

PARIS 4 – 5 décembre 2014

**Pourquoi vouloir absolument  
travailler  
à basse tension ?  
*intérêts et limitations***

*Jacky RUSTE*  
GNMEBA

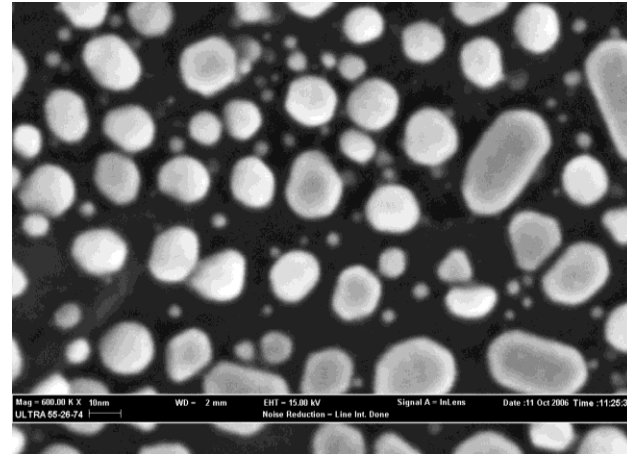
***Dans les années 90 une nouvelle génération de MEB est apparue :***

**Les MEB « haute résolution » ou MEB FEG**

***Qu'ont-ils apporté de plus ?***

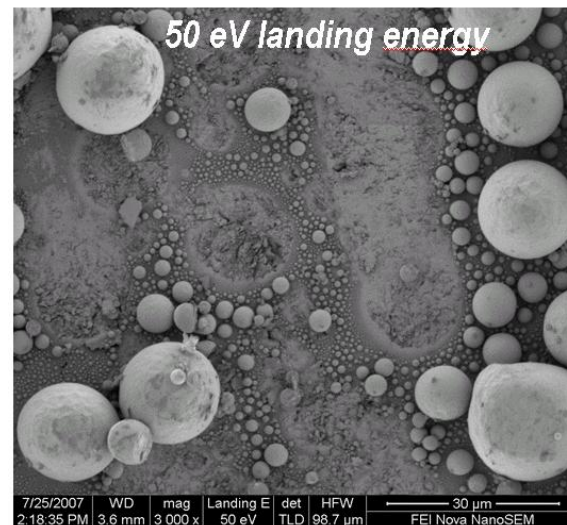
**1 – une très grande résolution en image**

***résolution < 0,8nm  
@Zeiss***



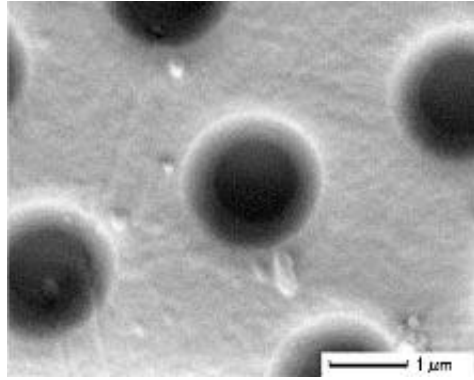
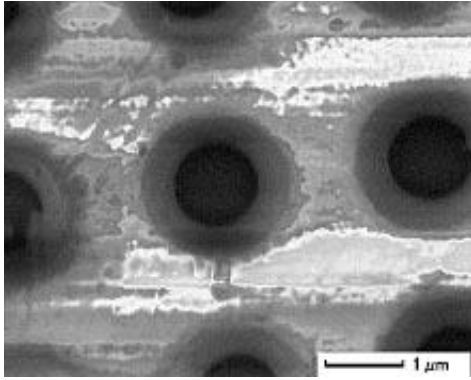
**2 – De permettre l'utilisation de très basses tensions d'accélération**

***Observation de billes d'étain  
à une tension de 50 volts  
@FEI***



# Pourquoi travailler à basse tension ?

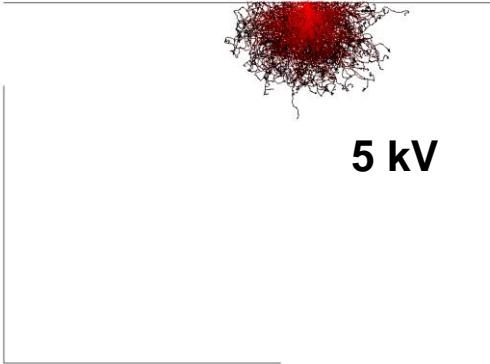
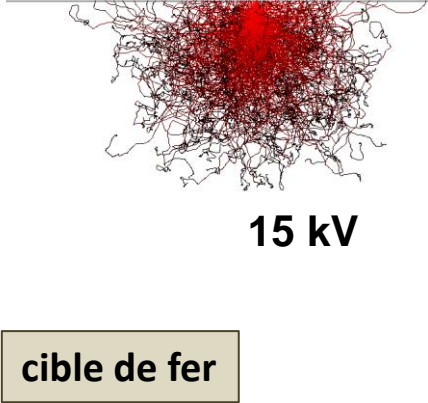
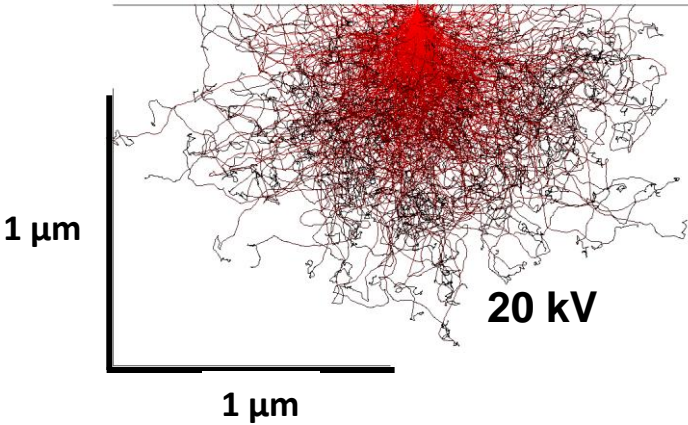
1 – réduire les effets de charge



1 kV : effets de charges

0,1 kV : plus d'effets de charges

2 – réduire la pénétration électronique pour améliorer la résolution spatiale



résolution spatiale ?

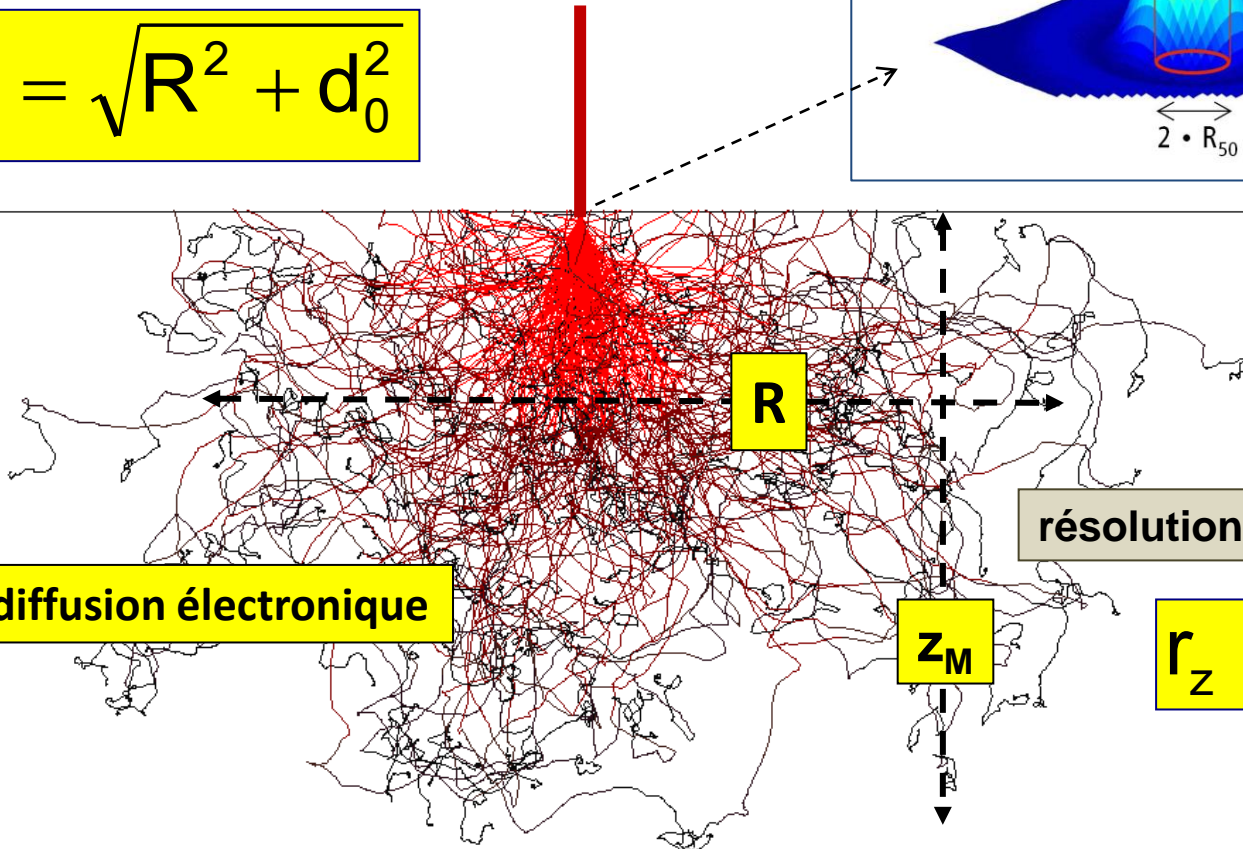
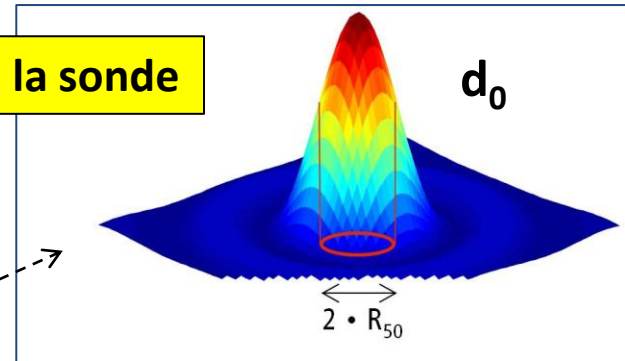
de quoi s'agit-il exactement ?

# 1 – Le volume d'analyse (la « poire » d'interaction) : qu'est ce qui définit ses dimensions ?

résolution latérale :

$$r_x = \sqrt{R^2 + d_0^2}$$

2 – le diamètre de la sonde



1 – la diffusion électronique

résolution en profondeur :

$$r_z = z_M$$

1 ⇔ minimiser la diffusion électronique...

2 ⇔ minimiser le diamètre de la sonde électronique...

## I – Minimiser le diamètre de la sonde

Deux relations fondamentales régissent le comportement du canon :

$$B = \frac{J_0 eU}{\pi kT}$$

La brillance est proportionnelle à la tension d'accélération  $U$  et dépend de la densité d'émission électronique  $J_0$  qui est fonction de la nature de la cathode et du mode d'émission

Autre définition de la brillance :

$$B = \frac{4I}{\pi^2 \alpha^2 d^2}$$

Pour une brillance donnée, l'intensité électronique  $I$  et le diamètre  $d$  de la sonde varient en sens inverse...

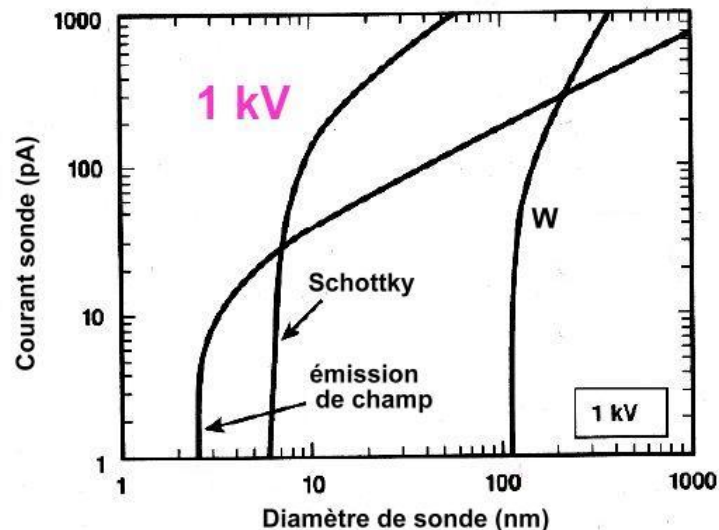
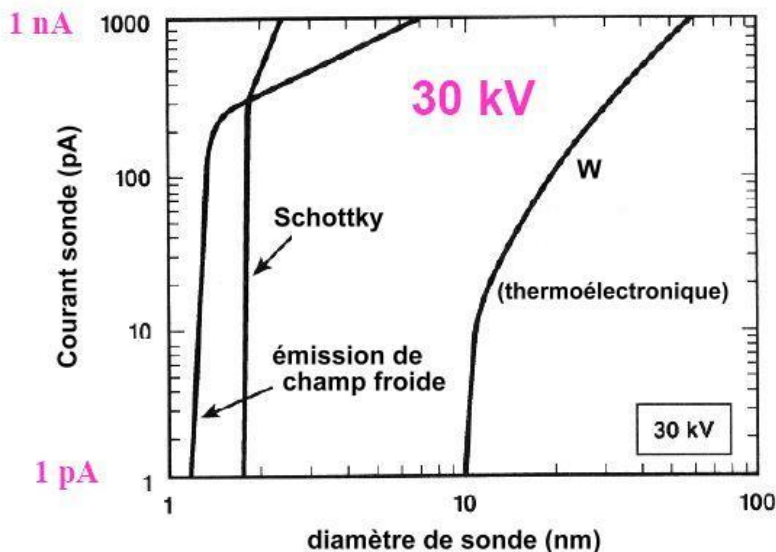
**Conclusion :**

si on veut diminuer la tension tout en gardant un diamètre de sonde et une intensité électronique acceptables... le choix du type de canon s'impose...

Les canons « FEG » à émission Schottky offrent des caractéristiques très intéressantes :

1 – Très haute résolution en imagerie grâce à un très faible diamètre de sonde (de l'ordre du nm)

2 – de très bonnes performances à faible tension (< 1kV) aussi bien en terme de diamètre de sonde que d'intensité électronique



3 configurations :

Filament de W + lentille conique :	Cs = 20 mm, Cc = 10 mm
Cathode Schottky + lentille Snorkel :	Cs = 3,2 mm, Cc = 2,7 mm
Cathode froide + lentille à immersion :	Cs = 2 mm, Cc = 1,8 mm

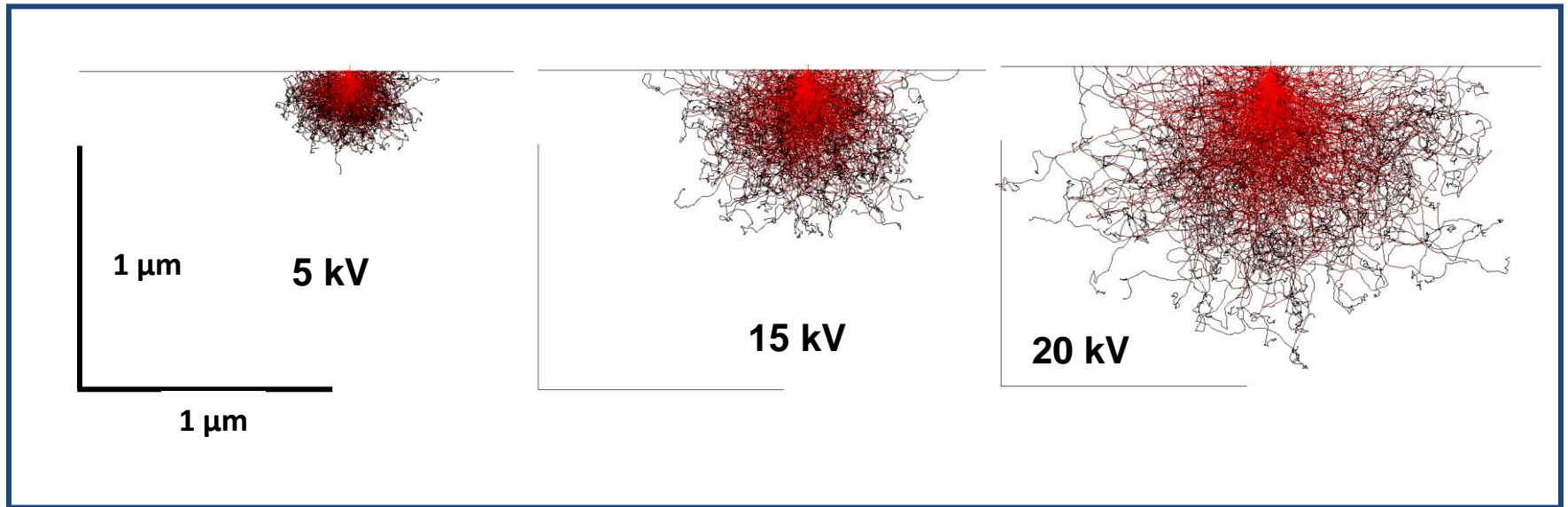
Méthode Kenray et Cliff (1984)

***Même si ces courbes sont anciennes et ne donnent pas les valeurs numériques actuelles, elles reflètent bien les variations respectives selon les types de canons...***

En parallèle, il est aussi nécessaire de réduire certaines aberrations optiques d'où le développement de nouvelles colonnes que Frédéric et Francine vont nous décrire en détail...

