



Université
de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut Supérieur de l'Aéronautique et de l'Espace (ISAE)

Présentée et soutenue par :

Julien ROUPIE

le lundi 18 février 2013

Titre :

Contribution à l'étude de l'émission électronique sous impact d'électrons de basse énergie (≤ 1 keV) : application à l'aluminium

École doctorale et discipline ou spécialité :

ED GEET : Micro et nanosystèmes

Unité de recherche :

Équipe d'accueil ISAE-ONERA OLIMPES

Directeur(s) de Thèse :

M. Omar JBARA (directeur de thèse)

M. Thomas TONDU (co-directeur de thèse)

Jury :

M. Mohamed BELHAJ - Examineur

M. Raynald GAUVIN - Rapporteur

M. Omar JBARA - Directeur de thèse

M. Philippe JONNARD - Rapporteur

Mme Leanne PITCHFORD - Examineur

M. Raphaël RENOUD - Examineur

Remerciements

N'étant pas d'une grande éloquence, je vais me contenter de rester bref dans les remerciements et m'excuse pour toute personne qui se sentirait oublié.

Je tiens tout d'abord à remercier le CNES et l'ONERA de m'avoir permis de travailler sur ce sujet au combien intéressant. Je remercie Jérôme Puech, mon correspondant CNES, pour sa gentillesse et son écoute attentive lors des différentes réunions alors que l'aspect théorique des explications pouvait être un peu rude pour lui. Je remercie bien évidemment Thomas Tondu, mon co-directeur de thèse, qui a été d'un support indéfectible et dont la rigueur scientifique a été exemplaire et particulièrement inspirante. Je remercie aussi Omar Jbara mon directeur de thèse qui bien qu'éloigné a été d'une grande aide et dont la connaissance quasiment encyclopédique de l'émission électronique sous impact d'électrons a été salvatrice lors de moments où l'on pouvait se croire dans l'impasse. Je remercie Mohamed Belhaj, l'autre spécialiste de l'émission électronique, qui prenait toujours plaisir à discuter avec moi et qui m'a éclairé sur plusieurs aspects expérimentaux, moi qui étais essentiellement concentré sur des aspects théoriques.

Une thèse ce n'est pas que trois ans de travaux scientifiques, c'est aussi trois ans de vie au sein d'un laboratoire. Je tiens donc absolument à remercier l'ensemble des membres du DESP pour leur accueil chaleureux et la très bonne ambiance qui y a régné. Je remercie tout spécialement Virginie Inguibert, qui a été d'un grand soutien que ça soit dans son rôle de chef d'unité ou de collègue de bureau. Je remercie aussi mes autres collègues de bureau successifs : Lise Lorenzato et Pierre Arnolda puis Jean-Charles Matéo-Velez, qui ont eu à me supporter. Je remercie Romain, Laurent, Solène, Rachelle, Adrien et bien d'autres avec qui j'ai partagé les pauses café de l'après-midi. Je remercie particulièrement Romain qui prenait toujours le temps de m'expliquer ce qu'il faisait, moi qui venait le distraire devant ses tableaux, ses fils et son robot. Pour tous les autres que je n'ai pas nommés, merci pour avoir rendu ces trois ans inoubliables.

Table des Matières

INTRODUCTION GENERALE	11
BIBLIOGRAPHIE DE L'INTRODUCTION GENERALE.....	14
CHAPITRE I. PHYSIQUE DE L'EMISSION ELECTRONIQUE.....	19
I.1. INTRODUCTION	19
I.2. LES INTERACTIONS	20
I.2.1. <i>Grandeurs associées à une interaction</i>	21
I.2.1.1. Section efficace d'interactions	21
I.2.1.2. Libre parcours moyen	23
I.2.2. <i>Interaction élastique</i>	24
I.2.2.1. Traitement analytique de Rutherford.....	25
I.2.2.1.1. Modèle classique	25
I.2.2.1.2. Modèle écranté.....	26
I.2.2.2. Traitement numérique : méthode de l'analyse des ondes partielles	27
I.2.2.2.1. Cas non relativiste	27
I.2.2.2.2. Cas relativiste : modèle de Mott	29
I.2.3. <i>Interactions inélastiques</i>	30
I.2.3.1. Interactions individuelles	31
I.2.3.1.1. Interaction électron-électron fortement liés.....	32
I.2.3.1.1.1. Mécanisme d'excitation : section efficace d'ionisation.....	32
I.2.3.1.1.2. Désexcitation de l'atome	34
I.2.3.1.2. Interaction électron-électron faiblement liés	36
I.2.3.1.2.1. Structure de bande.....	37
I.2.3.1.2.2. Cas des électrons libres	38
I.2.3.1.2.3. Formalisme dans le cas réel	43
I.2.3.2. Interaction électron-plasmon	45
I.2.3.2.1. Interaction électron-plasmon de volume.....	45
I.2.3.2.1.1. Représentation du processus	45
I.2.3.2.1.2. Moment transféré et libre parcours différentiel	46
I.2.3.2.1.3. Formalisme diélectrique	48
I.2.3.2.2. Interaction électron-plasmon à la surface	49
I.2.3.2.2.1. Excitations collectives de surface (interface).....	50
I.2.3.2.2.2. Excitation du plasmon de surface dans le volume et effet Begrenzung : modélisation de la région de surface effective	52
I.2.3.2.3. Interaction électron-phonon	55
I.2.3.2.3.1. Vibrations et courbes de dispersion :	55
I.2.3.2.3.2. Processus d'interaction	57
I.2.3.2.3.3. Formalismes : probabilité d'interaction	57
I.2.4. <i>Franchissement de la surface</i>	59
I.2.4.1. Énergie de la barrière de potentiel à la surface.	59
I.2.4.2. Loi de réfraction/réflexion	60
I.2.4.3. Probabilité de transmission	61
I.3. ASPECTS PHENOMENOLOGIQUES.....	64
I.3.1. <i>Rendement d'émission</i>	64
I.3.1.1. Variation du rendement d'émission en fonction de l'énergie d'incidence	65
I.3.1.2. Variation angulaire du rendement d'émission	66
I.3.2. <i>Distribution énergétique</i>	68
I.3.3. <i>Distribution angulaire</i>	71
I.3.3.1. Distribution angulaire des électrons secondaires	71
I.3.3.2. Distribution angulaire des électrons rétrodiffusés	72
BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE.....	74
CHAPITRE II. SIMULATION MONTE-CARLO DE L'EMISSION ELECTRONIQUE DANS L'ALUMINIUM.....	83
II.1. INTRODUCTION	83
II.2. SIMULATION DE TRAJECTOIRES ELECTRONIQUES DANS UN MATERIAU PAR LA METHODE MONTE-CARLO .	84
II.2.1. <i>Méthode Monte-Carlo et méthodes d'échantillonnage</i>	85
II.2.1.1. Principe général de la méthode Monte-Carlo	85

Table des Matières

II.2.1.2. Méthodes d'échantillonnage.....	86
II.2.1.2.1. Méthode directe.....	86
II.2.1.2.2. Méthode du rejet.....	86
II.2.1.2.3. Méthode stratifiée.....	86
<i>II.2.2. Simulation Monte-Carlo d'une trajectoire électronique.....</i>	<i>88</i>
II.2.2.1. Principe de la diffusion simple.....	88
II.2.2.1.1. Diffusion simple par pertes continues.....	88
II.2.2.1.2. Diffusion simple par cascade électronique.....	90
II.2.2.2. Principe de la diffusion multiple.....	92
<i>II.2.3. Notre approche de la simulation Monte-Carlo des trajectoires électroniques.....</i>	<i>93</i>
II.2.3.1. Mode de sélection de l'interaction.....	94
II.2.3.2. Conventions.....	95
II.2.3.2.1. Origine des énergies des électrons en mouvement.....	95
II.2.3.2.2. Géométrie de la cible et les repères utilisés.....	96
II.2.3.3. Algorithme de la simulation d'une trajectoire.....	97
II.3. APPLICATION DE LA DIFFUSION SIMPLE PAR CASCADE ELECTRONIQUE ET FORMALISMES.....	100
<i>II.3.1. Interaction élastique.....</i>	<i>100</i>
II.3.1.1. Choix du modèle de Mott.....	100
II.3.1.2. Choix de la base de données.....	101
II.3.1.2.1. Détermination du libre parcours.....	102
II.3.1.2.2. Détermination de la déviation.....	102
II.3.1.3. Section efficace différentielle.....	103
II.3.1.4. Section efficace totale et libre parcours moyen.....	104
II.3.1.5. Critique des données à basse énergie.....	105
<i>II.3.2. Interactions inélastiques.....</i>	<i>106</i>
II.3.2.1. Interactions individuelles.....	107
II.3.2.1.1. Electrons fortement liés : électrons de cœur et effet Auger.....	107
II.3.2.1.1.1. Ionisation : choix du modèle.....	108
II.3.2.1.1.2. Section efficace d'ionisation.....	108
II.3.2.1.1.3. Implémentation du modèle de Gryziński.....	112
II.3.2.1.1.4. Désexcitation de l'atome ionisé : effet Auger.....	114
II.3.2.1.2. Electrons faiblement liés :.....	117
II.3.2.1.2.1. Modèles et formalismes.....	118
II.3.2.1.2.2. Modèle de Ritchie et Ashley.....	119
II.3.2.1.2.3. Modèle de Chung et Everhart.....	123
II.3.2.1.2.4. Implémentation des deux modèles.....	126
II.3.2.2. Interaction électron-plasmon.....	131
II.3.2.2.1. Étendue de la surface effective.....	131
II.3.2.2.2. Interaction électron-plasmon de volume.....	132
II.3.2.2.2.1. Modèles et formalismes.....	132
II.3.2.2.2.2. Energie seuil d'interaction.....	133
II.3.2.2.2.3. Formalisme du modèle de Chung et Everhart.....	134
II.3.2.2.2.4. Modification du modèle de Chung et Everhart : prise en compte de l'effet <i>Begrenzung</i>	141
II.3.2.2.2.5. Implémentation.....	142
II.3.2.2.3. Interaction électron-plasmon de surface.....	144
II.3.2.2.3.1. Notre approche.....	145
II.3.2.2.3.2. Implémentation de notre approche.....	148
II.3.2.3. Interaction électron-phonon.....	149
<i>II.3.3. Franchissement de la surface.....</i>	<i>150</i>
II.3.3.1. Choix de la marche de potentiel exponentiel.....	150
II.3.3.2. Implémentation de la marche de potentiel exponentielle.....	152
II.3.3.2.1. Libre parcours.....	152
II.3.3.2.2. Conditions de passage.....	153
II.3.3.2.3. Trajectoire et énergie de l'électron incident.....	153
II.3.3.2.3.1. Franchissement de la surface.....	153
II.3.3.2.3.2. Réflexion à la surface.....	154
II.4. VALIDATION PRELIMINAIRE DE L'APPROCHE.....	155
<i>II.4.1. Libre parcours moyen inélastique.....</i>	<i>156</i>
<i>II.4.2. Pouvoir d'arrêt.....</i>	<i>157</i>
BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE.....	159
CHAPITRE III. SIMULATIONS ET EXPERIENCES A BASSE ENERGIE : COMPARAISON DES RESULTATS.....	167
III.1. INTRODUCTION.....	167
III.2. RESULTATS.....	168

