus par la fraction volumique.

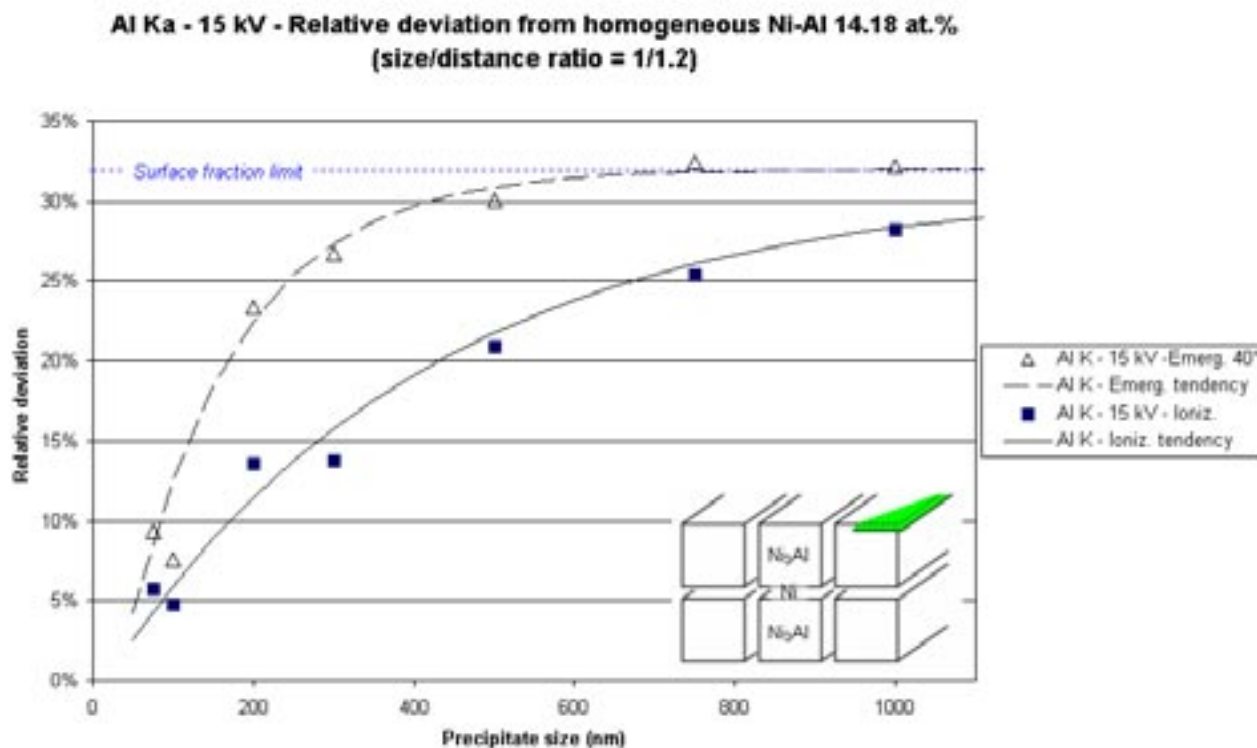


Fig. 9 – Ecart entre l'intensité Al Ka émergent d'un échantillon biphasé de structure  $\gamma/\gamma'$  (Ni/Ni<sub>3</sub>Al) et un échantillon Ni-Al de même composition globale (15 kV, émergence 40°, logiciel Hurricane).

## 4. Conclusion

Les modèles de simulation anciens, aux hypothèses simplificatrices, sont aisés et rapides à mettre en œuvre, mais leur domaine d'application est limité à des situations assez simples.

Au contraire, les modèles évolués récents ont un potentiel beaucoup plus important et sont applicables à un très grand nombre de problèmes complexes, mais leur principale limitation pratique est liée au temps de calcul important qu'ils engendrent.

## 5. References

- [1] Bishop H., PhD Thesis, University of Cambridge, (1965)
- [2] Shimizu R., Murata K., Shinoda G., Proc. ICXOM Orsay, Ed. Hermann, Paris, 127, (1966)
- [3] Henoc J., Maurice F., NBS Special Publ. 460, 61, (1976)
- [4] Myklebust R. L., Newbury D. E., Yakowitz H., Use of Monte Carlo Calculations in Electron Probe Microanalysis and Scanning Electron Microscopy, Ed. Heinrich, Newbury & Yakowitz, NBS Special Publication 460, 105, (1976)
- [5] Pouchou J.L., Pichoir F., Girard F., J. Microsc. Spectrosc. Electron., 5, 425, (1980)
- [6] Joy D.C., Monte Carlo Modeling for Electron Microscopy and Microanalysis, Oxford University Press, ISBN 0-19-508874-3, (1995)

- [7] Cazaux J., Jbara O., Microanalyse par sonde électronique: méthodes de Monte-Carlo et modèles de correction, Ed. Fialin, Pouchou & Bresse, EDP Sciences Paris, B-1, (1997)
- [8] Gauvin R., Hovington P., Drouin D., Scanning, 7, 202, (1995)
- [9] Murata K., Yasuda M., Kawata H., Scanning, 17, 228, (1995)
- [10] Reimer L., Lödding B., Scanning, 6, 128, (1984)
- [11] Salvat F., Mayol R., Computer Physics Communications, 74, 358, (1993)
- [12] Amman N., Karduck P., Microbeam Analysis, Ed. Michael & Ingram, San Francisco Press, 150, (1990)
- [13] Henoc J., Pichoir F., Microanalyse X par sonde électronique: méthodes de Monte-Carlo et modèles de correction, Ed. Fialin, Pouchou & Bresse, EDP Sciences Paris, A-1, (1997)
- [14] Salvat F., Fernandez-Varea J.M., Nucl. Instr. & Meth. in Physic Research, B63, 255, (1992)
- [15] Ashley J.C., Ritchie R.H., Phys. Stat. Sol., 40, 623, (1970)
- [16] Ritchie R.H., Phys. Rev., 114, 3, 644, (1959)
- [17] Gryzinski M., Phys. Rev., 138, 2A, A305, (1965)