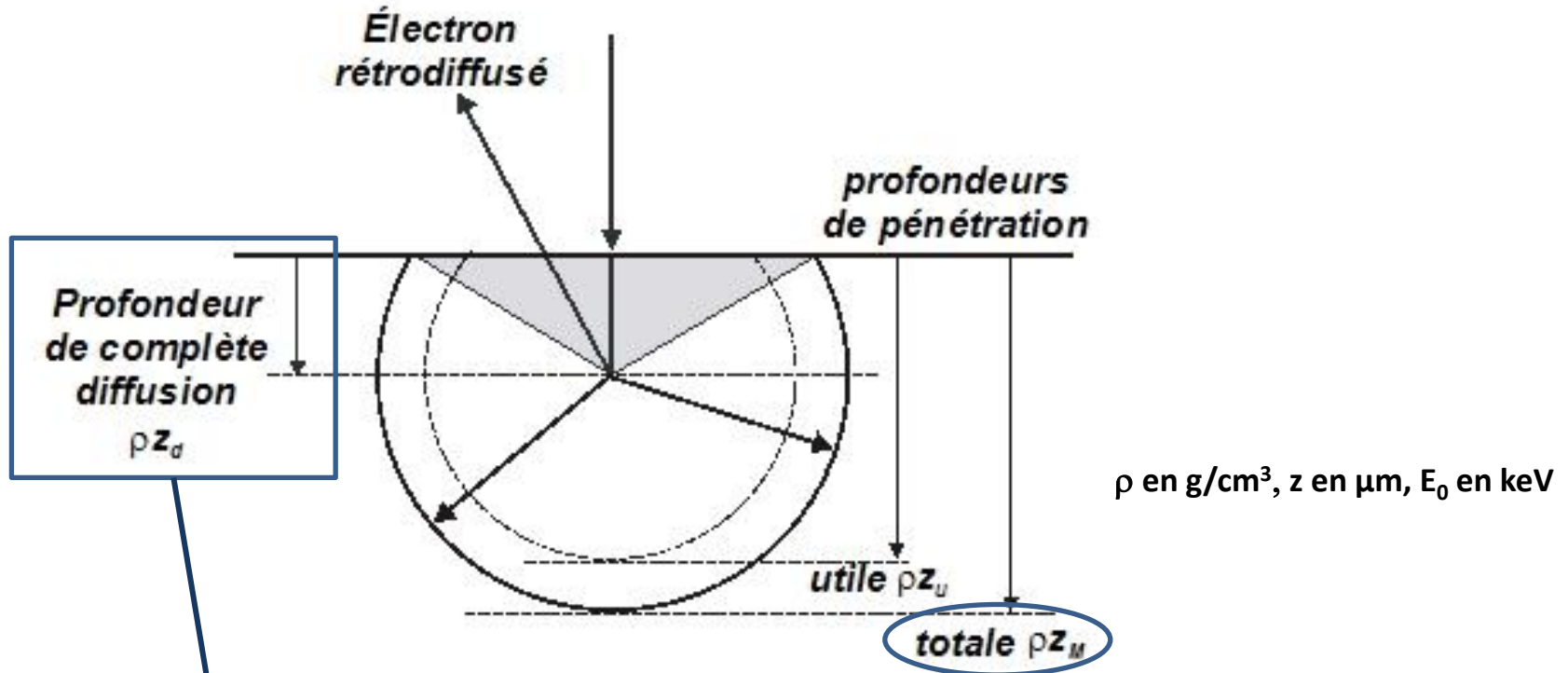
## II – Minimiser le volume de la poire d'interaction

### 1 – La pénétration des électrons dans la cible est fortement liée à l'énergie des électrons



Simulation de Monte Carlo dans une cible de fer pour différentes tensions d'accélération

# Modèle simplifié de pénétration électronique (« Archard et Mulvey »)



**Profondeur de complète pénétration (E=0)**

**Profondeur de complète diffusion**

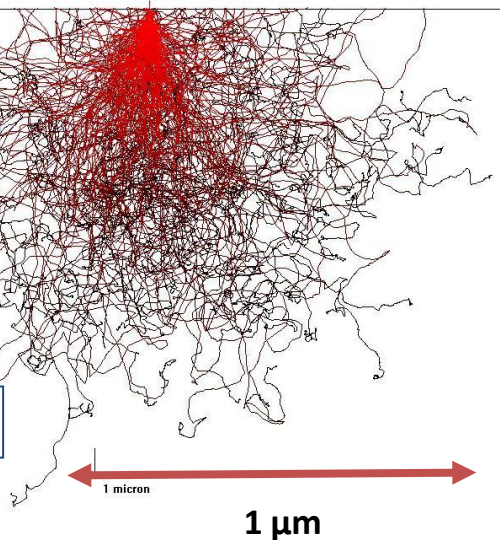
$$z_M = 0,064 \frac{1}{\rho} E_0^{1,68} \quad (\text{Anderson})$$

$$z_M = 0,033 \frac{1}{\rho} \frac{A}{Z} E_0^{1,7} \quad (\text{Castaing})$$

$$z_d = 0,5 z_M \exp \left[ -\frac{z^{1,25}}{140} \right] \quad (\text{J. Ruste})$$

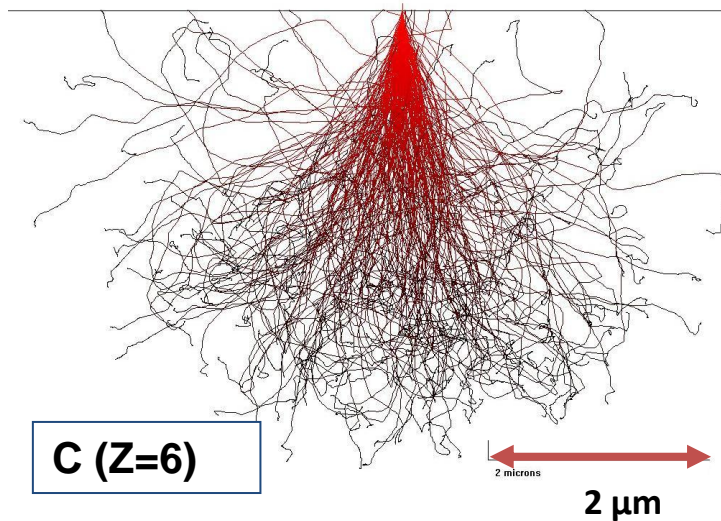
## 2 - Mais aussi de la nature de la cible (Z)

**Fe (Z=26)**

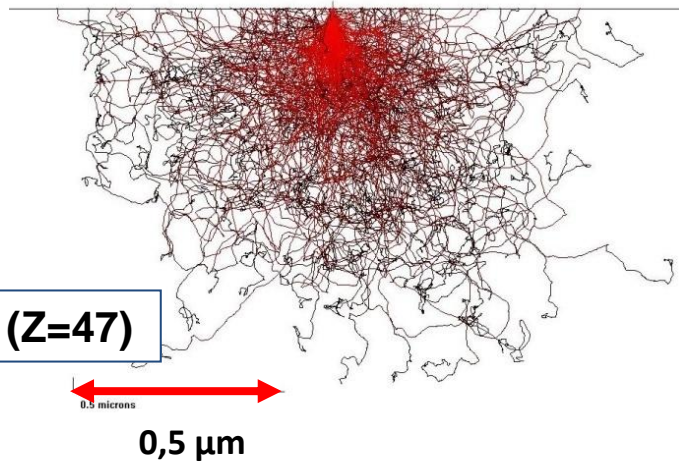


**20 kV**

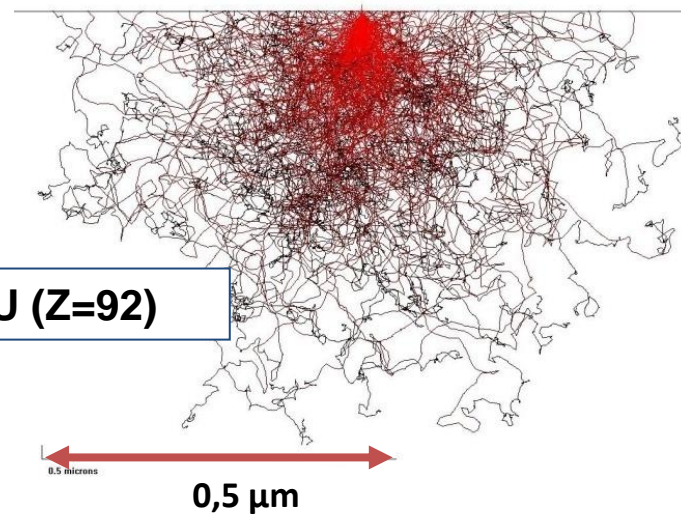
**C (Z=6)**

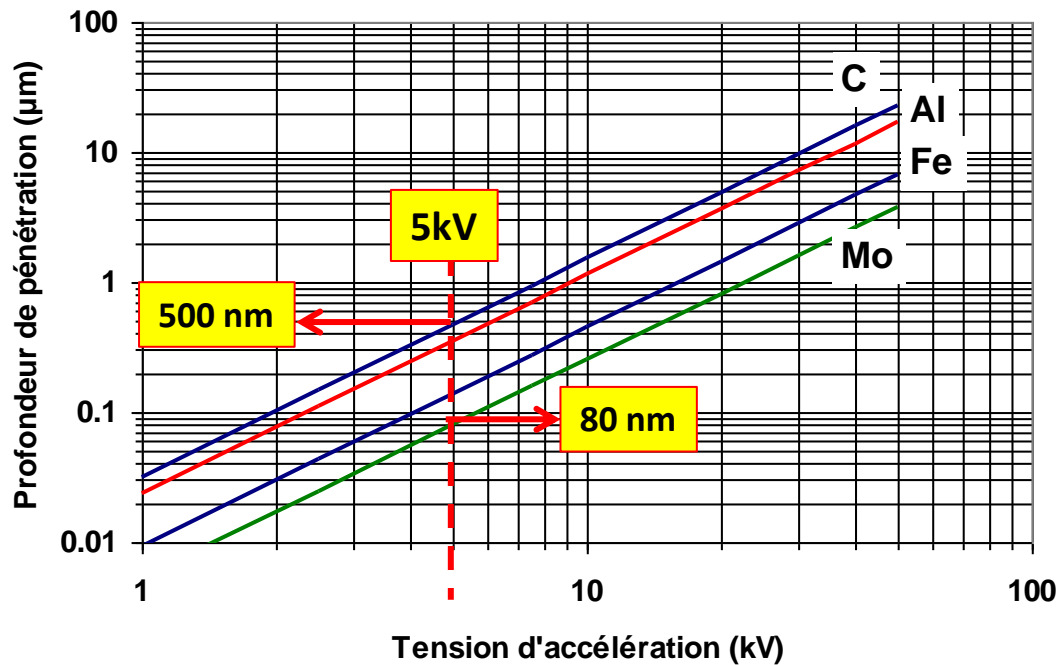


**Ag (Z=47)**



**U (Z=92)**

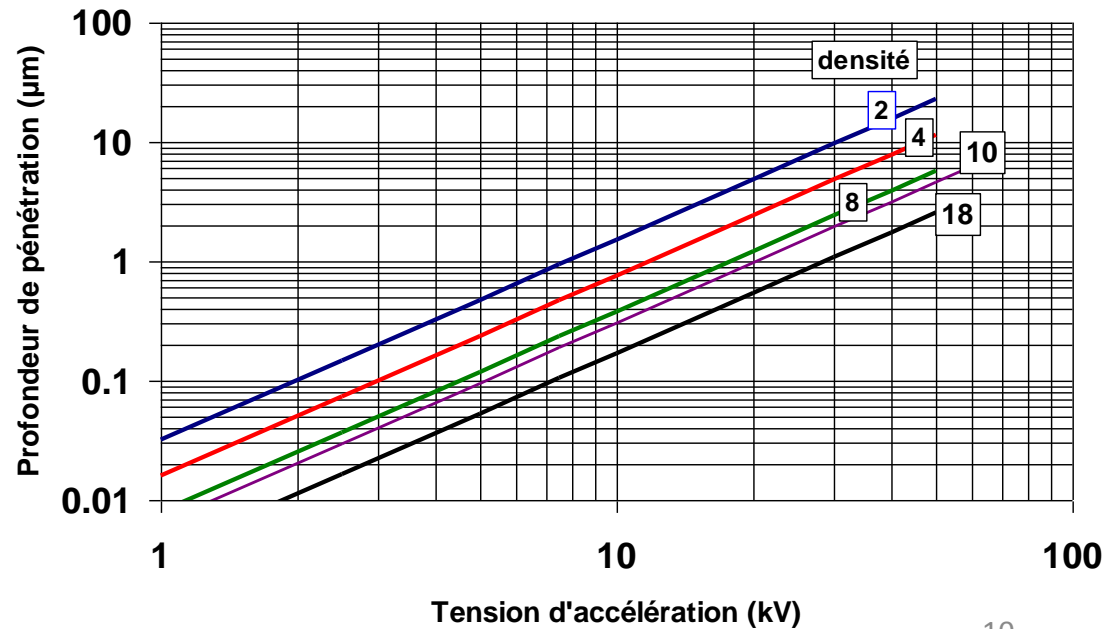




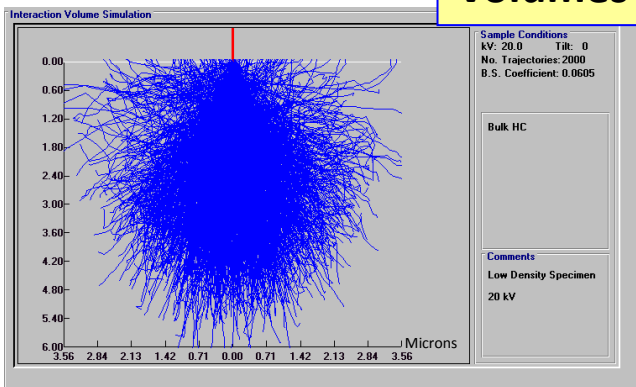
**Profondeur de complète pénétration en fonction de la tension d'accélération**

*pour différentes cibles*

*en fonction de la densité de la cible*

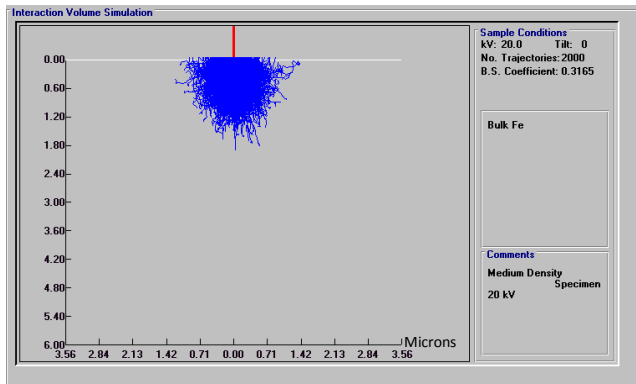
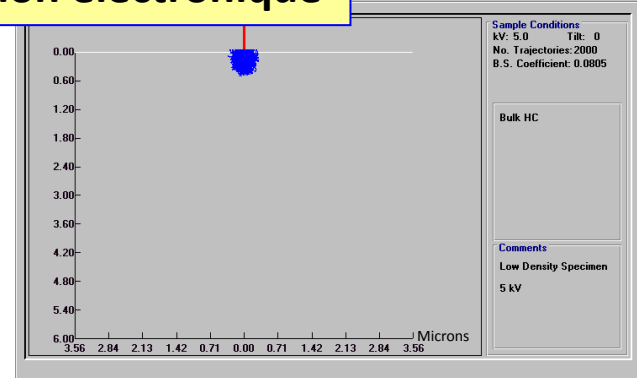