<i>III.2.1. Simulation</i>	168
III.2.1.1. Distribution énergétique.....	168
III.2.1.1.1. Basse énergie (de 100 eV à 1 keV).....	168
III.2.1.1.1.1. Distribution des électrons secondaires vrais.....	169
III.2.1.1.1.2. Spectre des rétrodiffusés inélastiques et le paramètre <i>A</i>	171
III.2.1.1.2. Très basse énergie ($E_0 < 30$ eV).....	173
III.2.1.2. Distribution angulaire.....	176
III.2.1.2.1. Cas des électrons émis.....	176
III.2.1.2.2. Cas des électrons secondaires.....	177
III.2.1.2.3. Cas des électrons rétrodiffusés.....	179
III.2.1.2.3.1. Cas des électrons rétrodiffusés inélastiques.....	180
III.2.1.2.3.2. Cas des électrons rétrodiffusés élastiques.....	181
III.2.1.3. Rendement des électrons émis.....	184
III.2.1.3.1. Basse énergie (de 100 eV à 1 keV).....	185
III.2.1.3.1.1. Rendement à incidence normale.....	185
III.2.1.3.1.2. Rendement à incidence oblique.....	190
III.2.1.3.2. Très basse énergie ($E_0 < 30$ eV).....	192
III.2.1.3.2.1. Rendement à incidence normale.....	192
III.2.1.3.2.2. Rendement à incidence oblique.....	200
<i>III.2.2. Mesures à très basse énergie</i>	202
III.2.2.1. Dispositif et procédure.....	202
III.2.2.1.1. Description du dispositif.....	202
III.2.2.1.2. Méthode de mesure du rendement d'émission.....	204
III.2.2.1.3. Spectromètre.....	204
III.2.2.2. Mesures.....	206
III.2.2.2.1. Rendement de quelques métaux.....	206
III.2.2.2.2. Distribution énergétique : mesure sur Au.....	208
III.3. COMPARAISON ET DISCUSSION	209
<i>III.3.1. Distribution énergétique</i>	209
<i>III.3.2. Rendement</i>	210
III.3.2.1.1. Description.....	211
III.3.2.1.2. Discussion.....	212
III.3.2.1.2.1. Décalage entre mesure et simulation de la première oscillation.....	212
III.3.2.1.2.2. Décalage entre mesure et simulation de la seconde oscillation.....	212
III.3.2.1.2.3. Remonté du rendement en-dessous d'1 eV.....	215
BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE.....	216
CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES	223
BIBLIOGRAPHIE DE LA CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES.....	229
ANNEXES	233
ANNEXE A. : DETERMINATION DU LIBRE PARCOURS PAR ECHANTILLONNAGE DIRECT.....	233
ANNEXE B. : INTERPOLATION LINEAIRE.....	235
ANNEXE C. : PUBLICATION.....	237
THE STUDY OF ELECTRON EMISSION FROM ALUMINIUM IN THE VERY LOW PRIMARY ENERGY RANGE USING MONTE CARLO SIMULATIONS	237

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Introduction générale

Le phénomène d'émission électronique (EE), induit par bombardement électronique, de solides n'a cessé depuis sa découverte au début du XX^{ème} siècle [AUS-02] de susciter un intérêt considérable comme en témoigne la littérature particulièrement abondante qui lui a été consacrée. Le développement de la spectroscopie Auger, de la diffraction des électrons lents pour l'étude des surfaces et aussi de la microscopie électronique, ont contribué directement ou indirectement à l'essor et à l'orientation des études entreprises depuis sa découverte. L'étude du phénomène EE se poursuit aujourd'hui en raison de son rôle important dans de nombreux domaines de la technologie. Ce phénomène est souvent source d'ennuis (perturbation d'un faisceau de particules, détérioration du guide d'onde, ...) qui limite le fonctionnement des dispositifs [RUG-98, BRU-99] comme il peut aussi être à la base de nombreuses applications modernes [HAC-59]. En effet, l'EE qui se produit sur les parois des chambres à vide des accélérateurs peut dramatiquement affecter leurs performances [IZA-95]. Dans les réacteurs à fusion, l'EE des surfaces de l'enceinte de confinement du plasma est un paramètre important de la stabilité de ce plasma [FUB-08]. Dans le domaine de certaines technologies spatiales, le phénomène d'EE est particulièrement dimensionnant. Le potentiel global d'équilibre des satellites, et surtout les potentiels différentiels entre différents matériaux constitutifs des satellites dans le plasma spatial sont en partie gouvernés par les caractéristiques de l'EE. Le rendement électrique des propulseurs à effet Hall est intimement lié au rendement électronique sous bombardement électronique dans le canal de décharge. Il est nécessaire d'utiliser pour leur fabrication des matériaux qui sont caractérisés par une faible émission électronique [TON-11]. L'EE gouverne l'effet Multipactor qui constitue la limite principale de fonctionnement des composants radiofréquence (RF) intégré dans les satellites comme les guide d'onde RF [VAU-88, CHO-00, MOS-10].

Le phénomène d'EE induit par les électrons a été largement étudié, tant théoriquement qu'expérimentalement, dans le domaine des hautes énergies en liaison notamment avec la microscopie électronique et les spectroscopies d'analyse des surfaces. Conscient de la difficulté à établir une liste exhaustive des articles consacrés à l'EE et ses applications, nous nous contentons de citer deux ouvrages [BRU-54, HAC-59] et deux articles de revue [CAI-90] particulièrement intéressants. Cependant, on ne trouve qu'une quantité très limitée de travaux dans le domaine des énergies très basses qui trouvent par exemple des applications

dans la recherche spatiale citée précédemment. Sur le plan expérimental le peu de résultats, dans le domaine des très basses énergies (inférieure à quelques centaines voire dizaine d'eV), que l'on peut trouver dans la littérature témoigne également de la difficulté à conduire des expériences dépourvues de tout artefact. En effet, les aspects aussi bien qualitatifs que quantitatifs du rendement d'émission font l'objet d'un débat soutenu et constructif, en particulier son allure et sa valeur quand l'énergie primaire tend vers zéro. Sur le plan théorique, une connaissance approfondie du comportement des électrons lors de leur pénétration dans le matériau est exigée pour pouvoir en donner une meilleure description. Bien que les divers processus élémentaires intervenant dans le phénomène d'EE, pris isolément, soient parfaitement connus, et analysés, il n'existe pas à notre connaissance de théorie analytique permettant la prise en compte de tous ces processus, et conduisant à un modèle unique pour l'EE à très basse énergie, qui puisse rendre compte de toutes les grandeurs observées expérimentalement. L'alternative aux modèles analytiques reste l'utilisation des méthodes de simulation Monte-Carlo (MC) qui constitue un outil puissant pour étudier l'EE. Toutefois, les différents modèles proposés jusqu'à présent, n'ont pas permis de donner une description très satisfaisante des observables associées à ce phénomène et plus particulièrement dans le domaine des basses et très basses énergies.

C'est dans ce contexte de manque de données pour caractériser l'EE dans ce dernier domaine d'énergie et dans le cadre d'applications aux technologies spatiales que le Département d'Environnement SPatial (DESP) de l'ONERA, en collaboration avec le CNES, a entrepris depuis quelques années la mise en œuvre d'une étude globale de l'émission électronique.

Ainsi, au sein de l'unité Couplage Satellite-Environnement (CSE), l'instrumentation DEESSE (Dispositif d'Étude de l'Émission Secondaire Sous Électron) a été spécifiquement développée pour déterminer les caractéristiques de l'émission électronique à basse voire très basse énergie (jusqu'à quelques eV) [BEL-09]. En parallèle avec cette approche expérimentale, une approche théorique au sens de simulations MC a été mise en œuvre dans le cadre de ce travail de thèse. L'objectif principal de la thèse est de contribuer à une meilleure compréhension du phénomène d'EE des métaux sous bombardement électronique à très basse énergie. Un programme de simulation baptisé OSMOSEE (Onera Simulation Model Of Secondary Electron Emission), fondé sur des modèles d'interactions adaptés au domaine d'énergie étudié, a alors été mis au point. Le manuscrit a été structuré en trois chapitres d'égale importance :

Le premier chapitre est consacré à l'état de l'art et à l'aspect fondamental de la physique du phénomène d'émission électronique des solides sous irradiation électronique. Nous aborderons dans un premier temps, son aspect microscopique en décrivant les différents mécanismes physiques responsables de la déviation et du ralentissement des électrons au sein du matériau. La description s'appuiera sur les formalismes associés aux différents mécanismes qui sont à la base de cette émission. Dans un second temps, l'aspect macroscopique de l'émission électronique sera abordé en décrivant les grandeurs phénoménologiques notamment le rendement d'émission, la distribution énergétique et la distribution angulaire des électrons émis.

Le second chapitre porte sur la simulation Monte-Carlo de l'émission électronique dans le cas de l'aluminium. Après avoir introduit la méthode de simulation Monte-Carlo et les différentes approches utilisées généralement pour la mettre en œuvre, une nouvelle approche de simulation adaptée à notre étude a été proposée et son algorithme de fonctionnement a été donné. Les modèles adoptés pour chaque type d'interaction ainsi que la stratégie de leur implémentation ont été détaillés et validés. Cette validation se fait à travers l'étude de deux caractéristiques du matériau : le libre parcours moyen inélastique et le pouvoir d'arrêt.

Dans le troisième chapitre, nous présenterons les résultats de nos simulations qui seront confrontés, quand cela est possible, à des données de la littérature (mesure ou simulation) ou aux données expérimentales de notre laboratoire. Les résultats concernent les distributions énergétiques, distributions angulaires et rendement d'émission pour des énergies d'incidence allant de quelques eV à plusieurs centaines d'eV. Avant la comparaison simulation-expérience, le dispositif DEESSE et les procédures utilisées seront présentés. Cette comparaison porte sur les spectres acquis à l'aide de ce dispositif.

Pour finir le manuscrit, nous conclurons cette étude, en donnant les points les plus importants des résultats obtenus, et nous indiquerons les perspectives pour l'approfondir.

Bibliographie de l'introduction générale

- [AUS-02] L. Austin, H. Starke; , « *Über die Reflexion der Kathodenstrahlen und eine damit verbundene neue Erscheinung sekundärer Emission* », *Ann. Phys.*, **9**, (1902), pp.271.
- [BEL-09] M. Belhaj, T. Tondou, V. Inguibert, J. P. Chardon, « *A Kelvin probe based method for measuring the electron emission yield of insulators and insulated conductors subjected to electron irradiation* », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **42**, (2009), pp.105309.
M. Belhaj, T. Tondou, V. Inguibert, « *Experimental investigation of the effect of the internal Space charge accumulation on the electron emission yield of insulators submitted to e-irradiation* », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **42**, (2009), pp.145303.
- [BRU-54] H. Bruining, « *Physics and applications of Secondary Electron Emission* », Mc Graw Hill, New York (1954).
- [BRU-99] O. Bruning, F. Caspers, I. R. Collins, O. Grobner, B. Henrist, N. Hilleret, J.-M. Laurent, M. Morvillo, M. Pivi, F. Ruggiero, X. Zhang, « *Electron cloud and beam scrubbing in the LHC* », *Proceedings of the IEEE Particle Accelerator Conference*, **4**, (1999), pp.2629.
- [CAI-90] M. Cailler, J.P Ganachaud, « *Secondary electron emission from solids. I. secondary electron spectroscopy* », *Scanning Microscopy Suppl.*, **4**, (1990), pp.57.
M. Cailler, J. P. Ganachaud, « *Secondary electron emission from solids II. Theoretical description* », *Scanning Microscopy Suppl.*, **4**, (1990), pp. 81.
- [CHO-00] E. Chojnacki, « *Simulations of a multipactor-inhibited waveguide geometry* », *Phys. Rev. ST Accel. Beams*, **3**, (2000), pp. 032001.
- [FUB-08] G. Fubiani, H. P. L. de Esch, A. Simonin, R. S. Hemsworth, « *Modeling of secondary emission processes in the negative ion based electrostatic accelerator of the International Thermonuclear Experimental Reactor* », *Phys. Rev. ST Accel. Beams*, **11**, (2008), pp.014202.
- [HAC-59] O. Hachenberg, W. Brauer, « *Secondary electron emission from solids* », *Advances in Electronics and Electron Physics* (Edited by L.Marton), Academic Press, NY, XI, **413**, (1959), pp.413.
- [IZA-95] M. Izawa, Y. Sato, T. Toyomasu, « *The Vertical Instability in a Positron Bunched Beam* », *Phys. Rev. Lett.*, **74**, (1995), pp.5044.
- [MOS-10] M. Mostajeran, M. Laméhi Racht, « *Importance of number of gap crossings on secondary emission in the simulation of two-sided multipactor* », *Journal of Instrumentation*, **5**, (2010), pp.8003.
- [RUG-98] F. Ruggiero, « *A review of new manifestations of collective effects* », *Sixth European Particle Accelerator Conference, EPAC98, Stockholm*, (1998).
- [TON-11] T. Tondou, M. Belhaj, V. Inguibert, « *Electron-emission yield under electron impact of ceramics used as channel materials in hall-effect thrusters* », *J. Appl. Phys.*, **110**, (2011), pp.093301 ;
- [VAU-88] J. R. M. Vaughan, « *Multipactor* », *IEEE Transactions on Electron Devices*, **35**, (1988), pp.1172.

CHAPITRE I - PHYSIQUE DE L'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE

CHAPITRE I. Physique de l'émission électronique

I.1. Introduction

Cette étude porte sur le phénomène d'émission électronique induit dans un matériau soumis à l'impact d'un faisceau d'électrons incidents de basse énergie allant de quelques eV à quelques keV. Il s'agit en particulier de l'émission électronique secondaire et de l'émission des électrons rétrodiffusés issus d'un matériau métallique. Avant d'aborder de façon détaillée les divers processus physiques qui interviennent lors de l'interaction électron-matière et les mécanismes physiques à la base des différentes émissions électroniques, nous commencerons par évoquer succinctement le cheminement de l'électron dans le matériau et ses conséquences. En effet, les électrons incidents nommés également, électrons primaires, pénètrent dans le matériau et interagissent avec ses constituants. Les interactions subies sont responsables du ralentissement et de la déviation de ces électrons. Au cours de ces interactions, l'électron peut céder une part de son énergie cinétique à un électron du matériau qu'il met en mouvement. Cet électron excité va à son tour se déplacer dans le matériau et y interagir pour générer en particulier d'autres électrons. On assiste alors à un phénomène de cascade électronique, illustré sur la Figure I-1, et qui prend fin par l'implantation dans le matériau des électrons en mouvement ou par leur émission hors du matériau.

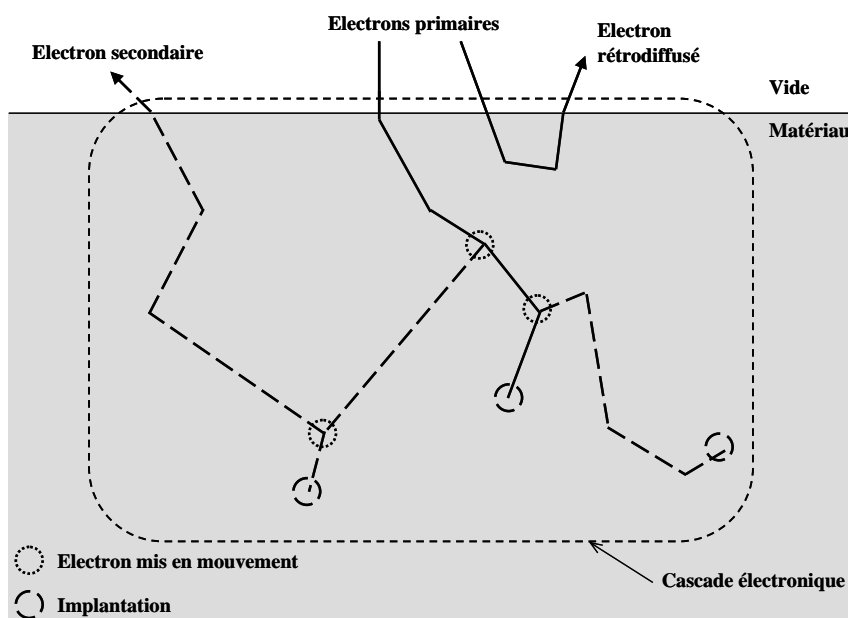


Figure I-1 : Schéma d'une cascade générée par le déplacement d'un électron primaire dans un matériau

Parmi les électrons émis, on distingue les électrons rétrodiffusés qui sont des électrons primaires qui ressortent du matériau, et les électrons secondaires qui sont des électrons excités du matériau. La caractérisation des électrons émis par leur énergie et leur angle d'émission permet de définir les aspects phénoménologiques de l'émission électronique tels que le rendement d'émission ou les distributions angulaire et énergétique des électrons émis. Avant d'aborder ces deux aspects, il convient de rappeler les processus physiques régissant le comportement des électrons incidents dans la matière. Ces processus sont à la fois de type inélastique et élastique (ou quasi-élastique), provenant d'interactions individuelles ou collectives avec les électrons de conduction de la substance métallique, d'interactions avec les électrons des couches internes (ionisation, transitions Auger), d'interactions avec les phonons et d'interactions avec les cœurs d'ions (choc essentiellement élastiques). Les phénomènes de surfaces sont éventuellement pris en compte lors du franchissement par les électrons de la barrière de potentiel de surface. Tous ces processus prennent une part plus ou moins importante dans la dispersion et la perte d'énergie des électrons incidents.

I.2. Les interactions

Lors du déplacement d'un électron dans le matériau, on distingue deux types d'interactions concomitantes : les interactions élastiques et les interactions inélastiques. Une interaction est dite élastique lorsque l'électron interagissant est dévié sans perte d'énergie appréciable. Ce genre d'interaction élastique se produit quand un électron pénètre dans la zone d'influence du potentiel qui règne autour d'un cœur ionique. Dans le cas d'une interaction inélastique les électrons cèdent une partie de leur énergie au système qui la relaxe sous différentes formes (émission d'électrons secondaires, de photons, excitations de plasmons ou de phonons,...).

Par interactions successives, les électrons se déplacent dans la matière jusqu'à la perte totale de leur énergie cinétique ou leur émission par la surface. En plus de ces interactions avec les constituants du matériau, l'électron va interagir avec l'interface vide/solide à son entrée dans le matériau et lors de son émission si elle a lieu.

Nous allons d'abord décrire succinctement la physique de base des interactions électron-matière, ensuite nous allons présenter les modèles couramment utilisés pour caractériser les interactions mises en jeu dans l'émission électronique. L'étude détaillée des interactions

électron-matière faisant l'objet de nombreux traités, nous renvoyons le lecteur à ces ouvrages de base et particulièrement celui de Reimer [REI-89].

I.2.1. Grandeurs associées à une interaction

Les grandeurs les plus appropriées pour décrire l'interaction entre deux particules sont la section efficace et le libre parcours moyen. Ainsi après avoir défini ces grandeurs, nous allons décrire les différentes interactions mises en jeu dans le phénomène d'émission électronique ainsi que les modèles associés qui sont reconnus actuellement comme étant les meilleurs.

I.2.1.1. Section efficace d'interactions

La section efficace a la dimension d'une surface et peut être assimilée à la probabilité d'occurrence de l'interaction en question. Dans le cadre de la mécanique classique, on considère l'interaction d'un électron incident avec un centre diffuseur. La Figure I-2 représente cette interaction dans le référentiel du centre diffuseur. E_0 , E_1 , E et \mathbf{p}_0 , \mathbf{p}_1 sont respectivement les énergies cinétiques et les quantités de mouvement de l'électron incident avant et après interaction. E et \mathbf{q} sont celles du centre diffuseur après interaction.

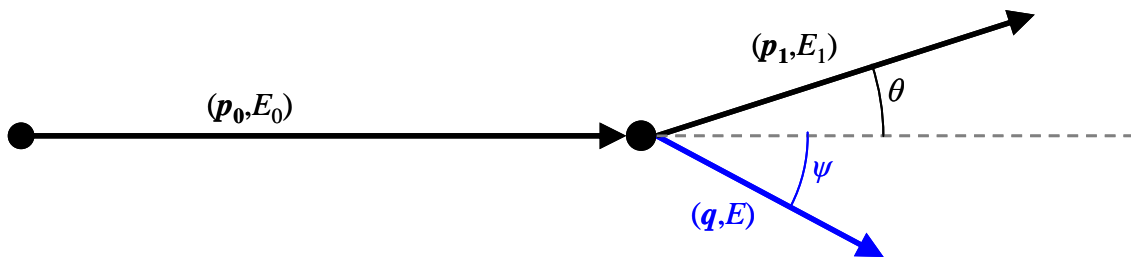


Figure I-2 : Schéma de l'interaction entre un électron et un centre diffuseur

On définit une grandeur u attachée à l'électron après interaction, par exemple son énergie ou son angle de diffusion. On note dN_1 le nombre d'évènements pour lesquels la grandeur $u \in [u, u + du]$. On a la relation de proportionnalité suivante :

$$dN_1 = n_0 \cdot N \cdot \Delta z \cdot \frac{d\sigma}{du} \cdot du, \quad (\text{I-1})$$

où n_0 est le nombre d'électrons incidents, N le nombre de centres diffuseurs par unité de volume et Δz l'épaisseur de la cible dans la direction du faisceau incident. Le terme $d\sigma/du$ est appelée « section efficace différentielle » en u . σ est la « section efficace totale » et est obtenue par l'intégration de la section efficace différentielle sur le domaine de variation de u .

Dans le cadre quantique, la particule incidente est décrite par une onde plane $\Psi_0 = \Psi \cdot \exp(2\pi \cdot i \cdot \vec{k}_0 \cdot \vec{r})$ où \vec{k}_0 est le vecteur d'onde de la particule incidente. Ψ représente le module de l'onde plane et r la distance par rapport au centre diffuseur.

Au cours de l'interaction avec un centre diffuseur cette onde est diffusée et l'onde sortante se comporte à grande distance comme une onde sphérique $\Psi_1 = \Psi \cdot f(\theta, \varphi) \cdot \exp(2\pi \cdot i \cdot \vec{k}_1 \cdot \vec{r})/r$ avec \vec{k}_1 le vecteur d'onde de la particule diffusée et $f(\theta, \varphi)$ le facteur de diffusion exprimé en coordonnées sphériques (r, θ, φ) . Cette diffusion est représentée par le schéma de la Figure I-3. Le facteur de diffusion $f(\theta, \varphi)$ dépend du potentiel d'interaction entre le centre diffuseur et la particule incidente. Il permet d'exprimer la section efficace différentielle en fonction de la direction de l'émission :

$$\frac{d^2\sigma}{d\theta d\varphi} = |f(\theta, \varphi)|^2. \quad \text{(I-2)}$$

Comme dans le cas classique, l'intégration de l'expression (I-2) donne accès à la section efficace totale.

La détermination de la section efficace différentielle $d\sigma/du$ donne accès aux caractéristiques de l'électron après interaction. Ainsi avec $d\sigma/d\theta$, où θ est l'angle de diffusion de l'électron, il est possible de déterminer statistiquement la direction de propagation de l'électron après interaction. Par analogie l'énergie de l'électron après interaction peut être déterminée statistiquement à partir de $d\sigma/dE_1$, où E_1 est l'énergie de l'électron. L'énergie et la direction du centre diffuseur après interaction sont déterminées par application des lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement connaissant l'énergie et la quantité de mouvement de l'électron avant et après interaction et du centre diffuseur avant interaction.

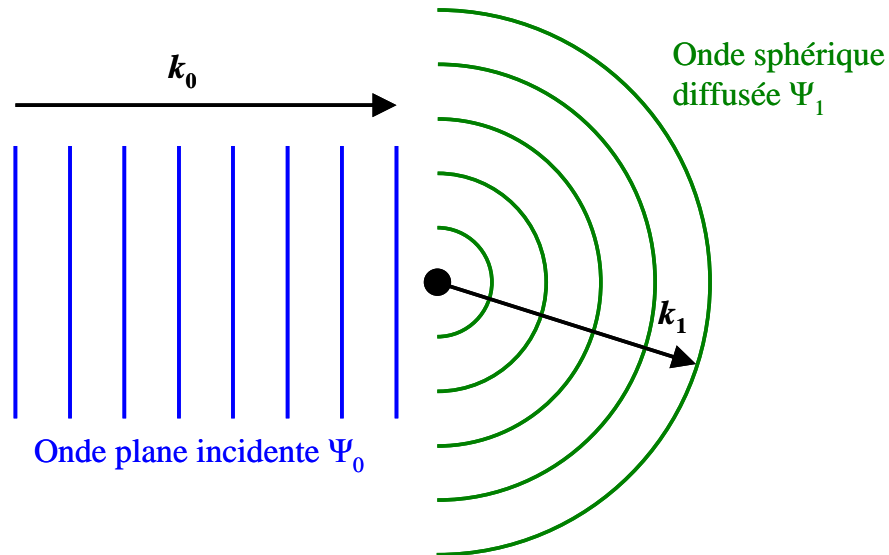


Figure I-3 : Schéma de la diffusion d'une onde plane

I.2.1.2. Libre parcours moyen

Le libre parcours moyen, noté λ , est une grandeur ayant la dimension, comme son nom l'indique, d'une longueur et correspond à la distance moyenne que va parcourir la particule avant de subir une interaction. Dans le cas d'un solide massif, des interactions multiples sont possibles et le libre parcours moyen λ peut se définir dans ce cas comme la distance moyenne entre deux interactions successives. Pour calculer λ , il faut d'abord déterminer la probabilité qu'une particule ne subisse pas d'interaction pendant le trajet de longueur x .