# Volumes de la zone de pénétration électronique



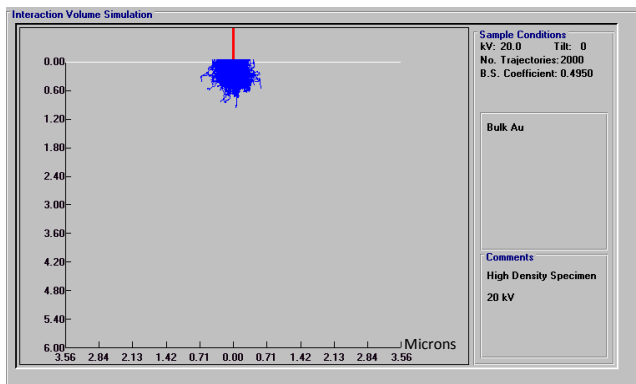
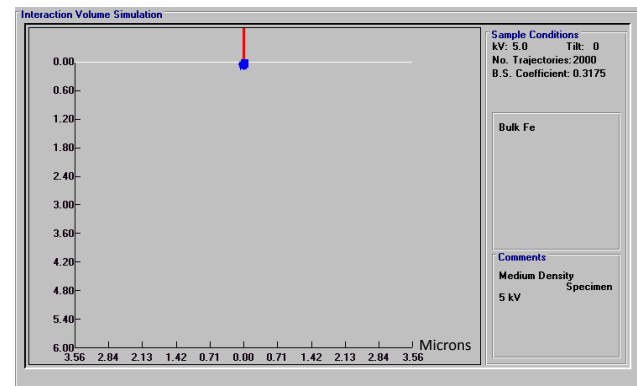
C

*matériaux de faible densité*



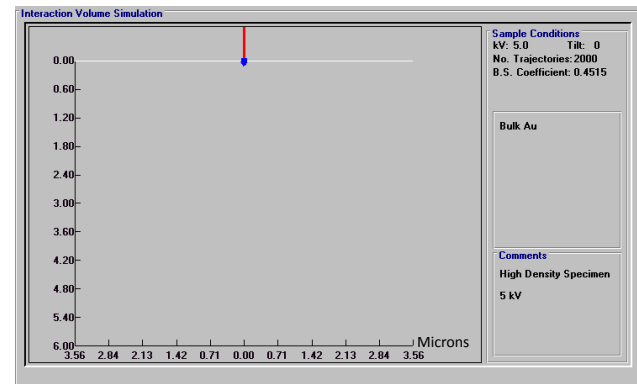
Fe

*matériaux de densité moyenne*



Au

*matériaux de forte densité*

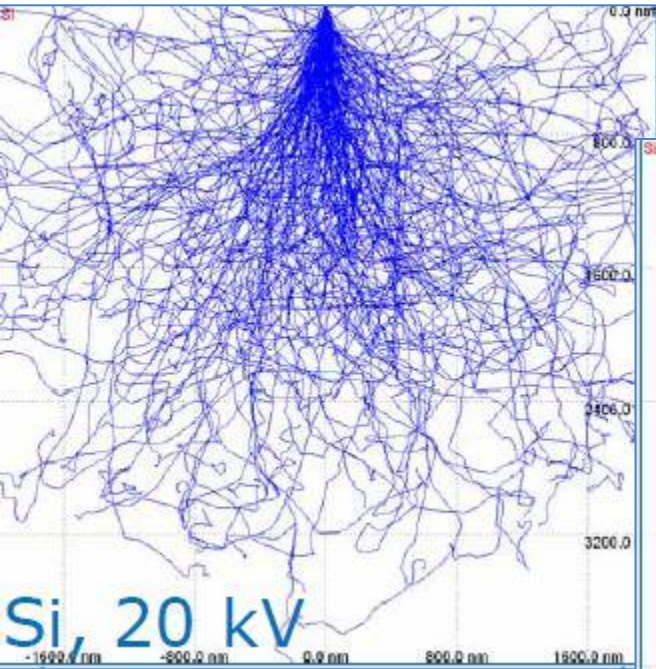


20 kV

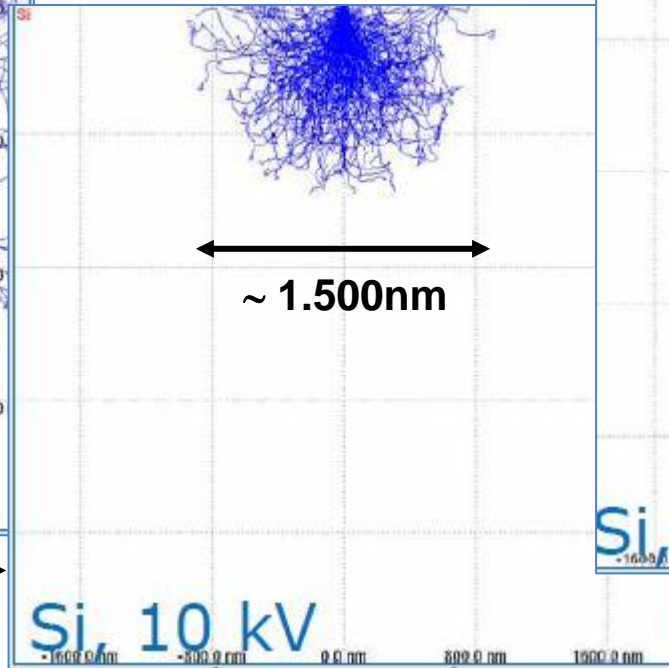
(d'après un document Jeol)

5 kV

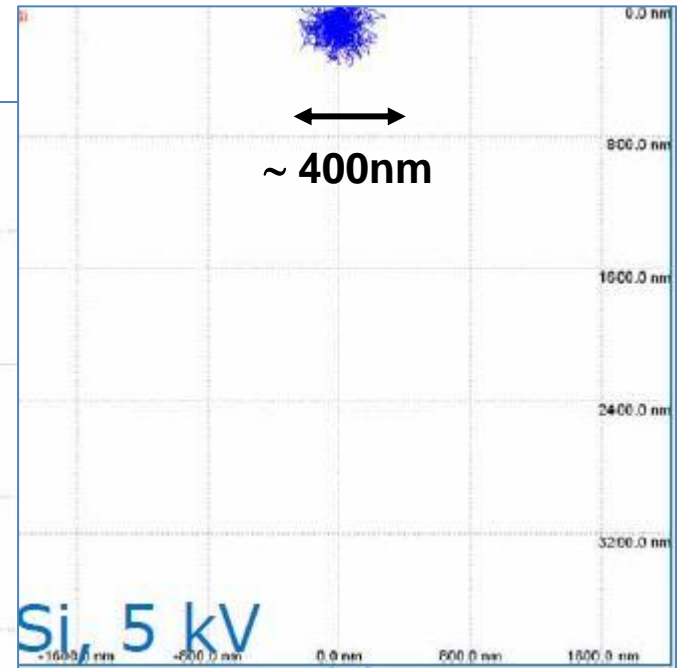
# Cible de Si



~ 4.000nm

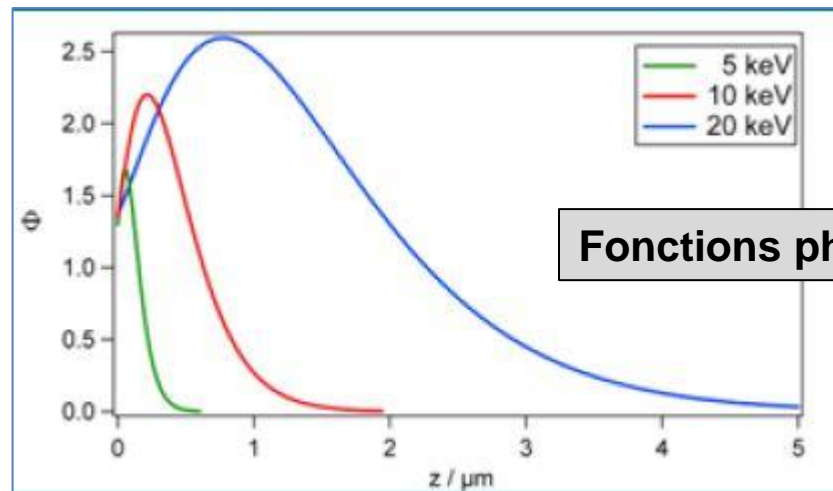


~ 1.500nm



~ 400nm

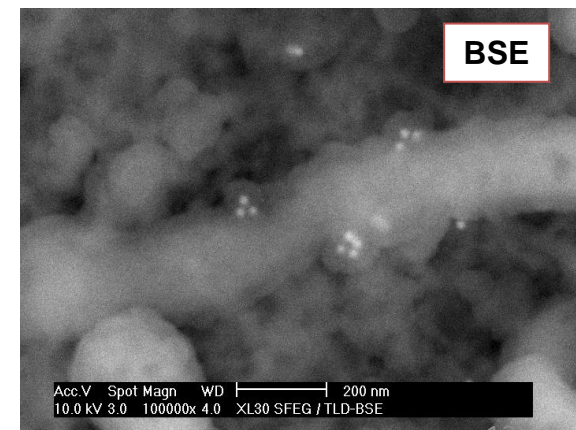
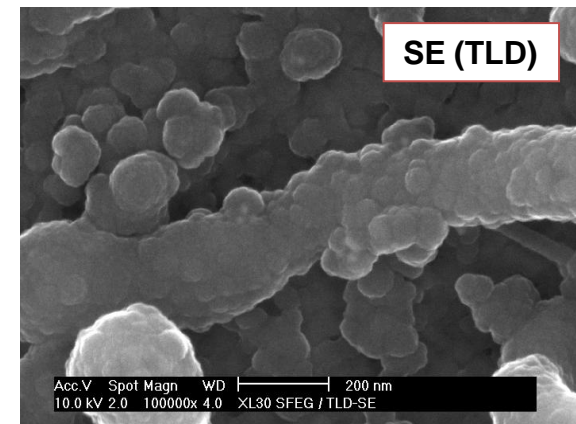
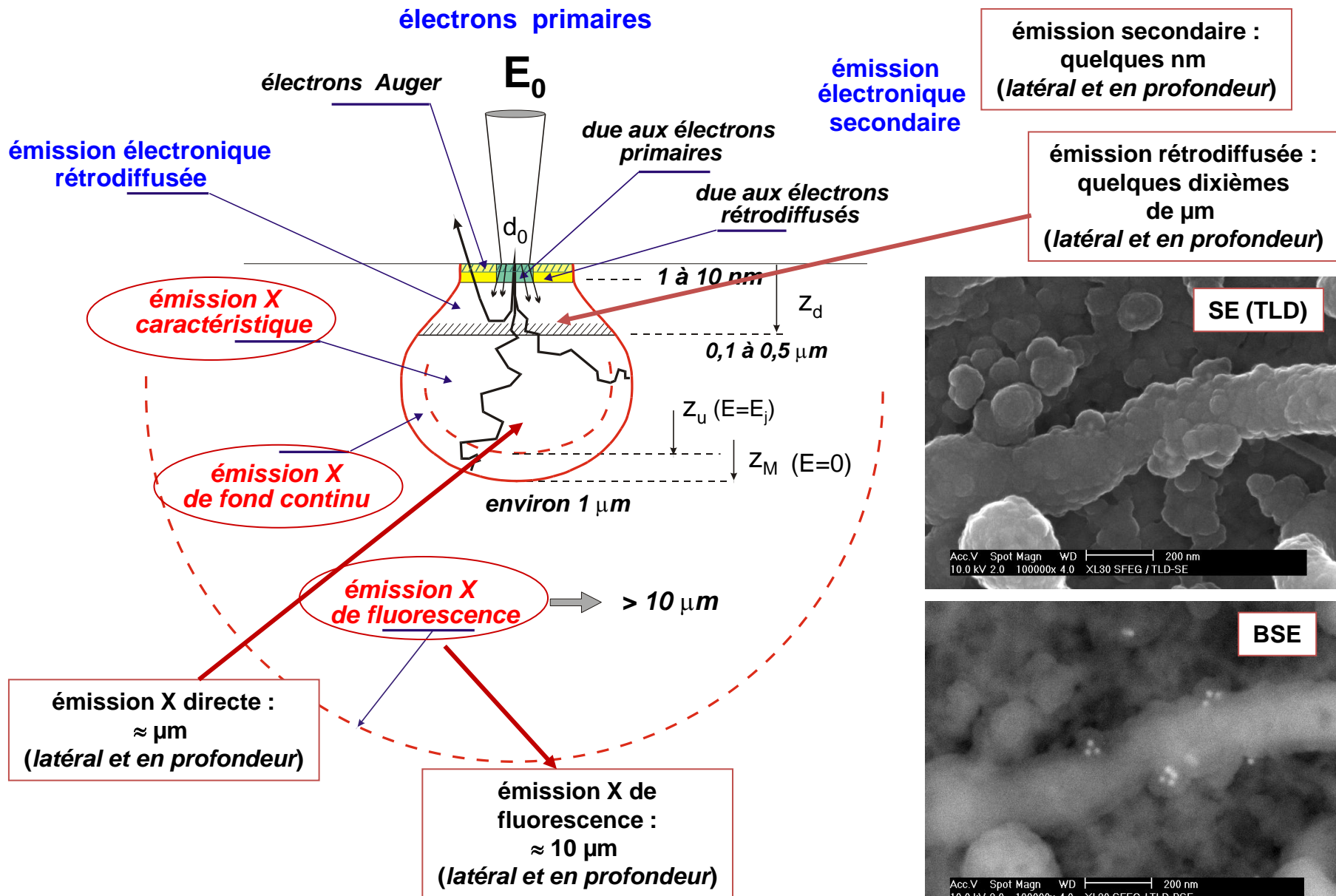
Naturellement la résolution en analyse X varie avec la pénétration électronique...



Fonctions  $\phi(\rho z)$

(@Bruker)

Dans les conditions standards, Il n'y a pas « une résolution spatiale » mais plusieurs en fonction des signaux détectés :

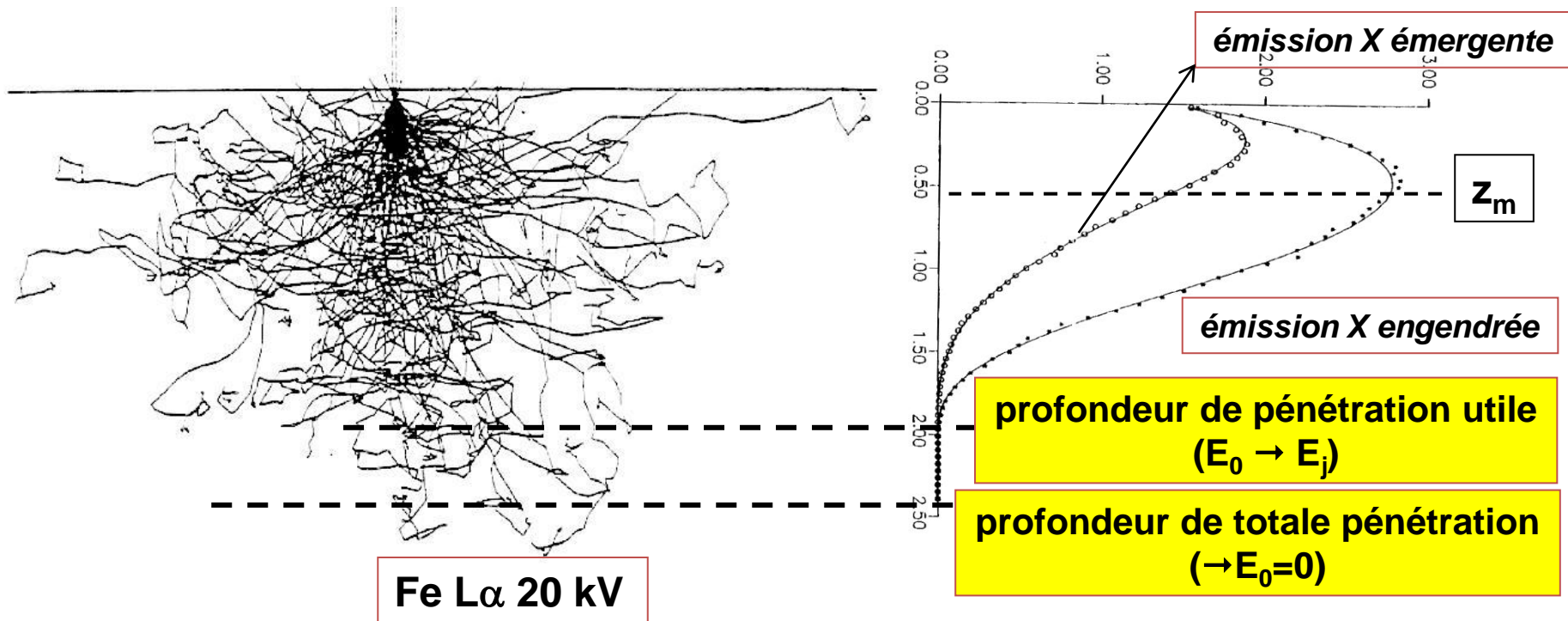


## Pour l'émission X, la réalité est plus complexe...

**Ne pas confondre « pénétration électronique », « émission X engendrée » et « émission X détectée », ce ne sont pas les mêmes volumes !**