Nous considérons un faisceau d'électrons monocinétique d'énergie E_0 dont l'intensité est notée I_0 . Si nous tenons compte de la définition de la section efficace, l'affaiblissement du faisceau dI lors de la traversée de l'élément de longueur dx au bout d'un trajet de longueur x s'exprime de la manière suivante :

$$dI = -I(x) \cdot \sigma \cdot N dx. \quad (\text{I-3})$$

Le terme $I(x)$ représente l'intensité du faisceau après un trajet de longueur x . Les termes σ et N sont respectivement la section efficace d'interaction et le nombre de centre diffuseurs par unité de volume. La probabilité $P(x)$ pour qu'un électron du faisceau subisse une interaction entre x et $x + dx$ est proportionnel à $I(x)$ et s'exprime donc de la manière suivante :

$$dP = -P(x) \cdot \sigma \cdot N \cdot dx. \quad (\text{I-4})$$

En tenant compte de la normalisation de cette probabilité, la résolution de l'équation différentielle (I-4) donne l'expression de $P(x)$ suivante :

$$P(x) = \sigma \cdot n \cdot \exp(-\sigma \cdot N \cdot x). \quad (\text{I-5})$$

Avec l'expression de la probabilité $P(x)$, nous pouvons déterminer le libre parcours moyen λ de la manière suivante :

$$\lambda = \frac{\int_0^{\infty} x \cdot P(x) \cdot dx}{\int_0^{\infty} P(x) \cdot dx} = \frac{1}{N \cdot \sigma}. \quad (\text{I-6})$$

Ainsi la connaissance de la section efficace d'interaction donne directement accès au libre parcours moyen d'interaction.

I.2.2. Interaction élastique

Parmi toutes les interactions que peut subir l'électron lors de son cheminement dans le matériau, l'interaction avec le noyau des atomes du solide est la seule qui peut être considérée comme élastique ou quasi élastique. Cette interaction, qui n'est autre que la diffusion de l'électron incident par le champ coulombien induit par le cœur ionique, entraîne un très faible transfert d'énergie en raison de la différence de masse entre l'électron et l'atome. Cela conduit intuitivement à considérer le transfert d'énergie comme négligeable. La première modélisation de l'interaction élastique est due à Rutherford qui propose une formule analytique simple de la diffusion d'une particule chargée sur un centre attractif chargé. Ce modèle est simpliste et considère le cœur ionique comme isolé. Par la suite, ce modèle a été amélioré par la prise en compte du nuage électronique autour du noyau pour aboutir au modèle de Rutherford écranté. Une démarche plus précise à basse énergie a été développée via un traitement quantique de l'interaction. Il s'agit de la méthode dite d'analyse en ondes partielles. Cette méthode représente l'interaction comme la diffusion d'une onde plane

incidente (qui représente l'électron) par un potentiel ionique. Mott [MOT-65] a perfectionné cette analyse en ondes partielles en tenant compte le spin de l'électron. Dans cette partie, nous nous attachons à décrire l'interaction et ses différents formalismes. La comparaison entre ces formalismes s'effectuera dans le CHAPITRE II.

Dans chacune des méthodes existantes, une connaissance fine du potentiel d'interaction entre l'électron et le cœur ionique est essentielle. Ce potentiel doit rendre compte au mieux de l'état solide de la cible. En effet, le cœur ionique avec lequel l'électron interagit est entouré d'autres cœurs ioniques et de nuages électroniques. Ces éléments modifient le potentiel du cœur ionique qui interagit avec l'électron.

I.2.2.1. Traitement analytique de Rutherford

I.2.2.1.1. Modèle classique

Ce modèle de diffusion d'une particule chargée par un noyau a été proposé en 1911 et est basé sur deux approximations importantes : le noyau est considéré comme isolé des autres cœurs ioniques et l'influence du nuage électronique est considérée comme négligeable. La Figure I-4 donne le schéma de la diffusion d'un électron, de vitesse v_0 , dévié d'un angle compris entre θ et $\theta + d\theta$.

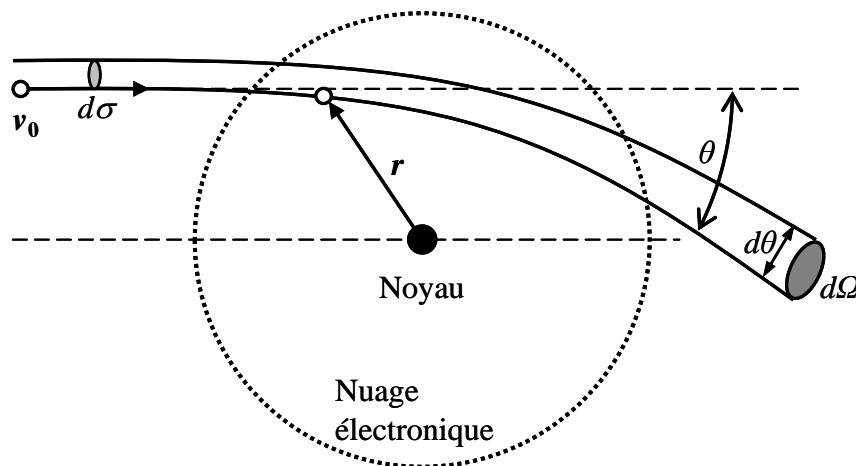


Figure I-4 : Modèle de diffusion de Rutherford

Dans le cadre de ce traitement classique, l'utilisation d'un potentiel coulombien pur pour le potentiel du noyau conduit à une section efficace différentielle $d\sigma/d\Omega$ de Rutherford de la forme :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{e^4 Z^2}{4(4\pi\epsilon_0)^2 m^2 v_0^2} \frac{1}{\sin^4 \frac{\theta}{2}}. \quad (\text{I-7})$$

Le terme $d\Omega$ est l'angle solide de diffusion pointant dans la direction (θ, φ) et est égal à $\sin\theta \cdot d\theta d\varphi$. ϵ_0 est la permittivité du vide, Z le numéro atomique de l'atome, m la masse de l'électron incident, v_0 la vitesse de l'électron incident et θ l'angle de déflexion de l'électron après interaction.

Cette section efficace différentielle diverge lorsque θ tend vers zéro. Cette divergence rend impossible la formulation analytique d'une section efficace totale. Elle est la conséquence de la portée infinie du potentiel de Coulomb. Ceci est dû à l'approximation négligeant l'influence du nuage électronique qui a pour effet de « masquer » le potentiel du noyau et ainsi réduire sa portée effective.

I.2.2.1.2. Modèle écranté

L'utilisation d'un potentiel purement coulombien ne décrit pas avec précision le potentiel du noyau. Wentzel [WEN-27] a proposé un modèle, dit de Rutherford écranté, qui utilise, dans un traitement quantique de l'interaction, un potentiel qui tient compte de l'écrantage du noyau par le nuage électronique. La formulation de la section efficace différentielle obtenue est :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{e^4 Z^2}{(4\pi\epsilon_0)^2 (4E_0)^2} \frac{1}{\left(\sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) + \sin^2\left(\frac{B}{2}\right) \right)^2}, \quad (\text{I-8})$$

où E_0 est l'énergie de l'électron incident, e la charge élémentaire de l'électron et ϵ_0 la permittivité du vide. Le paramètre B est appelé « paramètre d'écran ». Il rend compte à lui seul de l'influence du nuage électronique.

Avec le paramètre d'écran, l'expression **(I-8)** ne diverge plus quand θ tend vers zéro. Il est ainsi possible de déterminer la section efficace totale par :

$$\sigma = \int_0^\pi \frac{d\sigma}{d\Omega} \sin \theta \cdot d\theta \int_0^{2\pi} d\varphi$$

soit :

$$\sigma = \frac{e^4 Z^2}{(4\pi\epsilon_0)^2 (4E)^2} \frac{1}{\sin^2\left(\frac{\theta_w}{2}\right) + \left(\sin^2\left(\frac{B}{2}\right) + 1\right)}. \quad \text{(I-9)}$$

De nombreux auteurs ont cherché à raffiner la précision de la section efficace à travers la modification du paramètre d'écran. Ainsi les modèles de potentiel de Thomas-Fermi, de Lenz-Jensen, de Molière [MOL-47] ou de Nigam [NIG-59] sont des reformulations du paramètre d'écran. Des ajustements du paramètre d'écran calculé à l'expérience sont parfois effectués et en particulier dans les travaux de Martinez [MAR-79].

Malgré tous les efforts développés pour perfectionner cette modélisation, la section efficace de Rutherford écrantée perd sa validité pour des énergies inférieures au keV. Il est indispensable de disposer d'une méthode appropriée aux basses énergies. Dans ce domaine d'énergie, l'analyse en ondes partielles trouve sa place de prédilection.

I.2.2.2. Traitement numérique : méthode de l'analyse des ondes partielles

I.2.2.2.1. Cas non relativiste

Une autre approche du calcul de la section efficace de l'interaction entre un électron et un cœur ionique est le traitement par la mécanique quantique d'une onde plane qui interagit avec un centre diffuseur, comme représenté sur la Figure I-5. Ce traitement s'effectue avec la méthode dite de l'analyse en ondes partielles de l'équation de Schrödinger rendant compte de

l'interaction. Cette méthode, aussi appelée méthode de déphasage, permet d'obtenir l'amplitude de diffusion de l'interaction :

$$f(\theta) = \frac{1}{k_0} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) \cdot \exp(i\delta_l) \cdot \sin\delta_l \cdot P_l(\cos\theta), \quad (\text{I-10})$$

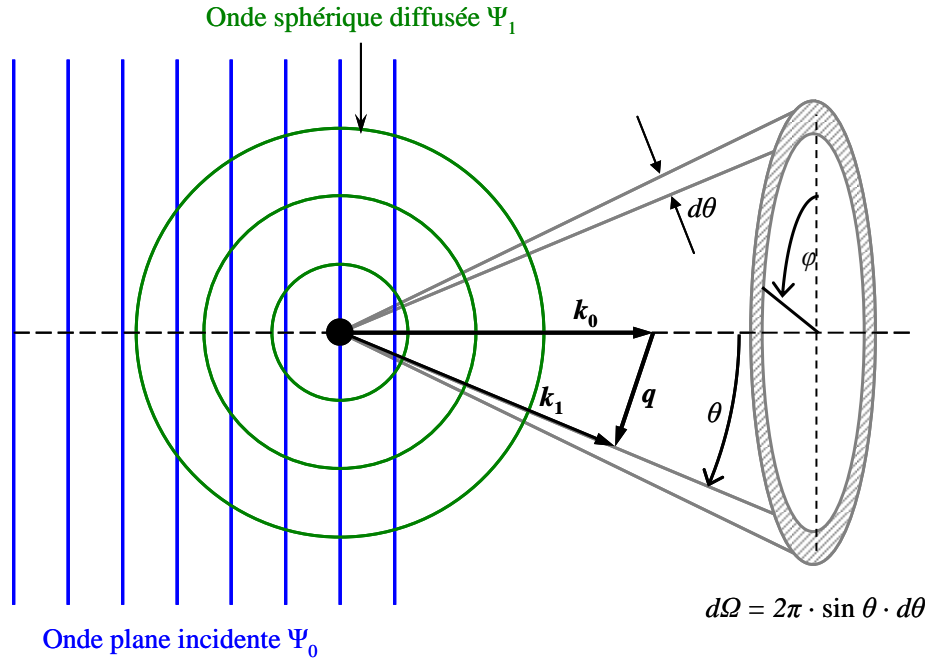


Figure I-5 : Schéma de la diffusion d'une onde plane en onde sphérique.

où P_l est le polynôme de Legendre de degré l . Le terme δ_l représente le déphasage de la $l^{\text{ème}}$ onde partielle. Ce terme représente l'action du potentiel. θ est l'angle de diffusion de la particule et k_0 le vecteur d'onde de la particule incidente. Afin de calculer le facteur de diffusion et ainsi obtenir la section efficace différentielle puis totale, il est nécessaire de connaître les termes de déphasage. Ils sont donnés par l'expression suivante :

$$\tan \delta_l = - \frac{j_l'(k_0 r) - \gamma_l \cdot j_l(k_0 r)}{\eta_l'(k_0 r) - \gamma_l \cdot \eta_l(k_0 r)} \Big|_{r=R}, \quad (\text{I-11})$$

avec $j_l(k_0 r)$ et $\eta_l(k_0 r)$ les fonctions de Bessel sphériques d'ordre l . Le terme γ_l représente la dérivée logarithmique de la fonction solution de l'équation radiale complète à la distance R , limite d'action du potentiel du cœur ionique. Une difficulté de cette méthode est de calculer γ_l . Noumerov [NOU-24] a développé une méthode numérique qui permet de s'en approcher avec une bonne précision.

À l'image du paramètre d'écran du modèle de Rutherford écranté, les termes de déphasages sont entièrement dépendants du choix de potentiel du cœur ionique. Une bonne approximation du potentiel d'un cœur ionique est obtenue avec des potentiel de type « *muffin-tin*¹ ». Ce sont des potentiels obtenus par superposition des potentiels atomiques centrés sur les différents cœurs ioniques. Smrčka [SMR-70] et Pendry [PEN-74] ont chacun proposé un potentiel muffin-tin pour calculer des sections efficaces.

I.2.2.2. Cas relativiste : modèle de Mott

Si à priori l'effet de la relativité ne semble pas important pour les électrons incidents d'énergie de l'ordre du keV, nombreux auteurs, dont Massey et Burhop [MAS-69] font remarquer que l'électron est accéléré à l'approche du champ atomique et qu'en un certain moment de l'interaction, sa vitesse peut être suffisamment élevée pour entraîner des modifications relativistes significatives. Ces modifications sont d'autant plus importantes que le numéro atomique est plus élevé. Ainsi, Mott [MOT-65] a proposé une approche fondée sur la théorie relativiste de Dirac et en tenant compte de l'interaction spin-orbite² de l'électron dans l'analyse en ondes partielles de l'interaction. La fonction d'onde de l'électron incident est alors décrite par une composante de spin parallèle et une composante de spin antiparallèle. L'analyse en ondes partielles donne alors comme expression de la section efficace différentielle :

$$\frac{d\sigma}{d\theta} = |f(\theta)|^2 + |g(\theta)|^2, \quad (\text{I-12})$$

où :

$$f(\theta) = \frac{1}{2ik_0} \sum_{l=0}^{\infty} [(l+1)(e^{2i\delta_l} - 1) + l(e^{2i\delta_{l-1}} - 1)] \cdot P_l(\cos \theta), \quad (\text{I-13})$$

¹ La variation du potentiel dit « *muffin-tin* » est confinée à l'intérieur d'une sphère centrée sur chaque atome, à l'extérieur de la sphère le potentiel est constant.

² Interaction spin-orbite inversement proportionnelle à la vitesse de la particule : le champ magnétique créé par la particule est vue par celle-ci comme un champ extérieur qui agit sur son spin : la particule fortement déviée par le potentiel atomique quand elle est lente présente un moment orbital élevé. Le couplage spin-orbite est donc fort.

et

$$g(\theta) = \frac{1}{2ik_0} \sum_{l=0}^{\infty} [(\cos 2\delta_{-l-1} - \cos 2\delta_l) + i(\sin 2\delta_{-l-1} - \sin 2\delta_l)] \cdot P_l(\cos \theta). \quad (\text{I-14})$$

Dans les expressions (I-13) et (I-14), P_l est le polynôme de Legendre d'ordre l et δ_l représente le déphasage de la $l^{\text{ième}}$ onde partielle. Ici k_0 est le vecteur d'onde relativiste de l'électron incident, il est défini tel que : $k_0^2 = (\gamma^2 - 1)/\alpha^2$, avec α la constante de Sommerfeld ou de structure fine, et $\gamma = (1 - v_0^2/c^2)^{-1/2}$ est le facteur de correction relativiste où v_0 est la vitesse de l'électron incident.

À l'image du traitement non-relativiste, les termes de déphasage sont obtenus par un traitement numérique afin de calculer les sections efficaces différentielle et totale. Le choix du potentiel est critique. Parmi les travaux les plus récents et conséquents dans la détermination de la section efficace d'interaction électron-cœur ionique avec le modèle de Mott, nous pouvons citer ceux de Reimer et Lodding [REI-84], de Czyzewski et co. [CZY-90], de Drouin et co. [DRO-97] et de Jablonski et co. [JAB-04].

I.2.3. Interactions inélastiques

Les interactions inélastiques correspondent aux collisions des électrons incidents avec les électrons atomiques. Elles amènent l'atome dans un état excité suite à une perte d'énergie de l'électron incident. Une particule secondaire (l'électron atomique heurté) peut être libérée si l'énergie transférée est suffisante. Les interactions inélastiques peuvent être soit individuelles (transitions interbandes) ou collectives (excitation des plasmons). Le transfert d'énergie est direct dans le cas d'une interaction entre un électron incident et un électron du matériau alors qu'il est indirect dans le cas d'une interaction avec un plasmon. Dans ce dernier cas, la désexcitation du plasmon peut fournir l'énergie à un électron du matériau pour le mettre en mouvement. Une autre interaction, plus particulière, est celle de l'électron avec un phonon qui caractérise l'oscillation du réseau formé par les atomes du matériau.

I.2.3.1. Interactions individuelles

Suite à l'interaction d'un électron incident, d'énergie E_0 et de vecteur d'onde \mathbf{k}_0 , avec un électron du matériau, un transfert d'énergie $\hbar\omega$ et de moment $\hbar\mathbf{q}$ se produit tel que :

$$\begin{aligned} E_1 &= E_0 - \hbar\omega \\ \hbar \cdot \vec{k}_1 &= \hbar \cdot (\vec{k}_0 - \vec{q}) \end{aligned} \quad (\text{I-15})$$

où E_1 et \mathbf{k}_1 sont respectivement l'énergie et le vecteur d'onde de l'électron incident après interaction. L'électron incident est alors dévié d'un angle θ comme indiqué sur la Figure I-6.

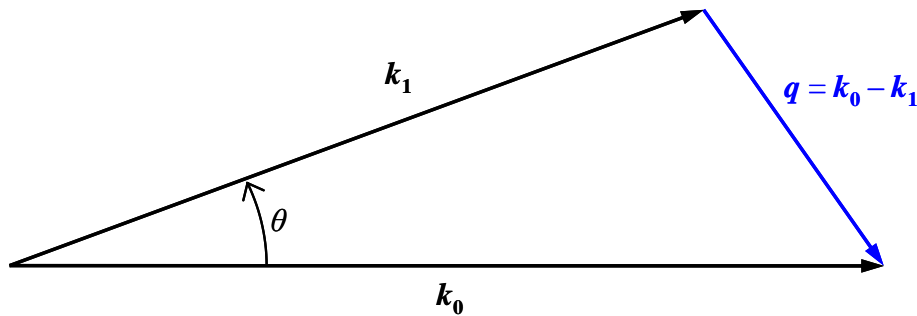


Figure I-6 : Schéma de l'interaction électron-électron avec un transfert de moment $\hbar\mathbf{q}$ et une déflexion θ de l'électron incident.

Il est important de souligner que l'interaction électron-électron dépend de la nature des électrons du matériau engagés dans cette interaction. Deux types de populations selon un critère énergétique sont à considérer:

- Les électrons des couches électroniques fortement liés à l'atome dont les énergies de liaison sont de l'ordre de quelques dizaines d'eV à plusieurs milliers d'eV. Ces électrons sont qualifiés « d'électrons de cœur » car ils ne participent pas aux liaisons interatomiques et forment avec le noyau le cœur ionique. Leurs niveaux énergétiques qui sont peu affectés par l'organisation en réseau des atomes qui forment le solide, sont similaires à ceux discrets du modèle de l'atome isolé.
- Les électrons faiblement liés dont les énergies de liaison sont inférieures à quelques dizaines d'eV et bien plus sensibles aux potentiels des autres atomes du solide. Leurs niveaux d'énergie ne sont plus discrets comme dans le cas atomique mais se répartissent

dans des intervalles d'énergie continus, appelés bandes d'énergie. Le comportement de cette population d'électrons, bien plus complexe que celui des électrons de cœur, dépend de la nature du matériau et des couches électroniques concernées. Les électrons de conduction des métaux (ou de valence des isolants) font partie de cette population.

Nous allons maintenant traiter l'interaction avec ces deux types de population. Dans le cas des électrons de cœur on s'intéressera non seulement au processus d'excitation mais également à celui de la désexcitation. Notre attention portera plus particulièrement sur la relaxation via l'effet Auger qui met en mouvement un électron qui participe au processus de cascade électronique qui engendre l'émission électronique.

I.2.3.1.1. Interaction électron-électron fortement liés

Dans le cas d'une interaction « électron-électron » deux types de mécanismes sont à considérer : l'excitation ou l'ionisation et la désexcitation. Dans le premier cas, l'énergie transférée par l'électron incident est supérieure à l'énergie de liaison de l'électron atomique. Ce dernier est donc expulsé de l'atome. Le retour à l'équilibre de l'atome ionisé sera accompagné soit d'une émission électromagnétique (transition radiative : photons X), soit électronique (transition Auger).

I.2.3.1.1.1. Mécanisme d'excitation : section efficace d'ionisation

L'énergie nécessaire pour exciter un électron d'une couche électronique n est notée U_n et est appelée énergie de liaison. L'électron incident ne peut avoir une énergie cinétique inférieure à U_n pour que le phénomène d'ionisation puisse avoir lieu. Pour déterminer la probabilité de ce phénomène, une première approche a été proposée par Bethe [BET-30]. Cette approche est basée sur un traitement quantique de la perturbation des électrons d'un atome par une onde plane représentant l'électron incident. Pour un transfert de moment $\hbar q$ et d'énergie $\hbar\omega$ par un électron incident d'énergie E_0 , la section efficace différentielle de l'excitation d'un électron de la couche électronique n s'exprime de la façon suivante :

$$\frac{d\sigma_n}{dq \cdot d\omega} = \frac{4\pi \cdot a_0^2 \cdot R_y}{E_0 \cdot U_n} \cdot \frac{df_n(q, \omega)}{d\omega}, \quad (\text{I-16})$$

où a_0 est le rayon de Bohr et R_y l'énergie de Rydberg³. Le terme $f_n(q)$ représente la « force d'oscillateur généralisée » (ou GOS pour *Generalized Oscillator Strength*)⁴ de la couche électronique n et prend la forme :

$$\frac{df_n(q, \omega)}{d\omega} = \frac{1}{(q \cdot a_0)^2} \sum_n \frac{U_n}{R_y} \cdot |M_n(q, \omega)|^2, \quad (\text{I-17})$$

où $M_n(q, \omega)$ est l'élément de matrice dipolaire des électrons de la couche n . L'approche de Bethe perd sa validité lorsque $E_0/U_n > 4$. Cette approche a fait l'objet de nombreuses améliorations, notamment celles de Fano [FAN-56] et d'Inokuti [INO-71] qui tiennent compte du caractère relativiste de l'électron incident. L'aspect relativiste n'est appréciable qu'à partir de plusieurs dizaines de keV. D'autres raffinement, comme l'introduction du model hydrogénoïde [EGE-11] ou l'utilisation du modèle des ondes planes orthogonalisées [RÖS-91] ont permis de traiter l'interaction électron-électron de cœur à une énergie d'incidence de l'ordre de quelques U_n .