Le volume réellement analysé dépend de :

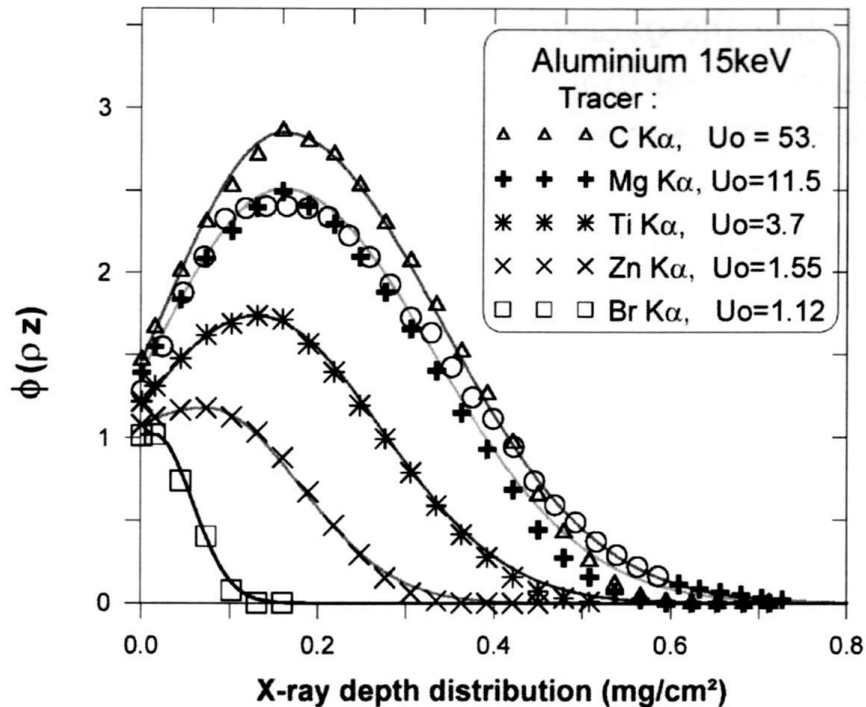
- 1 – l'énergie d'ionisation relative à l'élément et à la raie analysée
- 2 – l'absorption photoélectrique de cette raie dans la cible



**Profondeur de pénétration utile ( $E=E_j$ )  
(limite de l'émission X caractéristique)**

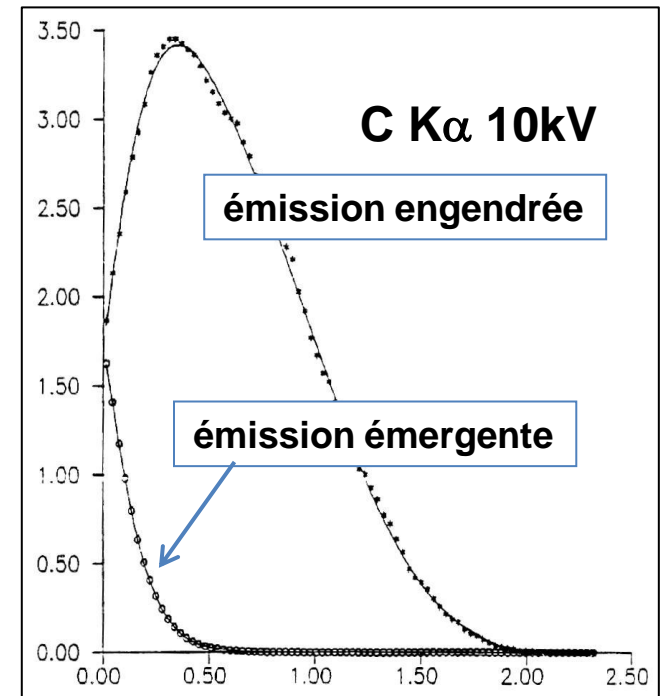
$$z_U = 0,064 \frac{1}{\rho} [E_0^{1,68} - E_j^{1,68}]$$

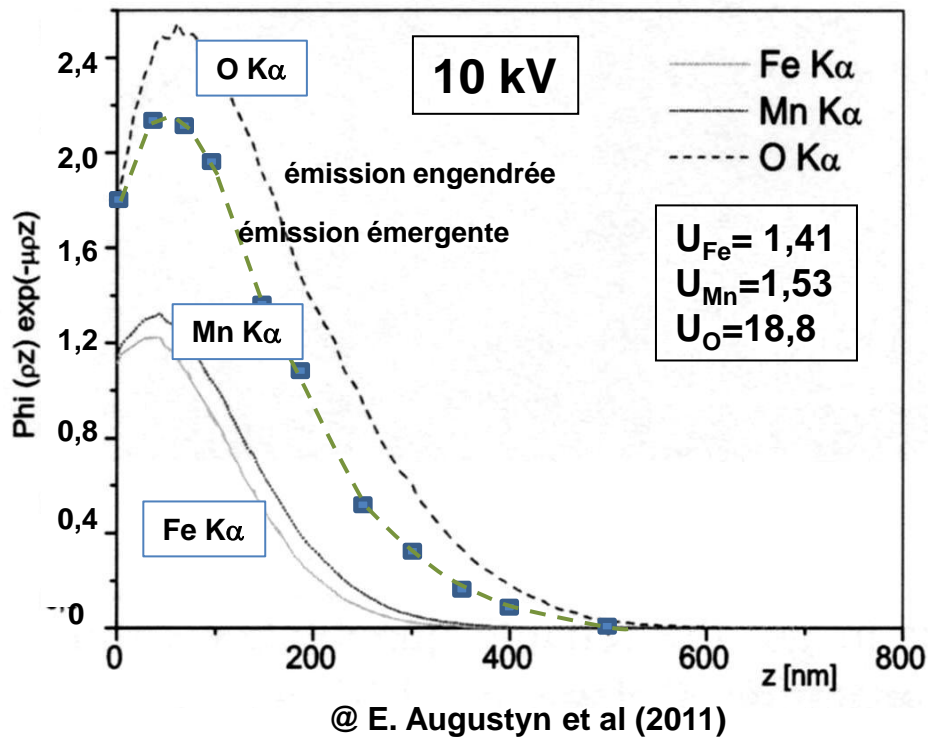
La profondeur d'émission engendrée varie très fortement avec le taux d'excitation..



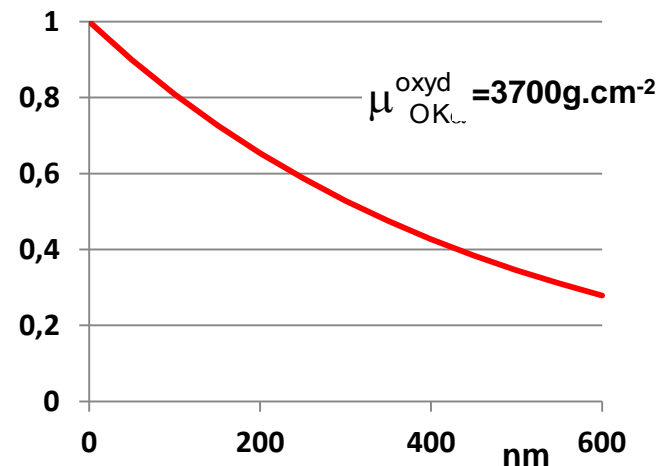
Fonction de distribution de l'émission X engendrée dans une cible d'aluminium à 15 kV pour différents rayonnements (en trait plein modèle X-PHI de C. Merlet)

Quant à la profondeur de l'émission émergente, elle dépend en plus fortement de l'absorption





## Distribution de l'émission X émergente dans un oxyde (Fe, Mn)O



Courbe d'absorption de O K $\alpha$  dans l'oxyde

Mais si la profondeur d'analyse est modifiée, il n'en est pas de même pour la résolution latérale qui n'est pas modifiée par l'absorption...

La résolution latérale peut être calculée par la relation (C. Merlet) :

$$R_s = \sqrt{4 (Z_u - z_m)^2 + d_0^2} \longrightarrow \text{diamètre de sonde}$$

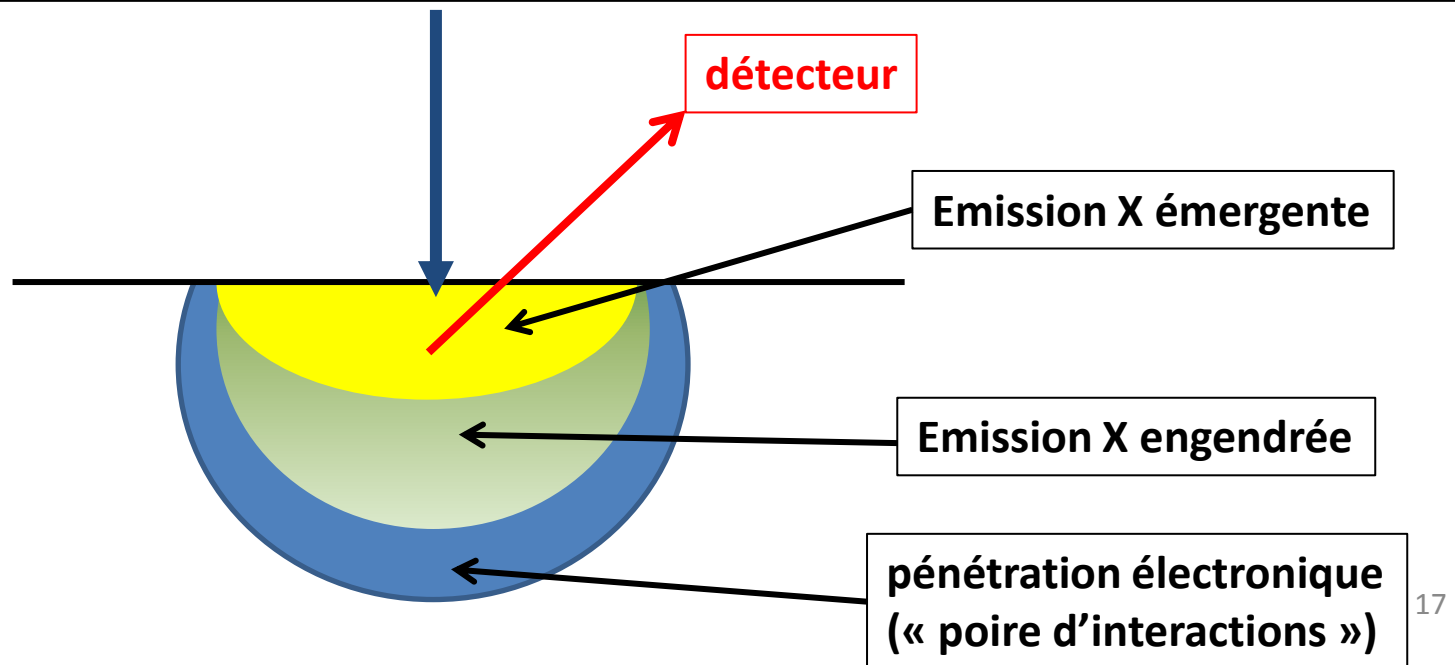
profondeur utile (« X ray range »)

profondeur maximale d'émission X (phiroz)

**Il faut bien avoir à l'esprit que pour une tension donnée, quelque soit l'élément analysé on a un certain volume de pénétration des électrons mais que le volume d'analyse n'est pas identique pour tous les éléments !**

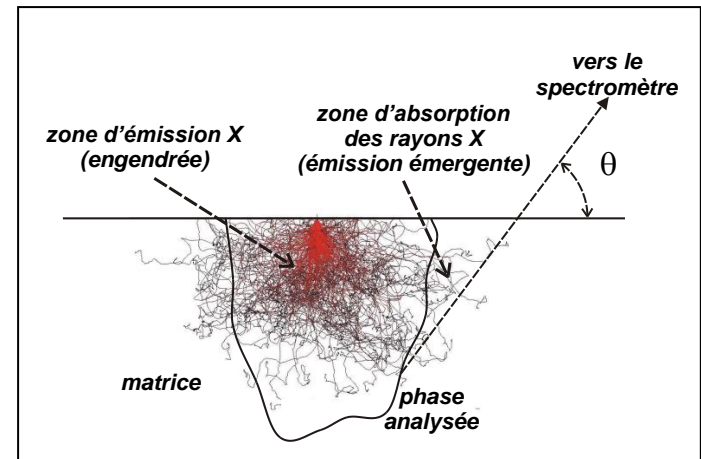
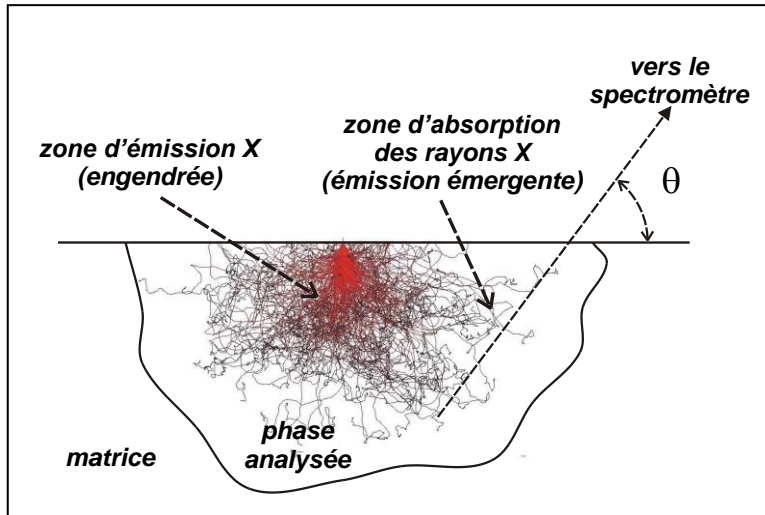
**Il dépend en fait à la fois du taux d'excitation (c'est-à-dire de l'énergie d'ionisation du niveau atomique) mais aussi du coefficient d'absorption massique moyen dans la cible de la raie analysée ...**

**Naturellement plus la tension sera faible, moins la pénétration électronique sera importante et plus les effets d'absorption seront négligeables...**

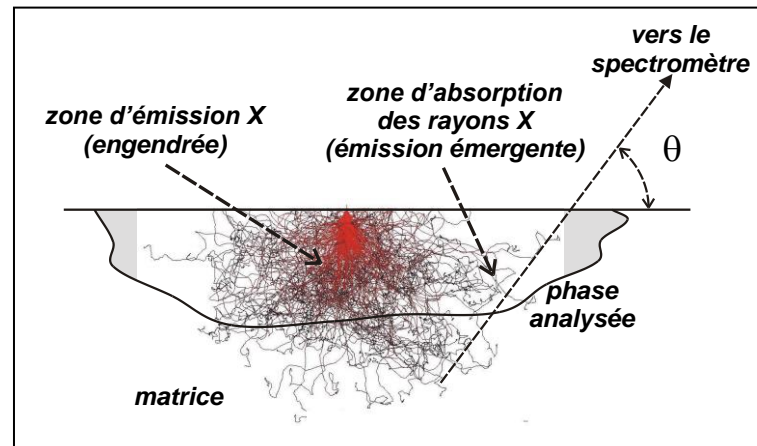


La microanalyse quantitative suppose que l'échantillon est parfaitement homogène dans la zone qui participe à l'émission X engendrée mais aussi dans celle que traversent les rayons X avant d'émerger.

*Pour qu'une analyse soit correcte, il faut que la totalité du volume d'émission X soit incluse dans la phase analysée, ainsi que la zone d'absorption des rayons X qui émergent vers le spectromètre.*



*La phase semble plus grande que le volume d'émission, mais son épaisseur n'est pas suffisante : là aussi, la matrice participera à l'émission totale.*



*La phase est nettement plus petite que le volume d'émission, la matrice participera à l'émission totale.*

## ***En résumé...***

**Pour réellement améliorer la résolution spatiale, en profondeur et latéralement, il faut donc à la fois:**

- avoir un faible diamètre de la sonde,**
- réduire la tension d'accélération,**
- tout en disposant d'une intensité électronique suffisante...**

### **Mais finalement**

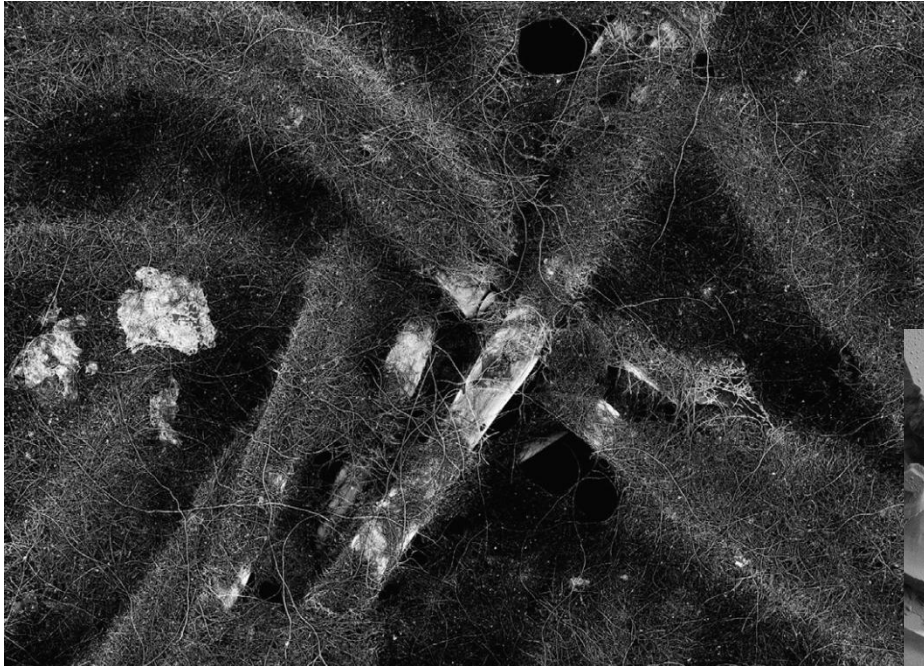
- est-ce vraiment utile de baisser la tension ?**
- quelles en sont les conséquences ?**

**1 - en microscopie électronique à balayage**

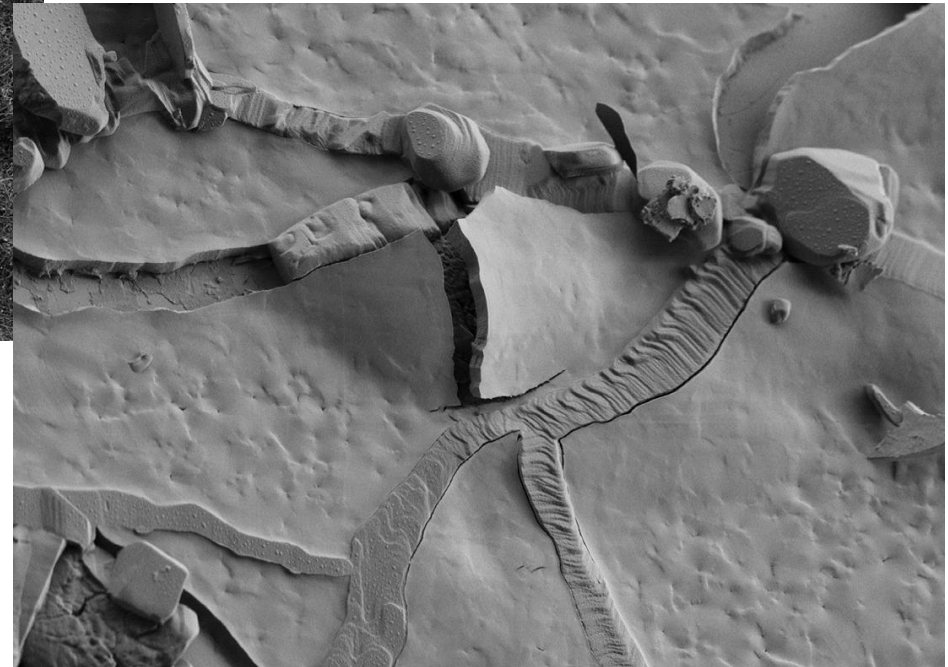
**2 – en microanalyse**

# 1 - en microscopie électronique à balayage

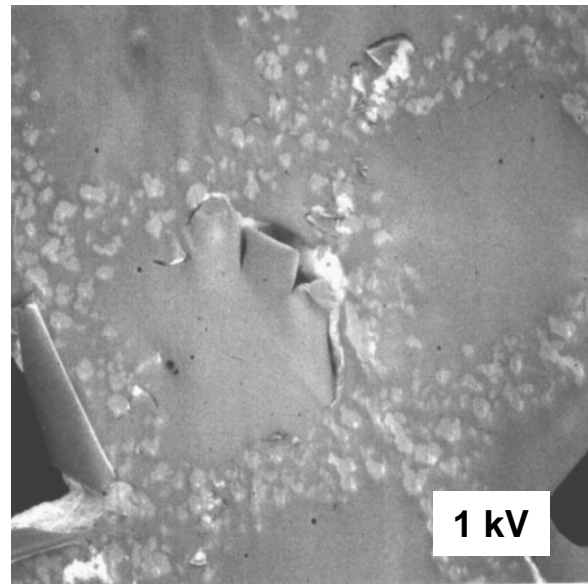
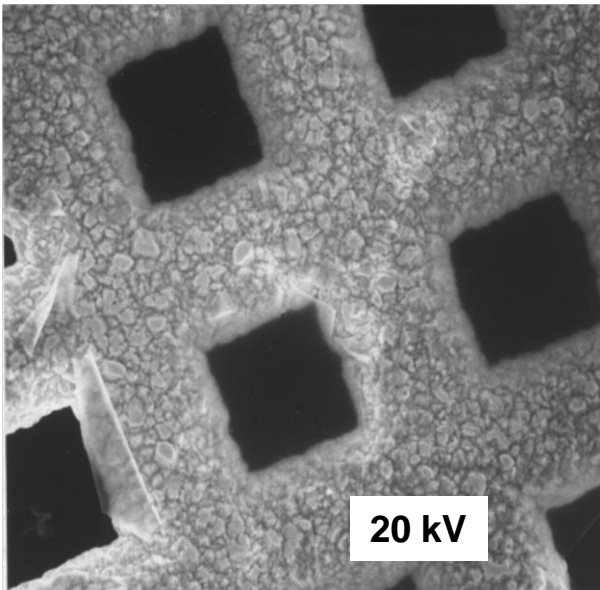
(a) Cette réduction du volume d'interaction à basse tension va conduire inévitablement à une information de plus en plus superficielle.



nanotubes de carbones  
30 V – 250 pA  
*@Zeiss*



dépôt de silice  
30 V – 250 pA  
*@Zeiss*



(@ D. Boivin)

*Image d'électrons secondaires (SE) À 20 kV et 1 kV  
d'un film de C de 20 nm déposé sur une grille de Cuivre*

**Mais qu'est-ce que la surface en réalité ?**

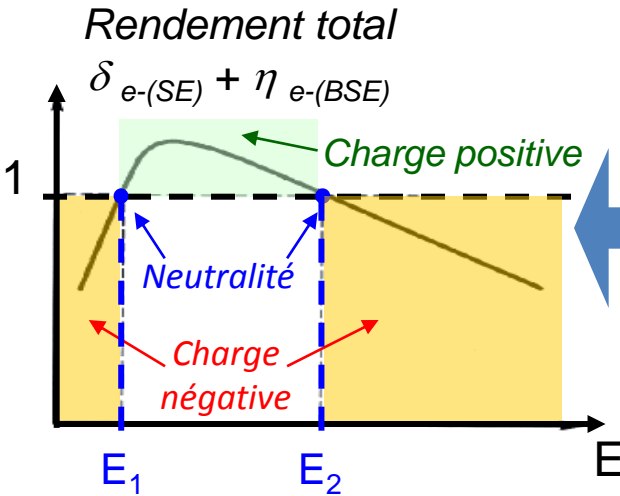
**pollution ? contamination ? préparation d'échantillon ?  
toutes ces questions deviennent extrêmement importantes !**

**y répondront :**

- Evelyne Darques–Ceretti : qu'est-ce qu'une surface ?
- Patrice Lehuédé : préparation des échantillons
- Mona Moret : la contamination

## (b) Modification du rendement $\delta$ d'émission SE avec l'énergie $E$ des électrons primaires

Rendement  $\delta$  : Nombre d'électrons SE émergent par électron primaire incident



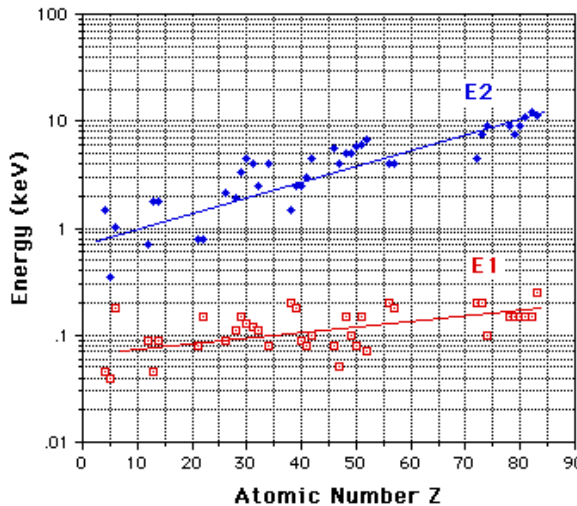
- A basse énergie l'augmentation du ralentissement ou perte d'énergie des électrons ( $eV/\text{\AA}$ ) accroît le nombre d'électrons SE engendrés.
- A basse énergie, la pénétration est si faible que la plupart peuvent émerger → Augmentation du rendement d'émission.
- A très basse énergie, le rendement décroît, car plus assez d'énergie pour engendrer des SE.

### 3 domaines de tension à considérer définis par $E_1$ et $E_2$ :

Neutralité de l'échantillon :  $E = E_1$  et  $E = E_2$

Charge positive de l'échantillon :  $E_1 < E < E_2$

Charge négative de l'échantillon :  $E < E_1$  ou  $E > E_2$

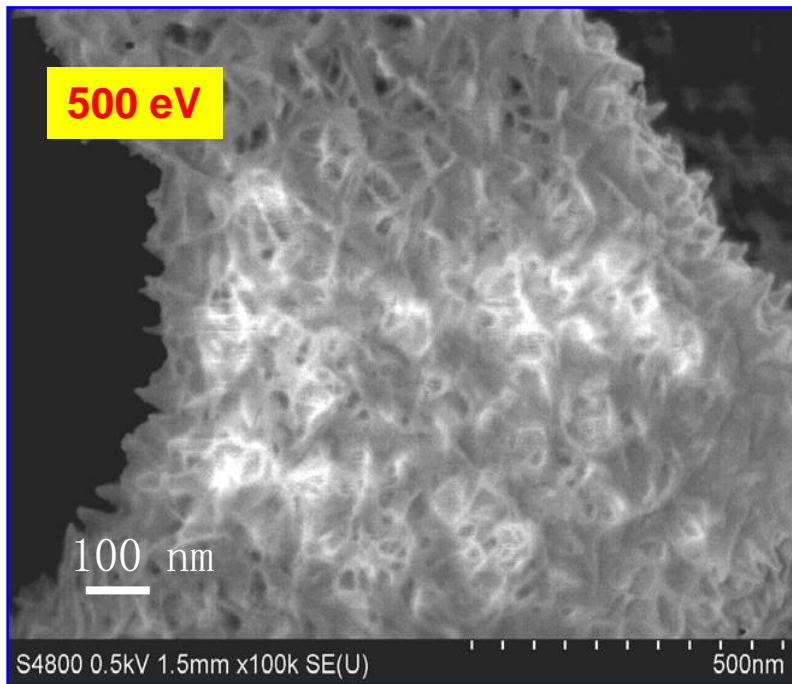


(@ D. Boivin)

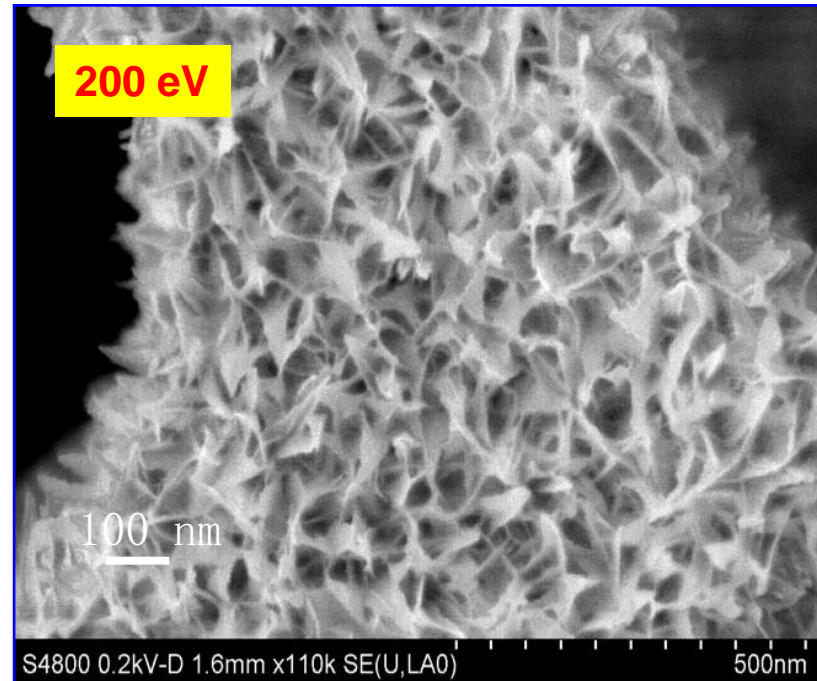
- $E_1$  et  $E_2$  augmentent avec le numéro atomique  $Z$
- $E_2$  peut être fonction de la densité
- Quelques éléments ne permettent pas d'atteindre la neutralité comme Li, Ca
- La neutralité à  $E_2$  pour les éléments de faible  $Z$  nécessite de faibles énergies comprises entre 0,5 keV et 3 keV.

Possibilité d'imager les échantillons isolants à basse tension  $E_2$  avec de la résolution dans un MEB-FEG

**Oxyde d'aluminium à 500 eV et 200 eV  
(Polarisation Echantillon)**



*Documents HITACHI*



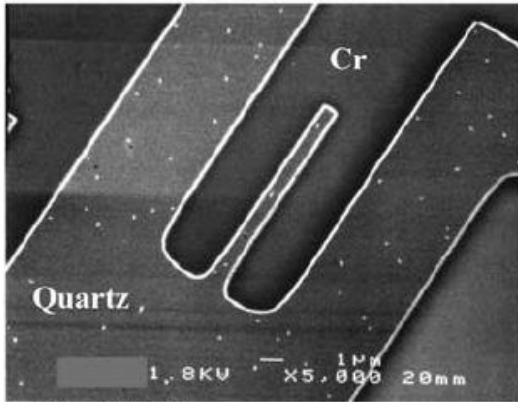
**Élimination des phénomènes de charge à 200 eV**

**L'observation à basse énergie d'échantillons isolants est effectivement possible ou significativement améliorée. Dans certains cas, cela reste un problème plus complexe en réalité, à cause de phénomènes dynamiques de charge, fonction de l'échantillon lui-même, de la dose électronique, de la vitesse de balayage, etc. ...)**

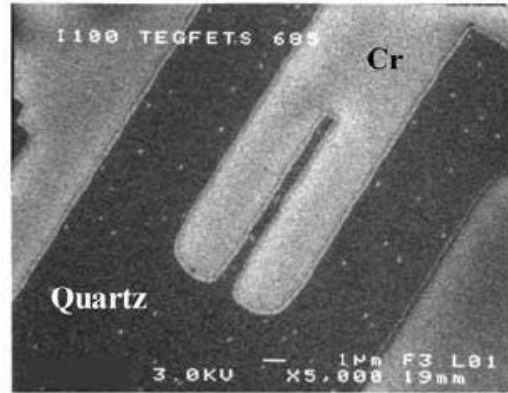
***Mais pour la compréhension des contrastes ce n'est plus aussi simple***

# Emission électronique secondaire : inversion de contraste

(a)