Une autre approche a été développée par Gryziński [GRY-65] qui propose un traitement classique de la collision coulombienne de deux électrons dont l'un fait partie du système complexe qu'est l'atome. La section efficace différentielle d'excitation d'un électron de la couche électronique n d'énergie de liaison U_n est :

$$\frac{d\sigma_n(E_0, \hbar\omega, U_n)}{d\hbar\omega} = \frac{\sigma_0}{(\hbar\omega)^3} \frac{1}{x} \left(\frac{x}{x-1} \right)^{3/2} \left[y \cdot \left(1 - \frac{1}{x} \right) \cdot \frac{4}{3} \ln \left[2.718 + (x-y)^{1/2} \right] \right] \left(1 - \frac{y}{x} \right)^{1/(1+y)}, \quad (\text{I-18})$$

avec $\sigma_0 = 656 \text{ eV}^2 \cdot \text{Å}^2$, $x = \frac{E_0}{U_n}$ et $y = \frac{\hbar\omega}{U_n}$. L'intégration de l'expression (I-18) sur l'intervalle

de valeur autorisé pour ΔE donne la section efficace totale d'interaction avec un électron de la couche n suivante :

³ L'énergie de Rydberg, ou constante de Rydberg, décrit l'énergie fondamentale de l'atome d'hydrogène. Elle vaut 13.6 eV.

⁴ La force d'oscillateur généralisée est une généralisation au cas de la diffusion inélastique d'un électron, du cas de l'absorption optique et de la force d'oscillateur. Cette dernière représente la fraction des électrons de la cible qui prennent part à la transition dipolaire lors de l'absorption.

$$\sigma_n(E, U_n) = \frac{\sigma_0}{U_n^2} \cdot \frac{1}{x} \cdot \left(\frac{x-1}{x-1}\right)^{3/2} \cdot \left[1 + \frac{2}{3} \cdot \left(1 - \frac{1}{2x}\right) \cdot \ln\left[2.718 + (x-1)^{1/2}\right]\right]. \quad (\text{I-19})$$

Ces deux approches (Bethe et Gryziński) permettent un traitement séparé de chaque couche électronique atomique.

I.2.3.1.1.2. Désexcitation de l'atome

I.2.3.1.1.2.1. Mécanismes

La lacune, dans une couche électronique n , générée suite à l'interaction d'un électron incident avec un électron de cœur, entraîne une instabilité dans la répartition des électrons de l'atome. Cet état excité entraîne une série de processus de réarrangement qui peuvent être assez complexes et qui interviennent dans un laps de temps de 10^{-17} à 10^{-14} s. En général la lacune est comblée par un électron provenant d'une couche supérieure (moins liée). Deux processus de désexcitation sont possibles lors de cette transition :

- Un processus radiatif (émission X): la transition s'accompagne de l'émission d'un photon X dont l'énergie est égale à la différence d'énergie des niveaux impliqués.
- Un processus non-radiatif (effet Auger) : la différence d'énergie entre les niveaux de transition est transférée à un autre électron qui est éjecté selon le mécanisme Auger. Dans le cas où l'électron qui transite vers la lacune est issu du même niveau énergétique que la lacune, alors on parle de transition Coster-Kronig [COS-35]. Il existe un cas très rare dit transition super Coster-Kronig où les trois électrons (celui émis par interaction, celui qui comble la lacune et celui qui est émis par désexcitation) appartiennent au même niveau énergétique.

Les deux modes de désexcitation (émission X et émission Auger) sont schématisés sur la Figure I-7 dans le cas d'une ionisation de la couche électronique K.

Les processus de désexcitation qu'on vient d'énumérer sont mutuellement exclusifs (complémentaires). Ainsi nous avons $\omega + a + f = 1$, où ω est le rendement de fluorescence X, a le rendement Auger et f le rendement Coster-Kronig. Des rendements qui sont définis

comme le rapport entre le nombre d'évènements de désexcitation et le nombre d'excitations par ionisation. Ces rendements présentent une forte dépendance vis-à-vis du numéro atomique. Les éléments légers favorisent grandement les transitions non-radiatives. La Figure I-8 présente le rendement Auger et le rendement de fluorescence X dans le cas de l'ionisation de la couche électronique K.

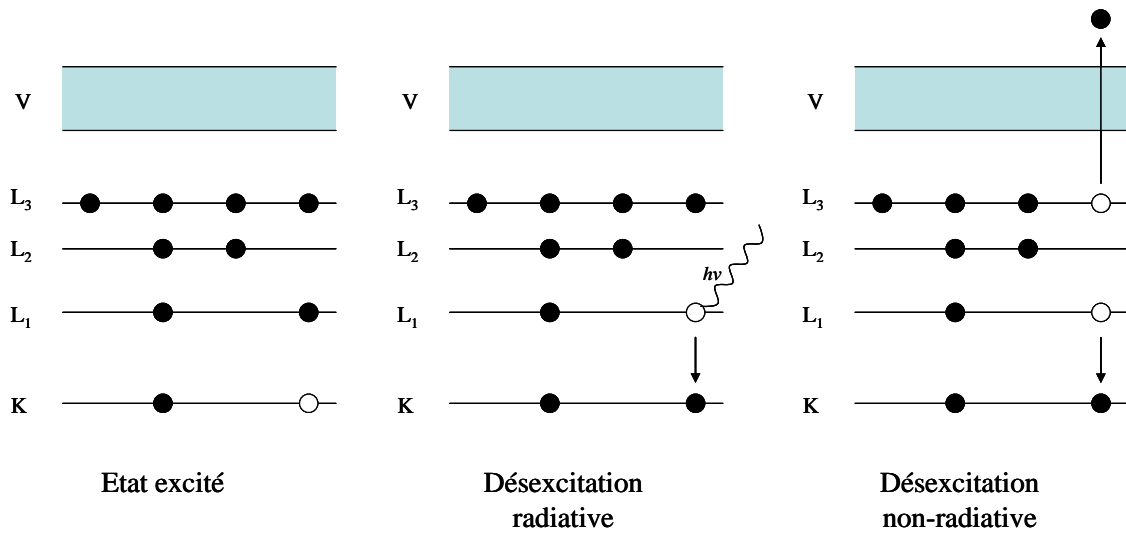


Figure I-7 : Schéma de la désexcitation d'un atome d'un solide ionisé au niveau de la couche électronique K par émission d'un photon ou d'un électron.

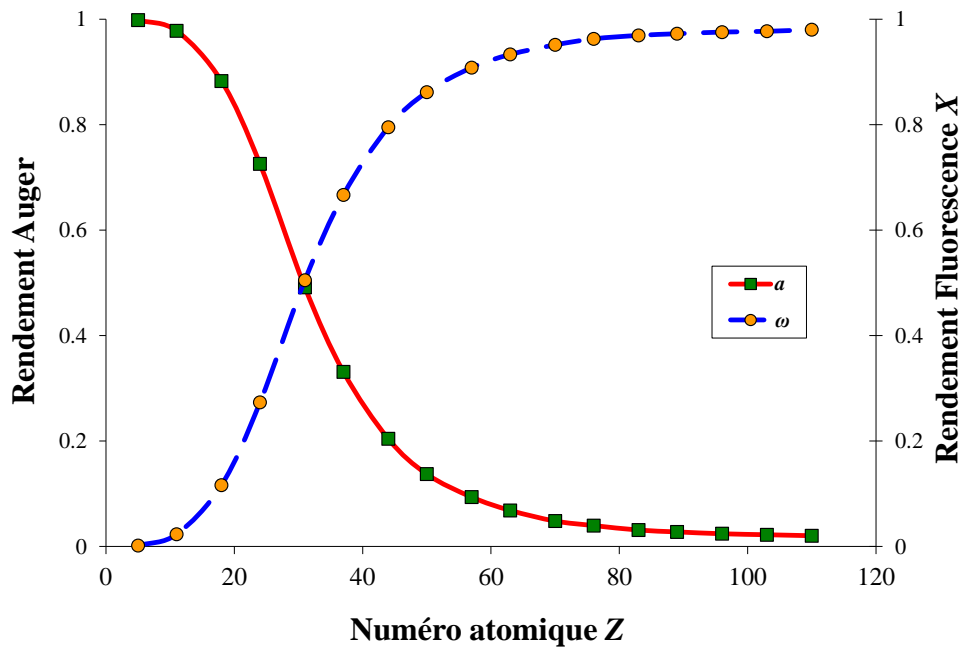


Figure I-8 : Rendement Auger et de fluorescence X pour la couche électronique K. Les données sont issues de [KRA-79].

I.2.3.1.1.2.2. Energie des raies émises

Dans le cas d'une désexcitation radiative, l'énergie du photon émis est donnée par :

$$h\nu = E_n - E_m, \quad \text{(I-20)}$$

où E_n et E_m représentent respectivement l'énergie de la couche électronique ionisée et le niveau d'énergie de la couche électronique de l'électron qui fait la transition.

Dans le cas d'une désexcitation non-radiative, l'énergie de l'électron émis peut en principe être déterminée de la même manière que pour le photon. Cependant une telle approche ne prend pas en compte les effets d'échanges entre électrons. Les théories existantes ne prévoient ni toutes les transitions possibles, ni les intensités de ces transitions pour tous les éléments chimiques [LEG-78]. Il est nécessaire d'utiliser des formulations empiriques. Une expression de l'énergie de l'électron émis a été proposée par Chung et Jenkins [CHU-70] :

$$E_{W_{X_n Y_m}} = E_W(Z) - \frac{1}{2} \cdot [E_{X_n}(Z) + E_{X_n}(Z+1) + E_{Y_m}(Z) + E_{Y_m}(Z+1)], \quad \text{(I-21)}$$

où $E_{W_{X_n Y_m}}$ est l'énergie de l'électron Auger. $E_W(Z)$ est l'énergie de la couche électronique W pour l'élément de numéro atomique Z où la lacune est présente. $E_{X_n}(Z)$ représente l'énergie de la sous-couche n de la couche électronique X dont est issu l'électron qui effectue la transition. $E_{Y_m}(Z)$ est l'énergie de la sous-couche m de la couche électronique Y d'où l'électron est émis par désexcitation. Les termes $E_{X_n}(Z+1)$ et $E_{Y_m}(Z+1)$ représentent respectivement les énergies des mêmes sous-couches que les termes $E_{X_n}(Z)$ et $E_{Y_m}(Z)$ mais pour l'élément suivant dans le tableau périodique.

I.2.3.1.2. Interaction électron-électron faiblement liés

Avant de parler des modèles qui traitent cette interaction proprement dite, rappelons tout d'abord quelques notions utiles, associées à la structure de bandes d'énergie d'un solide. Ces modèles concernent le cas des électrons libres et le cas réel des électrons dans un solide.

I.2.3.1.2.1. Structure de bande

La population d'électrons faiblement liés concerne les couches électroniques périphériques. Dans le cas des métaux alcalins et alcalins terreux ou d'un métal faible comme l'aluminium, seuls les électrons des sous-couches s et p de la dernière couche électronique sont assimilables à des électrons faiblement liés. Ces électrons sont situés dans la bande de conduction, voir schéma (a) du métal de la Figure I-9. Pour les métaux de transitions, tels que les métaux nobles, les électrons de la sous-couche électronique d de la dernière couche électronique sont pris en compte. La bande de conduction est partiellement remplie et une bande de valence est soit espacée de quelques eV de la bande de conduction, soit elle chevauche la bande de conduction (respectivement schéma (b) et (c) du métal de la Figure I-9). Dans le cas des isolants et des semi-conducteurs, c'est généralement la dernière bande de valence qui est prise en compte (c.-à-d. le niveau énergétique plein qui précède la bande de conduction vide). L'écart entre cette bande de valence et la bande de conduction est notée E_G (voir Figure I-9).