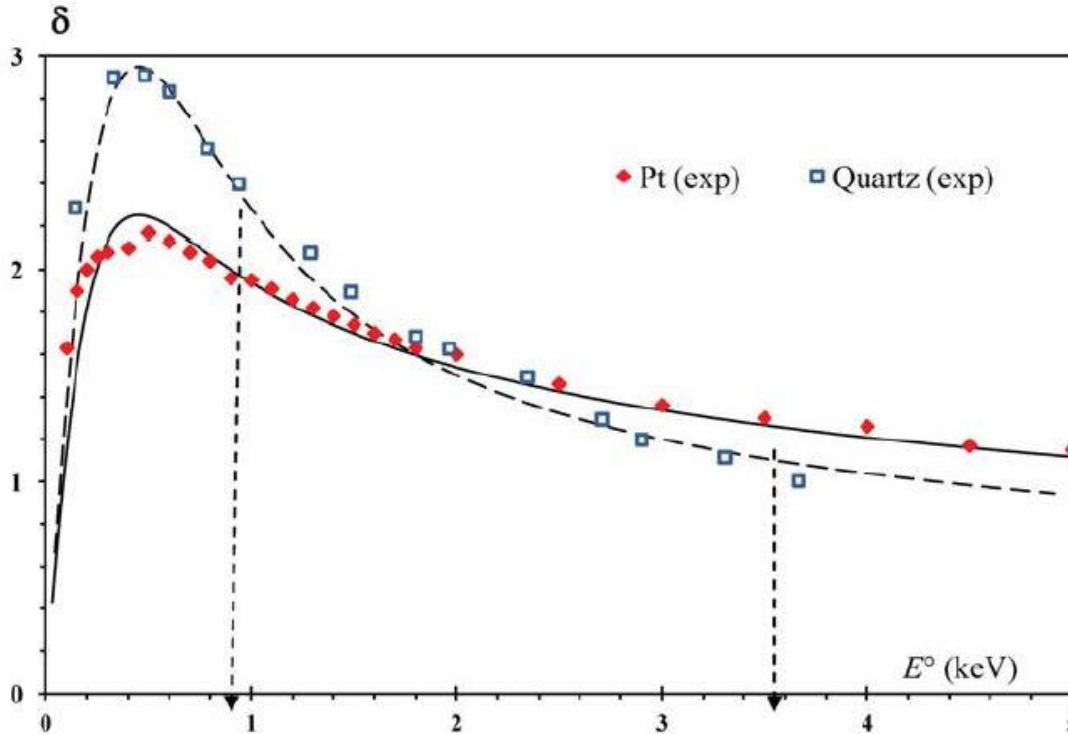
$E^0 = 1.8 \text{ keV}$



$E^0 = 3 \text{ keV}$

Transistor à effet de champ :  
inversion du contraste Cr/quartz  
entre 3 et 1,8 kV  
(doc. Ph. Buffat EPFL)

(b)



Explication :  
Variation du coefficient d'émission  
électronique secondaire avec la  
tension d'accélération pour le quartz  
et un métal (Pt): les deux courbes  
se croisent vers 2 kV

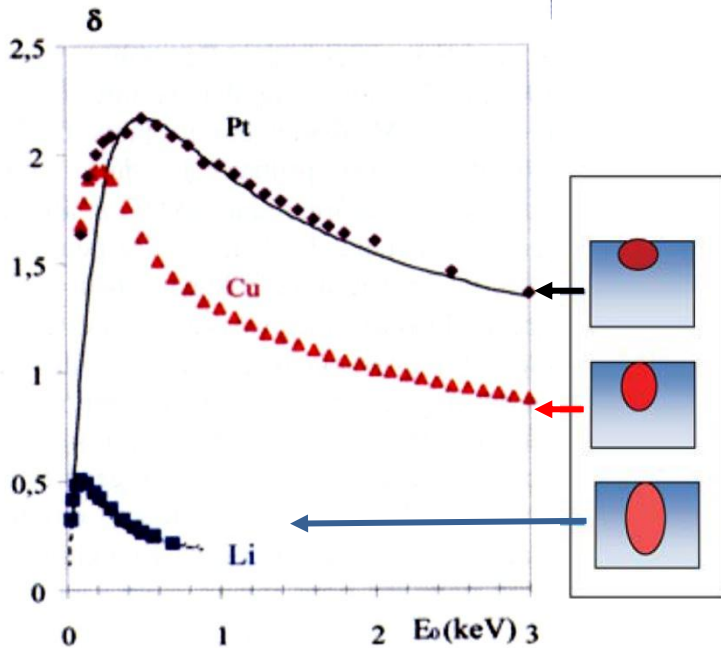
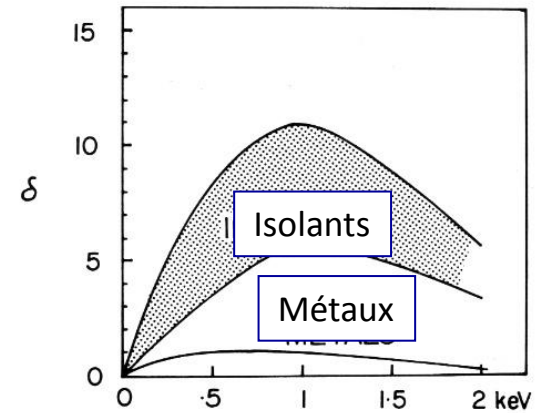
@ J.Cazaux Ultramicroscopy 108 (2008) 1645

Pt : Pintao & Hessel . *Appl. Phys.* **88**, (2000) 478

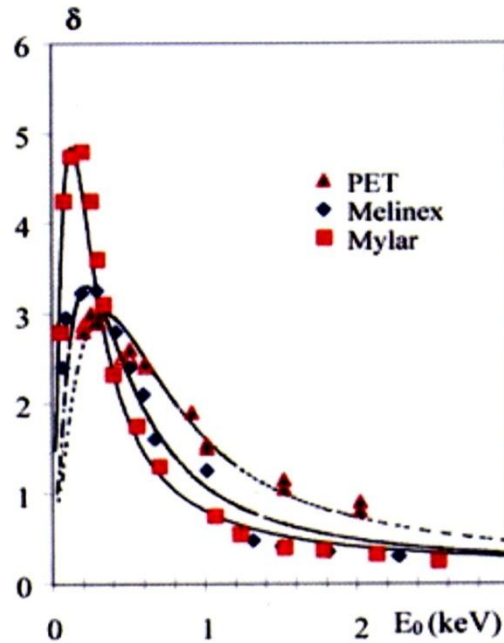
□ S alow, *Zeit. Fuer Techni. Physik* **21**, (1940) 1,

# Courbes d'émission secondaire pour des échantillons conducteurs et isolants

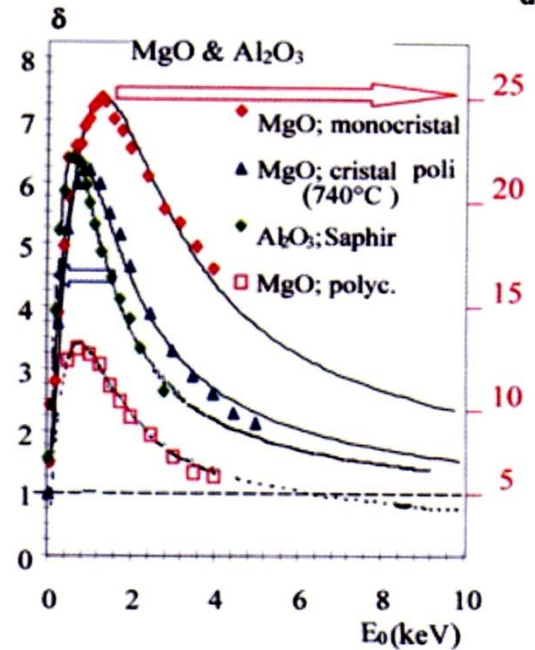
*Dans un matériau isolant, le rendement d'émission électronique secondaire croît fortement lorsque la tension diminue et peut devenir très largement supérieur à 1 lorsque  $E < 1\text{keV}$ , beaucoup plus que pour un matériaux métallique*



rendement d'émission secondaire de métaux

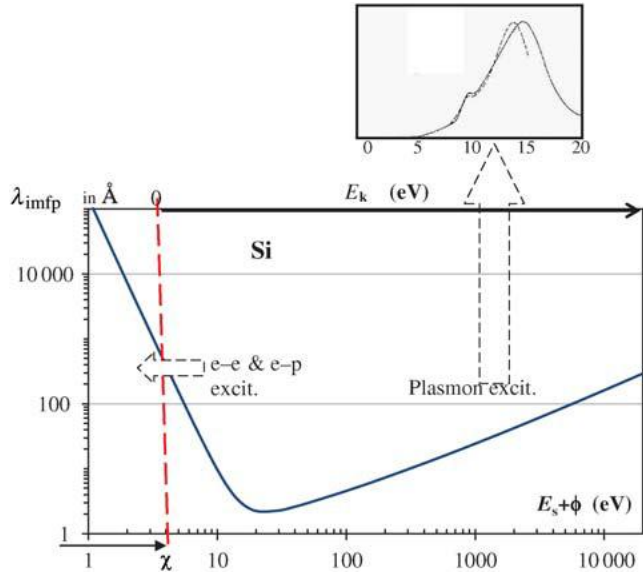


rendement d'émission secondaire de polymères



rendement d'émission secondaire d'oxydes

# Emission électronique secondaire : influence de l'angle d'inclinaison avec la tension

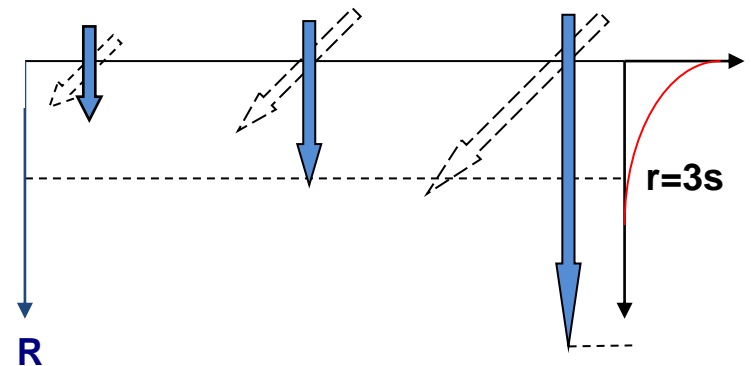
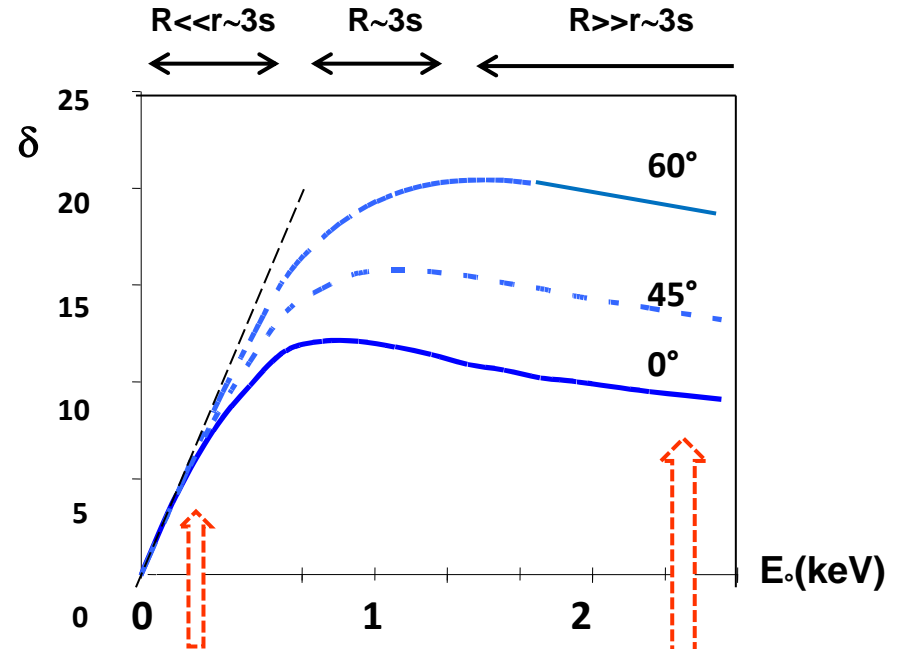


Variation du libre parcours moyen  $s$  de l'électron secondaire en fonction de son énergie

$$\text{atténuation} = \exp(-z/s)$$

La profondeur d'échappée  $r$  est de l'ordre de  $3s$

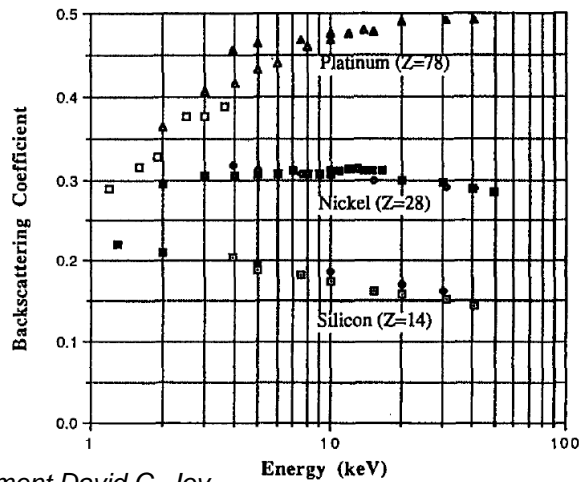
A faible tension, la profondeur de pénétration  $R$  est inférieure à la profondeur d'échappement  $r$ , l'émission secondaire est indépendante de l'angle d'incidence (ou d'inclinaison) ce qui n'est plus le cas lorsque la profondeur de pénétration est supérieure à la profondeur d'échappement...



@Jacques Cazaux

## (c) Modification du coefficient de rétrodiffusion $\eta$ avec l'énergie E des électrons primaires

### Évolution $\eta$ avec Énergie

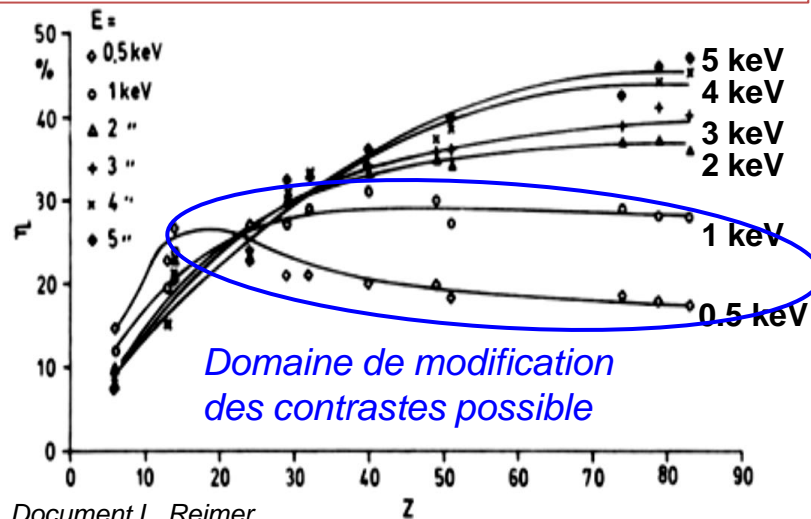


*Il est admis que le coefficient de rétrodiffusion est indépendant de la tension d'accélération et croît avec Z...*

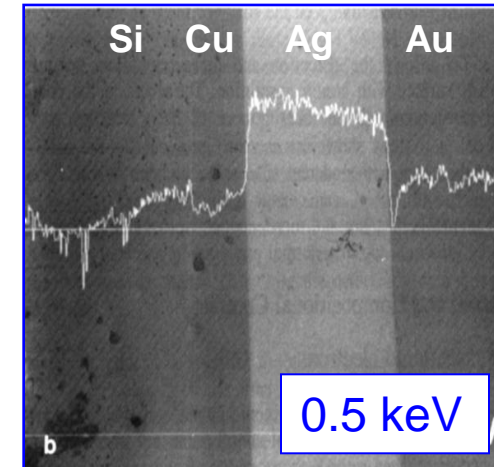
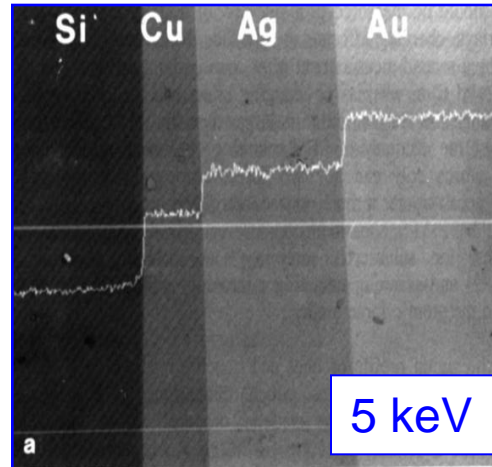
- A haute énergie (>10 keV),  $\eta$  reste à peu près constant
- Entre 1 keV et 5 keV il existe des variations significatives de  $\eta$ .
- Le domaine des énergies inférieures à 1 keV est moins bien connu.