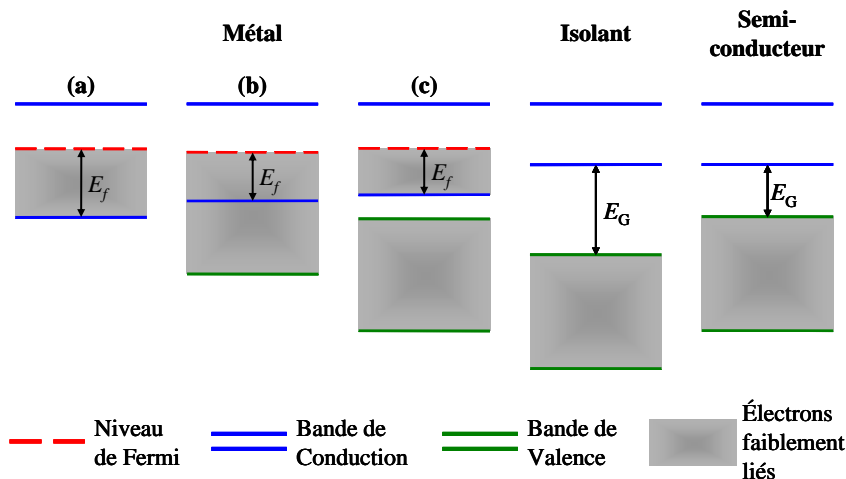


Figure I-9 : Schéma des populations d'électrons faiblement liés selon la nature du matériau.

L'occupation électronique de ces bandes d'énergie est définie par des densités d'état $g(E)$. Dans le cadre du modèle des électrons libres, la densité d'états est donnée par l'expression suivante [KIT-76] :

$$g(E) = \frac{3}{2} \cdot \frac{n}{E_f} \sqrt{\frac{E}{E_f}}. \quad (\text{I-22})$$

Les densités d'état des électrons de la bande de conduction de l'aluminium, calculées par Smrčka [SMR-70] en trait plein et calculée avec l'expression (I-22) en trait hachuré, sont représentées sur la Figure I-10. Les calculs de Smrčka utilisent la méthode des ondes planes augmentées (APW) développée initialement par Slater [SLA-69] pour résoudre l'équation de Schrödinger à un seul électron. Cette méthode est basée sur l'approximation « *Muffin-tin* » pour décrire le potentiel cristallin.

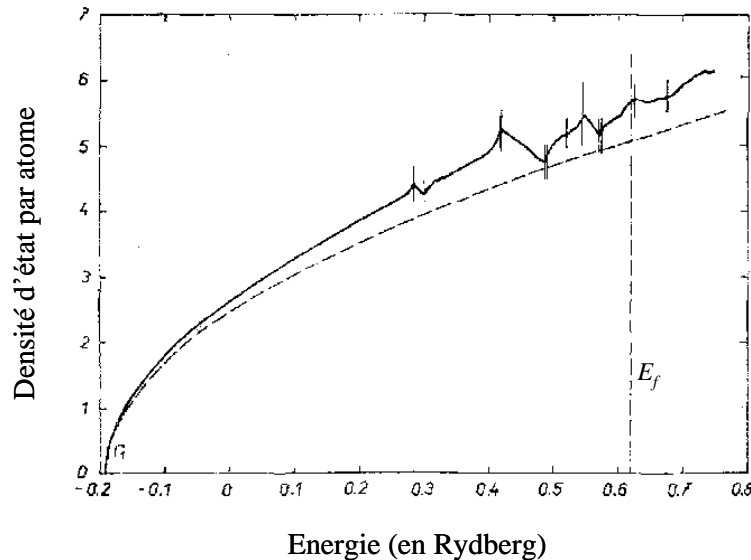


Figure I-10 : Densité d'état des électrons de conduction de l'aluminium calculée. Trait plein : par Smrčka [SMR-70] ; Trait hachure : modèle des électrons libres (I-22). L'énergie de Fermi est également indiquée (trait vertical discontinu).

I.2.3.1.2.2. Cas des électrons libres

I.2.3.1.2.2.1. Formalisme

Les premières approches de l'interaction ont été effectuées pour un cas idéal, proche des métaux alcalins, en ne prenant en compte qu'une bande de conduction partiellement remplie. Il s'agit du cas le plus simple où les électrons de conduction sont considérés comme des électrons libres et indépendants. Un électron de conduction ne ressent pas l'effet des cœurs ioniques sur leurs trajectoires, ni les effets des interactions avec les autres électrons de conduction. Les électrons de conduction sont traités comme un gaz ou plasma d'électrons, parfois appelé gaz de Fermi. La distribution de ces électrons dans la bande de conduction est décrite par la statistique de Fermi-Dirac. Cette bande est remplie jusqu'au niveau de Fermi, ou énergie de Fermi, noté E_f , voir Figure I-10.

De nombreux travaux [BOH-53, LIN-54, FER-56, RIT-57, PIN-64, RAE-65] ont été effectués pour exprimer la réponse du gaz d'électrons à la perturbation engendrée par un électron incident. Ils considèrent l'électron comme une onde plane qui vient perturber un système à plusieurs électrons. Le calcul est fondé sur la méthode des perturbations dépendantes du temps de la probabilité de transition $W(l, \vec{k} \rightarrow l', \vec{k}')$ d'un électron du plasma de l'état $|l, \vec{k}\rangle$ à l'état $|l', \vec{k}'\rangle$ (la transition est soit interbande avec $l \neq l'$, soit intrabande avec $l = l'$) :

$$W(l, \vec{k} \rightarrow l', \vec{k}') = \frac{32\pi^3 e^4}{\hbar \Delta^2 q^4} \cdot \frac{\left| \langle l', \vec{k}' | l \vec{k} \rangle \right|^2}{\left| \varepsilon(\vec{q}, \omega) \right|^2} \times \delta_{\vec{k}', \vec{k} + \vec{q}} \delta(E_{l' \vec{k}'} - E_{l \vec{k}} - \hbar \omega), \quad (\text{I-23})$$

où q est le module du vecteur d'onde de transfert. Δ représente le volume du matériau. l et l' représentent respectivement les couches électroniques de l'état initial et de l'état final. Le terme $E_{l, k}$ désigne l'énergie de l'électron du plasma du niveau électronique l et de vecteur d'onde \vec{k} . $\delta(E)$ et $\delta(\vec{k})$ sont les fonctions de Dirac qui assurent la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement respectivement. Le terme $\varepsilon(q, \omega)$ est la constante (ou fonction) diélectrique longitudinale. Cette constante diélectrique traduit la réponse du système d'électrons à un champ longitudinal $E(\vec{q}, \omega)$ qui varie dans l'espace et le temps. Elle s'exprime sous la forme $\varepsilon(q, \omega) = \varepsilon_1(q, \omega) + i\varepsilon_2(q, \omega)$ où les termes $\varepsilon_1(q, \omega)$ et $\varepsilon_2(q, \omega)$ sont respectivement la partie réelle et imaginaire de la constante diélectrique. Dans le cas d'un gaz d'électrons libres, la constante diélectrique peut être exprimée, pour ω grand et q qui tend vers zéro, de la manière suivante : $\varepsilon(\omega) = 1 - \omega_p / \omega$, où ω_p est la fréquence d'oscillation du gaz d'électron libre.

Ce modèle, dit modèle diélectrique, donne accès à l'expression de l'inverse du libre parcours moyen différentiel pour un électron incident d'énergie E_0 qui transfère une énergie $\hbar\omega$ et une quantité de mouvement $\hbar\vec{q}$ à l'électron du plasma :

$$\frac{d^2(1/\lambda)}{d\omega \cdot dq} = \frac{m \cdot e^2}{4\pi^2 \varepsilon_0 \cdot \hbar \cdot E_0} \cdot \frac{1}{q} \cdot \text{Im} \left[-\frac{1}{\varepsilon(q, \omega)} \right], \quad (\text{I-24})$$

où $\text{Im}[-1/\varepsilon(q, \omega)]$ est la fonction de perte d'énergie de l'interaction.

Bohms et Pines [BOH-53] ont été parmi les premiers à étudier l'interaction d'un électron avec un gaz de Fermi. L'expression du hamiltonien de cette interaction donnée en fonction, entre autre, du vecteur d'onde de transfert \mathbf{q} montre l'existence d'un vecteur particulier, \mathbf{q}_c , dit vecteur d'onde de coupure. Ce dernier a été interprété par Ferrell [FER-56] et Raether [RAE-65] comme une limite de séparation de l'interaction d'un électron avec le gaz de Fermi en deux interactions. Pour $|\vec{q}| > q_c$, l'interaction est individuelle pour la collision d'un électron incident et d'un électron de conduction. Pour $|\vec{q}| < q_c$, l'interaction est collective, l'électron incident crée un plasmon en perturbant le gaz de Fermi. Le traitement de ce dernier cas (c.-à-d. de l'interaction électron-plasmon) est fait dans la partie I.2.3.2. Cette séparation se traduit par des domaines d'existence, dans l'espace (q, ω) , différents pour les deux types d'interactions (c.-à-d. collective et individuelle). Dans le cas de l'interaction individuelle, le libre parcours moyen est donné par:

$$\lambda^{-1} = \int_0^{\omega_{\max}} \int_{q_-}^{q_+} \frac{m \cdot e^2}{4\pi^2 \varepsilon_0 \cdot \hbar \cdot E_0} \cdot \frac{1}{q} \cdot \text{Im} \left[-\frac{1}{\varepsilon(q, \omega)} \right] \cdot dq \cdot d\omega. \quad (\text{I-25})$$

La borne supérieure d'intégration ω_{\max} est définie de la manière suivante :

$$\hbar \omega_{\max} = E_0 - E_f. \quad (\text{I-26})$$

Cette limite supérieure indique que l'électron incident après interaction ne peut avoir une énergie inférieure au niveau de Fermi. En effet, le principe d'exclusion de Pauli empêche l'électron incident de se retrouver dans la mer de Fermi. Les bornes d'intégration pour le transfert de moment sont données par l'expression suivante :

$$\hbar q_{\pm} = \sqrt{2m} \left(\sqrt{E_0} \pm \sqrt{E_0 - \hbar \omega} \right). \quad (\text{I-27})$$

Les termes q_+ et q_- représentent respectivement la valeur maximale et minimale du vecteur d'onde de transfert pour un transfert d'énergie $\hbar \omega$, comme l'illustre la Figure I-11.

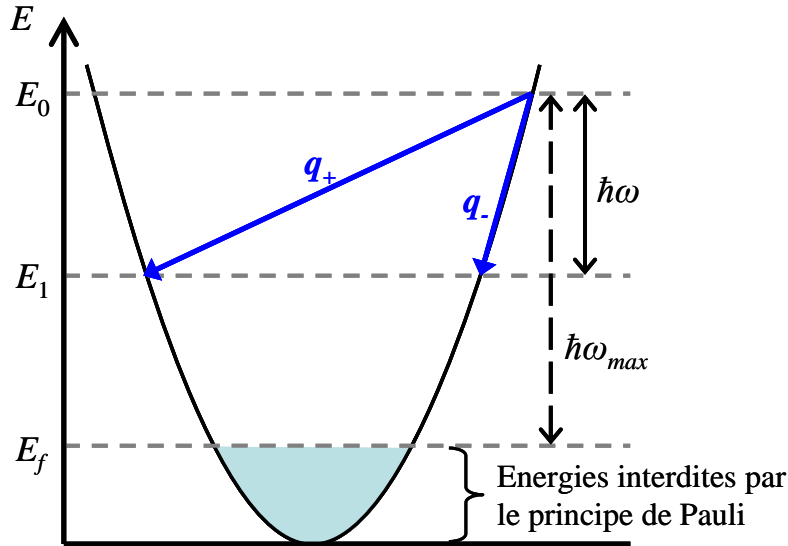


Figure I-11 : Transferts d'énergie et de moment cinétique autorisés pour l'électron incident lors de l'interaction avec un électron du gaz de Fermi. $\hbar\omega_{max}$ représente la perte d'énergie maximale que peut subir l'électron incident au cours de cette interaction : $E_0 - E_f$.