Document David C. Joy

### Évolution $\eta$ avec Z à plusieurs énergies



Document L. Reimer

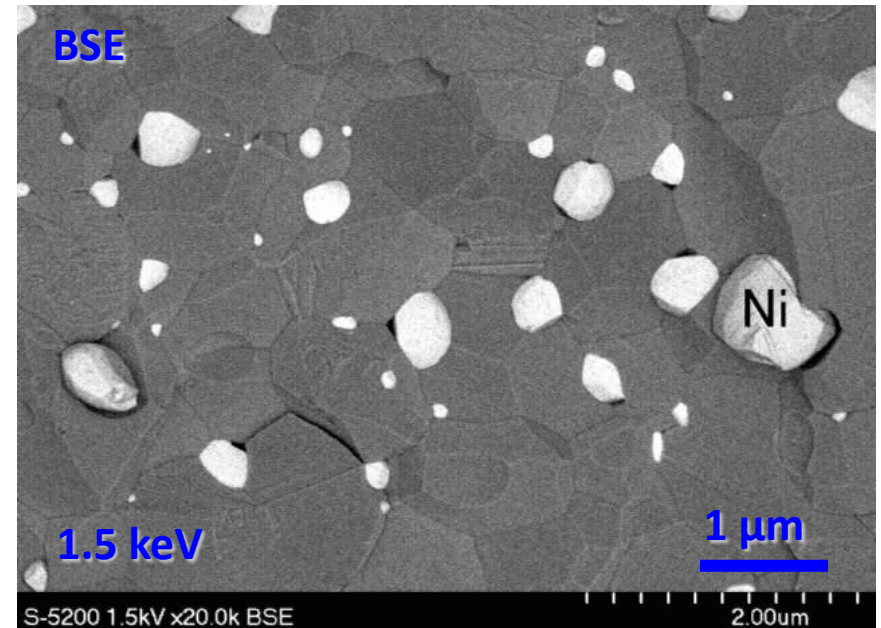
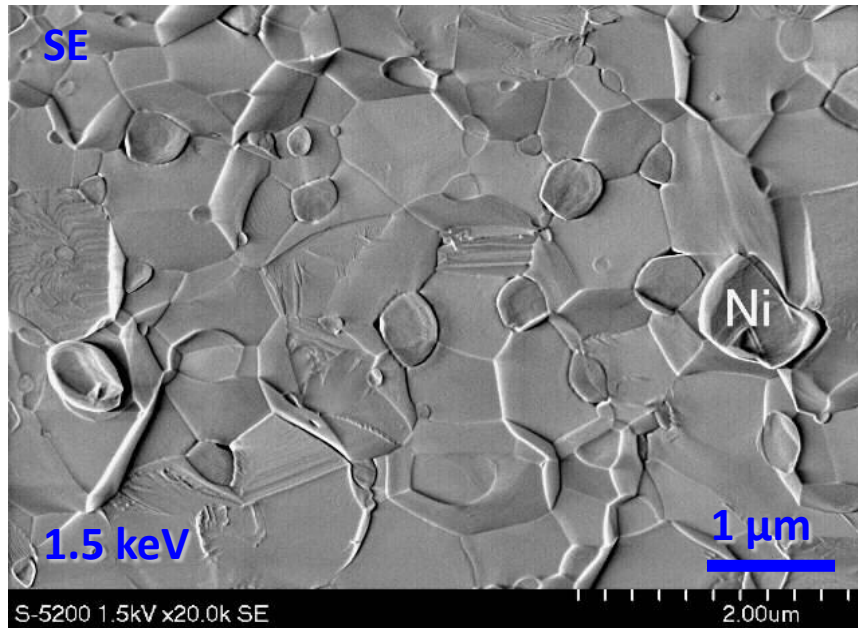


*Exemple de Modification des contrastes  
À basse énergie*

## (d) Résolution en émission rétrodiffusée basse tension

A haute tension (>10kV) la résolution des images en électrons rétrodiffusés est liée à la diffusion électronique (contrairement à celle des électrons secondaires) et donc nettement moins bonne que celle des images en électrons secondaires...

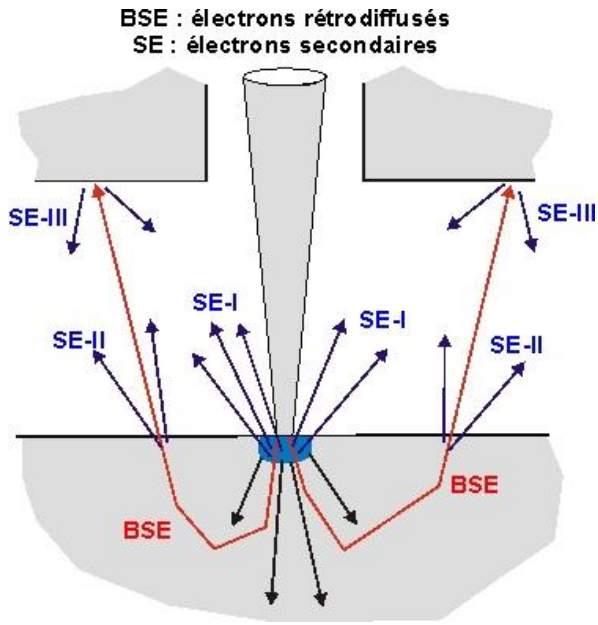
A basse tension, compte tenu de la réduction de la diffusion, la résolution est identique pour ces deux types d'images (mais pas les informations recueillies)



### Échantillon composite Alumine + Nickel

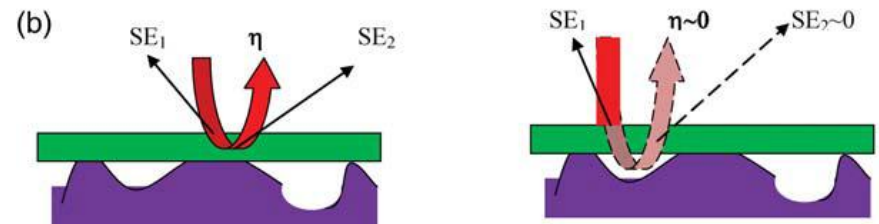
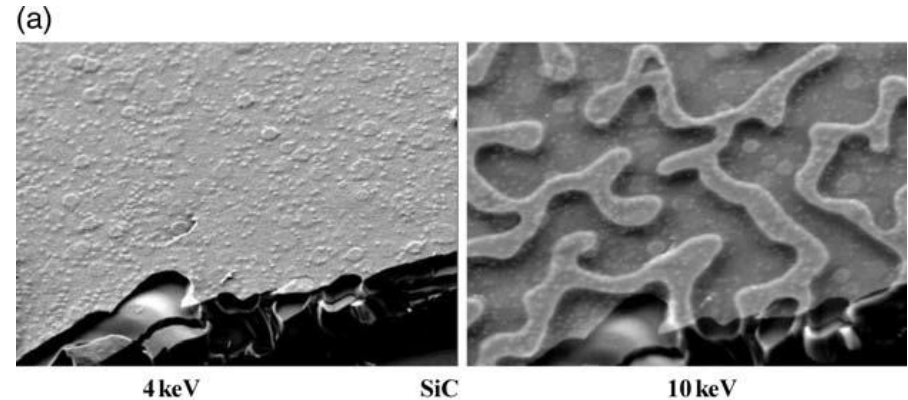
- Images à basse énergie d'un échantillon isolant
- Résolution similaire en SE et BSE

## Autre conséquence sur les émissions secondaires



- On peut distinguer 3 sources d'émissions secondaires :
- les électrons secondaires vrais de 1<sup>ère</sup> catégorie (SE1) créés par le faisceau primaire incident,
  - les électrons secondaires vrais de 2<sup>ème</sup> catégorie (SE2) engendrés par les électrons rétrodiffusés
  - les électrons de 3<sup>ème</sup> catégorie (SE3) issus de l'environnement

A basse tension les rétrodiffusés proviennent d'une zone comparable à celle des SE1, on n'observe que la couche superficielle ; à 10 kV la présence de cavités sous la surface modifie le contraste, les SE2 étant engendrés par une émission rétrodiffusé plus profonde.



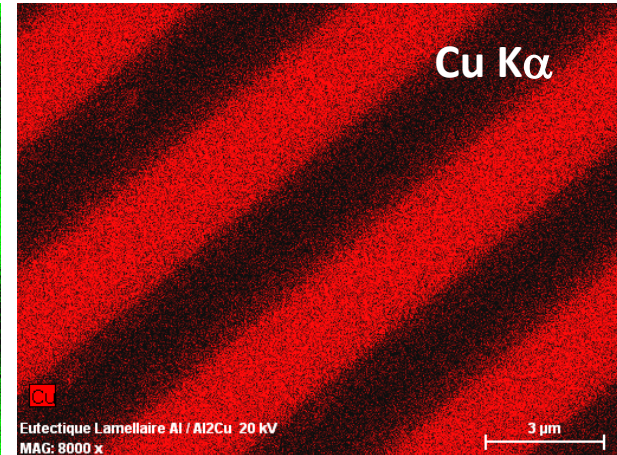
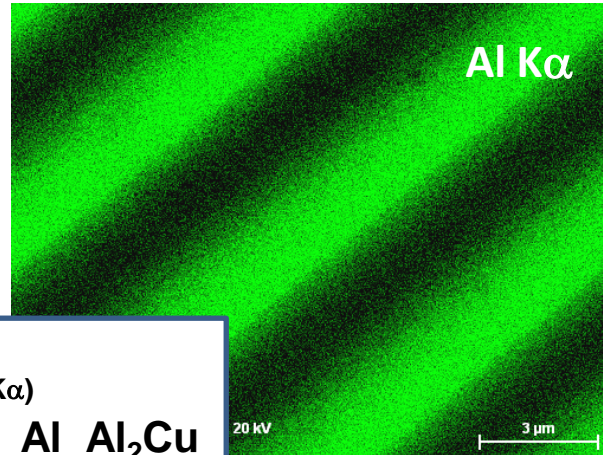
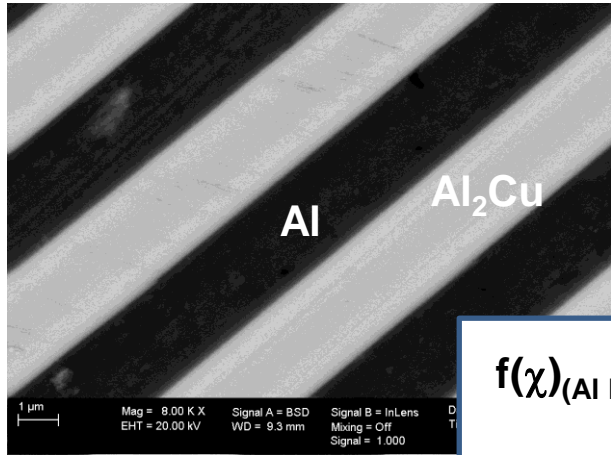
échantillon de SiC

## 2 - En microanalyse par sonde électronique

L'intérêt principal est la diminution du volume d'interaction et donc l'amélioration de la résolution spatiale... et diminution des effets d'absorption

Eutectique lamellaire Al / Al<sub>2</sub>Cu - Cartographies X à 20kV et 5kV

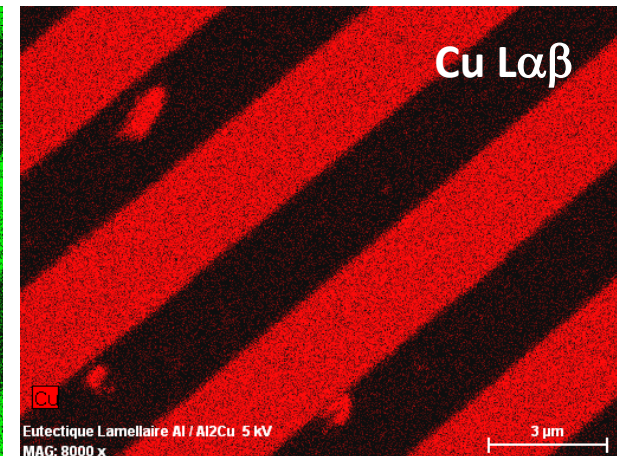
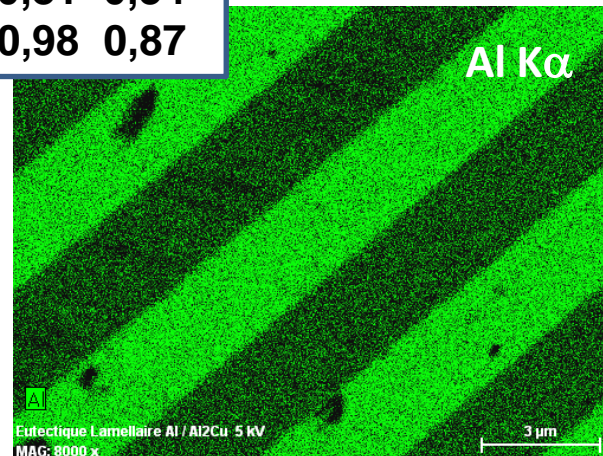
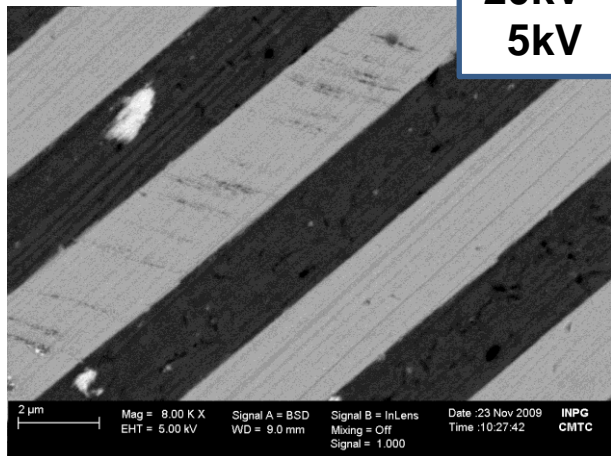
20kV



$$f(\chi)_{(Al\ K\alpha)}$$

	Al	Al <sub>2</sub> Cu
20kV	0,81	0,34
5kV	0,98	0,87

5kV

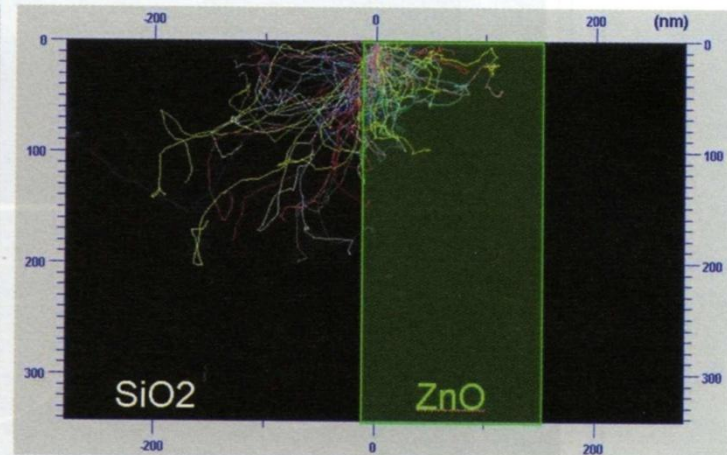
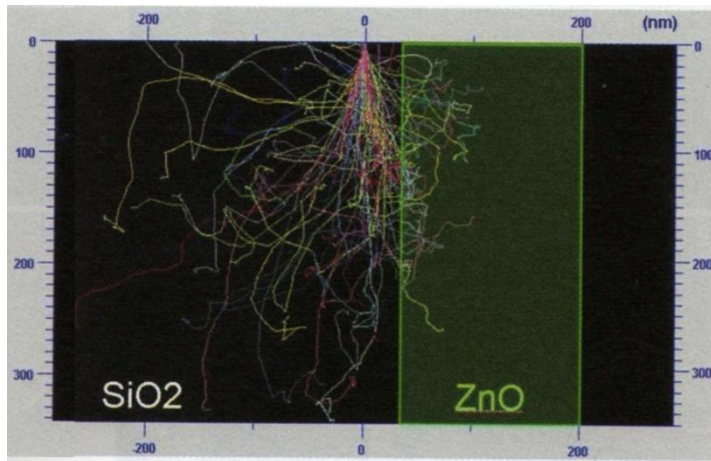
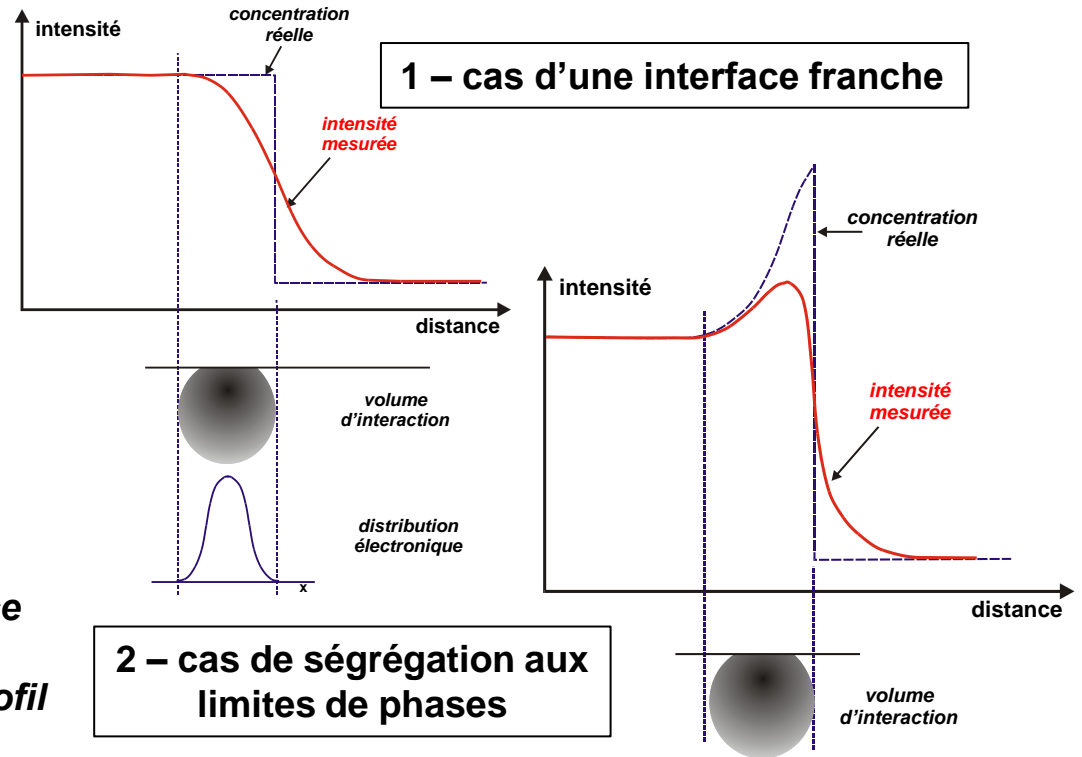


# Résolution spatiale aux interfaces

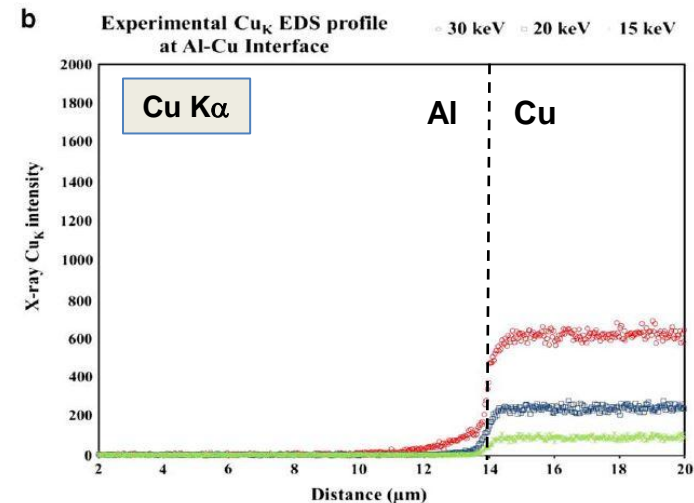
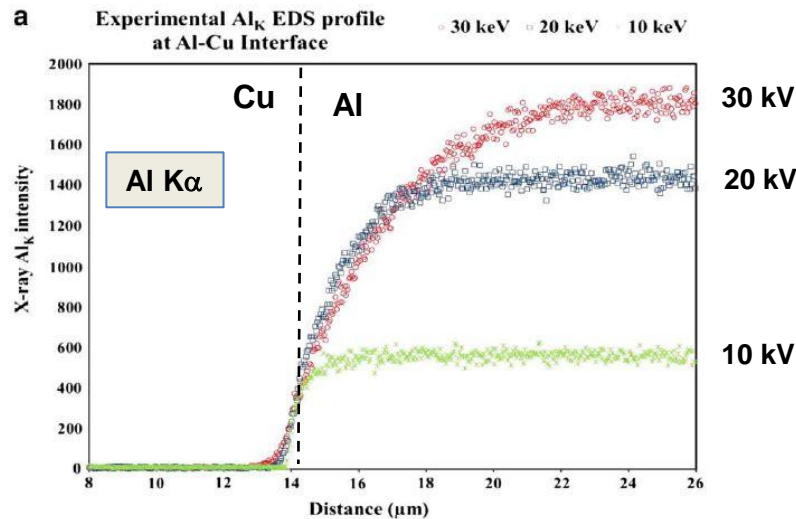
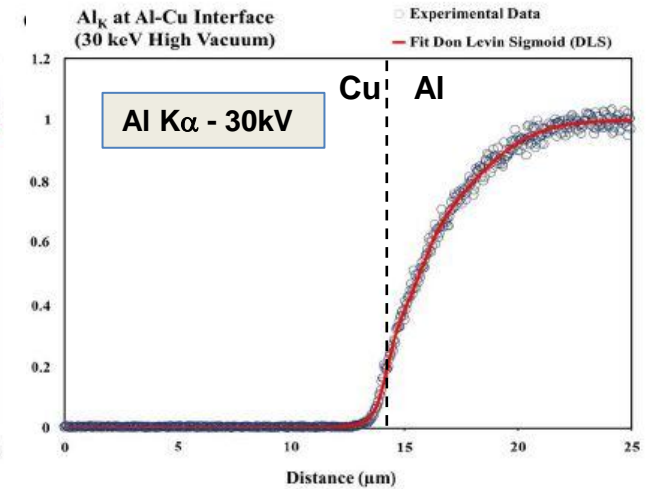
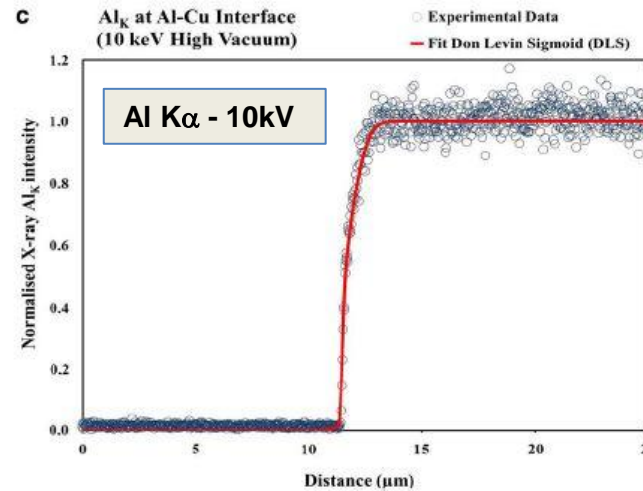
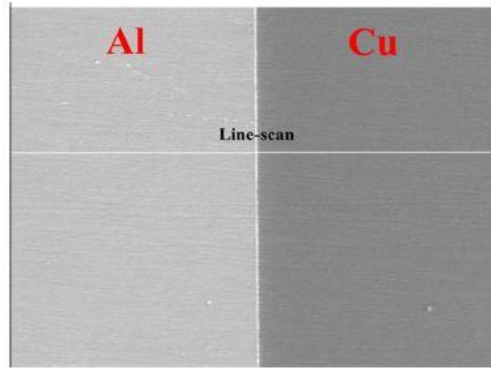
En raison de la diffusion électronique l'analyse aux interfaces est fortement perturbée... La courbe mesurée est un produit de convolution entre la courbe de concentration réelle et la forme du volume d'interactions supposé gaussien :

$$I(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} C(x-u) \exp\left(-\frac{2,76u^2}{d^2}\right) du$$

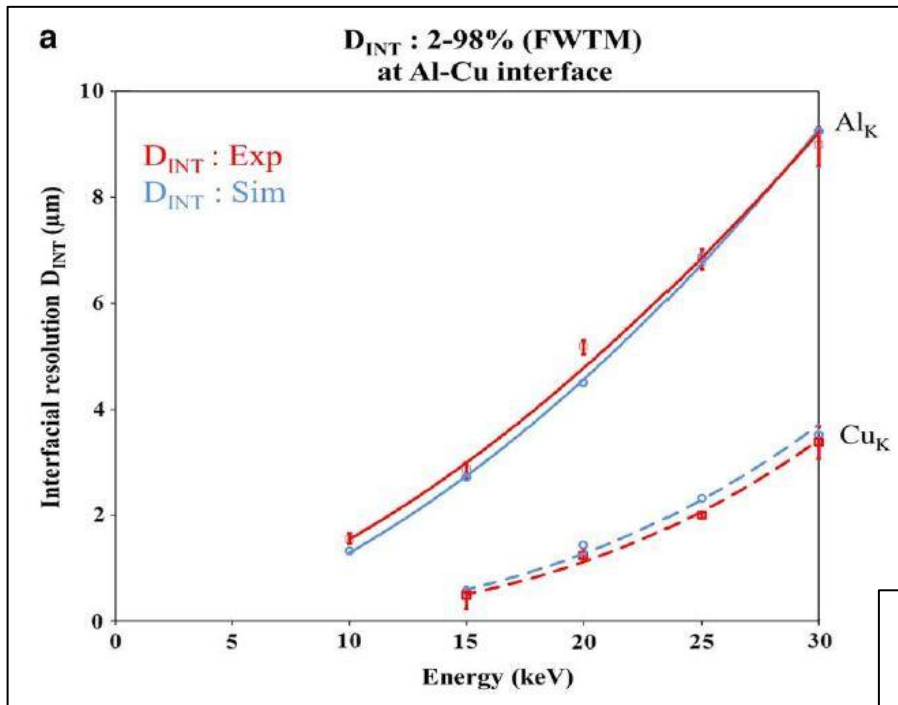
*Mais ce n'est pas aussi simple que cette formule simplifiée le laisserait croire ! Si les zones de part et d'autre de l'interface ont des Z très différents... la diffusion électronique sera très différente... et le profil pas aussi symétrique*



# Exemple : étude de l'interface Al-Cu en fonction de la tension (et de la pression du gaz )(\*)



***Lorsque la tension d'accélération diminue, la résolution aux interfaces s'améliore mais l'intensité X émise diminue...***

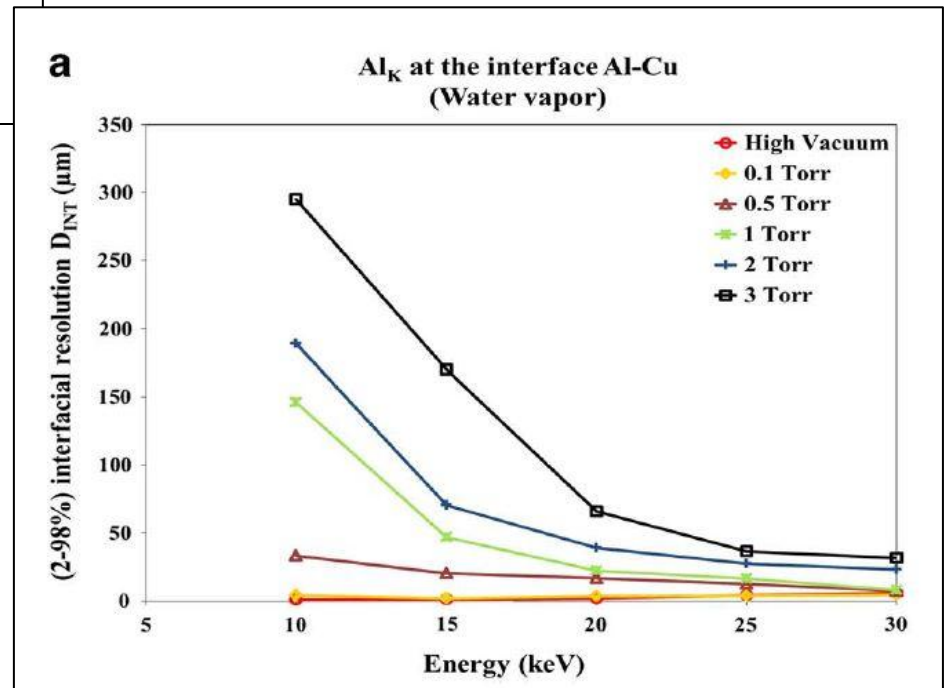


**Variation de l'élargissement avec la tension  
(calculé dans la limite 2% - 98%)**

Par extrapolation on devrait obtenir pour Al  $K\alpha$   
 7,5 kV – 0,83  $\mu\text{m}$   
 5 kV – 0,40  $\mu\text{m}$   
 3 kV – 0,16  $\mu\text{m}$

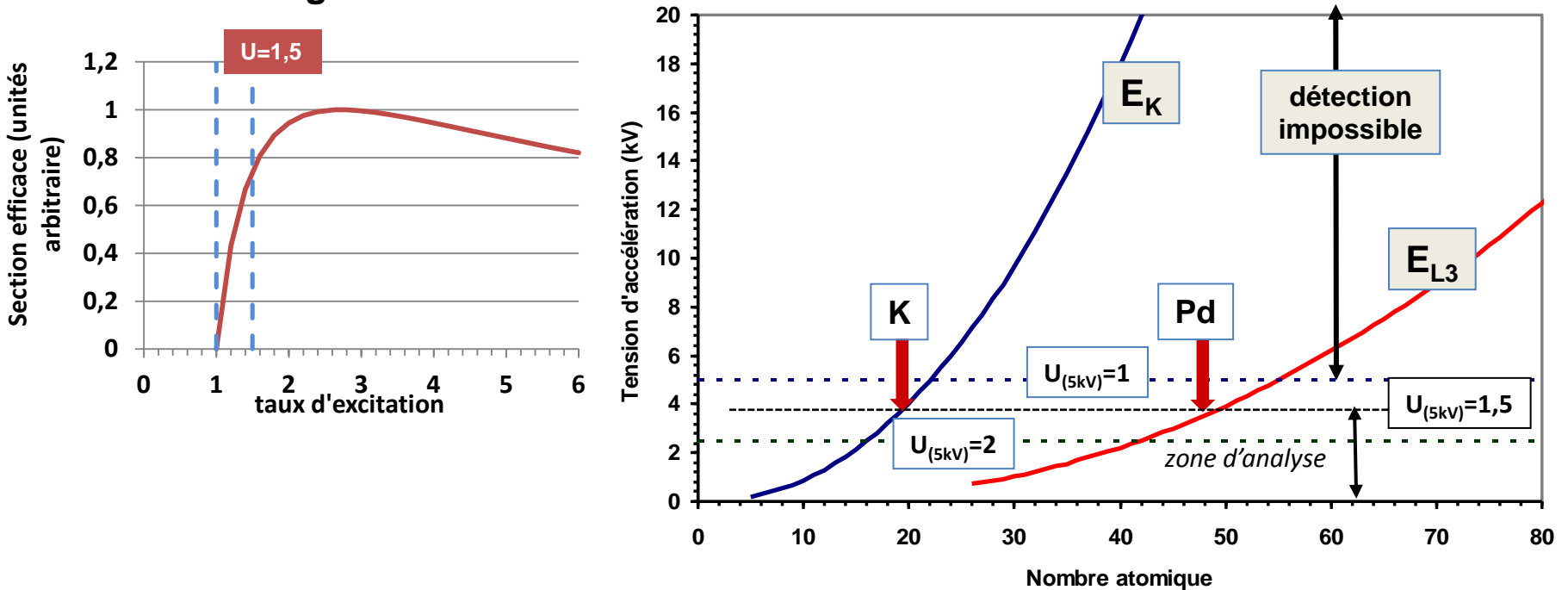
**Microscope à pression contrôlée :  
influence de la pression sur la résolution  
(en vapeur d'eau)**

*Pour des pressions de vapeur élevées,  
l'élargissement est considérable mais  
diminue avec la tension, contrairement  
aux cas des faibles pression et du vide  
poussé...*



## Mais quelles sont les limitations ?

1 - A faible tension (<5 kV), les possibilités d'analyse sont limitées aux rayonnements de faibles énergies



2 – La détection de ces rayonnements pose un certain nombre de problèmes en WDS (utilisation de pseudo-cristaux par exemple) mais surtout en EDS, compte tenu de la résolution énergétique dans ce domaine ( $E_j < 1 \text{ keV}$ ) qui n'est pas excellente (45 à 75 eV)

(⇒ présentation G. Wille)

3 – nombreuses incertitudes pour la quantification

## **En conclusion...**

**Travailler à basse et même à très basse tension n'est plus un problème grâce aux nouveaux microscopes à balayage équipés de canon à effet Schottky (et en microanalyse avec les derniers modèles de microsonde « FEG »)**

**Cela ne signifie pas que ce soit chose aisée !**

**Nous entrons dans une « terra incognita » où de nombreux problèmes surgissent : état de surface, rendement d'émission électronique, contrastes etc. qui évoluent différemment de ce que l'on connaissait avant...**

**En microanalyse, détection, quantification....**

**il reste encore pas mal de travail à faire !**