1.2.3.1.2.2.2. Amélioration du modèle des électrons libres

Le modèle diélectrique, dont la détermination de la constante diélectrique $\varepsilon(q, \omega)$ constitue le point central, est couramment utilisé. Le formalisme le plus simple est celui basé sur l'approximation d'Hartree-Fock [PIN-64] qui consiste à déterminer un potentiel périodique auto-cohérent qui traduit l'effet des cœurs ioniques et inclut un terme d'échange qui rend compte des interactions entre les électrons de conduction. Pour améliorer ce formalisme il existe d'autres approches, notamment celle de Thomas-Fermi [ASH-76] qui complète l'approximation d'Hartree-Fock en considérant un paramètre d'écrantage. Cependant cette approche n'est valable que pour des valeurs de q faibles. Pour remédier à cette insuffisance Lindhard [LIN-54] applique l'approximation de la phase aléatoire⁵ pour tenir compte de l'écrantage pour des valeurs de q élevées. La fonction diélectrique de Lindhard est donnée par l'expression suivante :

$$\varepsilon_L(q, \omega) = \varepsilon_{L,1} + i\varepsilon_{L,2}. \quad (\text{I-28})$$

La part réelle de la constante diélectrique est donnée par l'équation suivante :

⁵ Pour calculer $\varepsilon(q, \omega)$, on tient seulement compte des interactions coulombiennes dans l'espace (q, ω) qui ont le même vecteur d'onde k que l'excitation, mais on néglige toutes les interactions entre les composantes de Fourier ρ_q et $\rho_{k \neq q}$. C'est-à-dire que l'on néglige les interactions avec des électrons dont le vecteur d'onde n'est pas colinéaire au vecteur d'onde de l'interaction.

$$\varepsilon_{L,1} = (\alpha \cdot r_s) \cdot z^{-3} \cdot [4z + f(z,+u) + f(z-u)] + 1, \quad (\text{I-29})$$

avec $\alpha = (4/9\pi)^{1/3}$, r_s qui est le rayon de la sphère occupé par un électron de conduction du matériau considéré. Le terme z est défini tel que $z = q/2k_f$, où k_f est le vecteur d'onde de Fermi. La fonction $f(a)$ est donnée par $f(a) = (1-a^2) \cdot \ln|(a+1)/(a-1)|$. La part imaginaire de la constante diélectrique de Lindhard est donnée par l'expression suivante :

$$\varepsilon_{L,2} = (\alpha \cdot r_s / 8) \cdot z^{-3} \cdot B(z,u), \quad (\text{I-30})$$

avec $u = y/z$ et y est défini tel que $y = \hbar\omega/4E_f$. Le terme $B(z,u)$ est défini pour plusieurs domaines du plan (q,ω) tel que représenté dans la Figure I-12. Les régions I et I', colorées en bleu, sont des domaines de l'espace (q,ω) où la fonction de Lindhard est considéré comme valide pour l'interaction électron-électron ($B(z,u) \neq 0$). Ces régions sont délimitées par les paraboles qui définissent l'énergie minimale et maximale de transfert. La constante diélectrique de Lindhard implique l'approche de Thomas-Fermi pour des valeurs de q faibles.

Pour améliorer le traitement de Lindhard, Mermin [MER-70] tient compte de la déformation de la distribution électronique suite à la collision en considérant un temps de vie fini de l'excitation. Vashishta et Singwi [VAS-72] ont modifié l'expression de la constante diélectrique de Lindhard en introduisant la polarisabilité électronique, ainsi que les effets de corrélation et d'échange qu'elle induit.

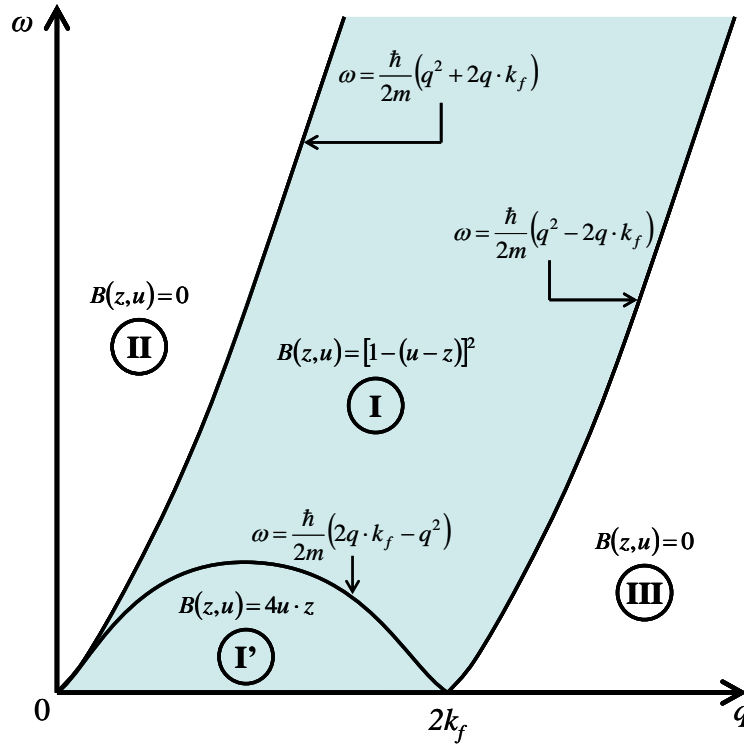


Figure I-12 : Fonction diélectrique de Lindhard [LIN-54] dans le plan (q, ω) avec $z = q/2k_f$, $y = \hbar\omega/4E_f$ et $u = y/z$. Les régions I et I' représentent le domaine de validité de la fonction de Lindhard pour l'interaction électron-électron. Les limites de la région I sont définies par les valeurs limites du module du vecteur de transfert pour un transfert d'énergie $\hbar\omega$.

I.2.3.1.2.3. Formalisme dans le cas réel

L'ensemble des modélisations de la constante diélectrique énumérées ci-dessus reste restreint à des métaux dont les électrons faiblement liés peuvent être décrits comme des électrons libres. Ils sont valides pour les métaux alcalins et alcalins terreux et certains métaux particuliers comme l'aluminium. Pour les autres matériaux possédant des populations d'électrons qui ne peuvent être considérées comme des électrons libres, par exemple à cause de la présence de bandes d'énergie autres que celle de conduction (métaux de transition avec notamment la bande d), une modélisation basée sur des données expérimentales de la constante diélectrique a été proposée. Elle utilise la fonction perte d'énergie optique $\text{Im}[-1/\varepsilon(0, \omega)]$, déduite de mesures optiques [HAN-91]. La disponibilité de nombreuses données optiques pour $\varepsilon(0, \omega)$, dont notamment celles assignées dans la référence [HAN -91], constitue un grand avantage pour cette méthode. Le modèle le plus populaire reste celui de Penn [PEN-86] utilisant une méthode d'extrapolation, dans le plan (q, ω) , de la fonction perte d'énergie optique $\text{Im}[-1/\varepsilon(0, \omega)]$ pour obtenir la fonction perte d'énergie $\text{Im}[-1/\varepsilon(q, \omega)]$.

L'extrapolation, basée sur la constante diélectrique de Lindhard notée $\varepsilon_L(q, \omega)$, s'effectue de la manière suivante :

$$\text{Im}\left[-\frac{1}{\varepsilon(q, \omega)}\right] = \int_0^\infty \text{Im}\left[-\frac{1}{\varepsilon_L(q, \omega)}\right] \cdot \frac{2}{\pi \cdot \omega} \text{Im}\left[-\frac{1}{\varepsilon(0, \omega)}\right] \cdot d\omega. \quad (\text{I-31})$$

Ce modèle a été appliqué au calcul du libre parcours et du pouvoir d'arrêt de nombreux métaux de transition notamment Cu, Ag, et Au.

Ashley [ASH-90] a aussi proposé une méthode d'extrapolation qui étend la fonction de perte d'énergie optique $\text{Im}[-1/\varepsilon(0, \omega)]$ au plan (q, ω) . Ce modèle, appelé modèle des données optiques (*Data Optic Model* en anglais), n'utilise pas une autre constante diélectrique comme dans le modèle de Penn, il ne dépend que des données de pertes optiques :

$$\text{Im}\left[-\frac{1}{\varepsilon(q, \omega)}\right] = \int_0^\infty d\omega' \left(\frac{\omega'}{\omega}\right) \cdot \text{Im}\left[-\frac{1}{\varepsilon(\omega')}\right] \cdot \delta\left(\omega - \omega' - \frac{\hbar}{2m} q^2\right), \quad (\text{I-32})$$

où δ est la fonction de Dirac. Le modèle d'Ashley s'applique en théorie à tout matériau à condition de pouvoir déterminer expérimentalement sa fonction perte d'énergie $\text{Im}[-1/\varepsilon(0, \omega)]$. Khur et Fitting [KUH-99], ont appliqué avec succès ce modèle à différents matériaux tel que Al, Be, Ag, SiO₂ ou encore le carbone amorphe (voir Figure I-13).

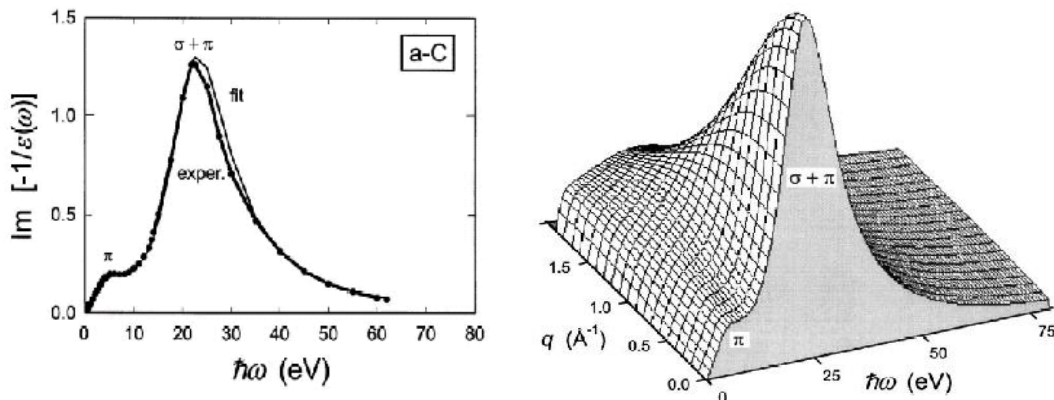


Figure I-13 : À gauche est représentée la fonction de perte optique $\text{Im}[-1/\varepsilon(\omega)]$ du carbone amorphe mesuré par Arakawa et co. [ARA-85]. À droite est représentée la fonction diélectrique $\text{Im}[-1/\varepsilon(\omega)]$ du carbone amorphe qui a été étendue par Khur et Fitting [KUH-99] au plan (q, ω) à l'aide de la méthode d'Ashley utilisant la fonction de perte optique.

I.2.3.2. Interaction électron-plasmon

Nous avons vu précédemment (section I.2.3.1.2.2.1) qu'en plus des excitations individuelles, les électrons peuvent exciter des oscillations collectives des électrons de conduction ou de valence. Ces oscillations concernent un plasma d'électrons et la valeur du quantum d'énergie transférée est appelé plasmon. Les oscillations collectives peuvent être aussi bien volumiques que surfaciques. On distingue les plasmons de surface et ceux de volume. Nous allons donner ici les grandes lignes théoriques. Les théories sont souvent élaborées en considérant une variation longitudinale de la densité de charge, du gaz volumique ou à la surface du matériau, produite par les oscillations. L'influence de l'interface matériau-vide sur le plasmon de volume est également abordée.

I.2.3.2.1. Interaction électron-plasmon de volume

I.2.3.2.1.1. Représentation du processus

Une vue simple de l'excitation collective des électrons de valence consisterait à considérer que, lorsqu'un électron incident pénètre dans le solide, il crée une perturbation qui déplace le nuage électronique de valence par rapport aux cœurs ioniques. Les électrons de valence sont alors rappelés vers leur position d'équilibre par attraction coulombienne et une oscillation collective du nuage électronique apparaît. La fréquence de cette oscillation dans le volume du solide dépend essentiellement de la densité des électrons de valence et est appelé fréquence propre. Contrairement à une excitation par rayonnement électromagnétique, l'excitation collective volumique est longitudinale car l'induction et le champ électrique créés par l'électron incident sont parallèles à la direction de propagation.

Le schéma donné sur la Figure I-14 représente l'excitation d'un plasmon de volume d'énergie $\hbar\omega_p$ et de quantité de mouvement $\hbar\mathbf{q}$ par un électron incident d'énergie E_0 et de vecteur d'onde \mathbf{k}_0 . Après excitation d'un plasmon, l'électron incident subit une déviation d'angle θ par rapport à sa direction initiale. Le plasmon de volume créé va se désexciter à travers un électron du plasma de vecteur d'onde initial \mathbf{k}_i qui va recevoir alors l'énergie $\hbar\omega_p$ et la quantité de mouvement $\hbar\mathbf{q}$ cédées par ce plasmon.

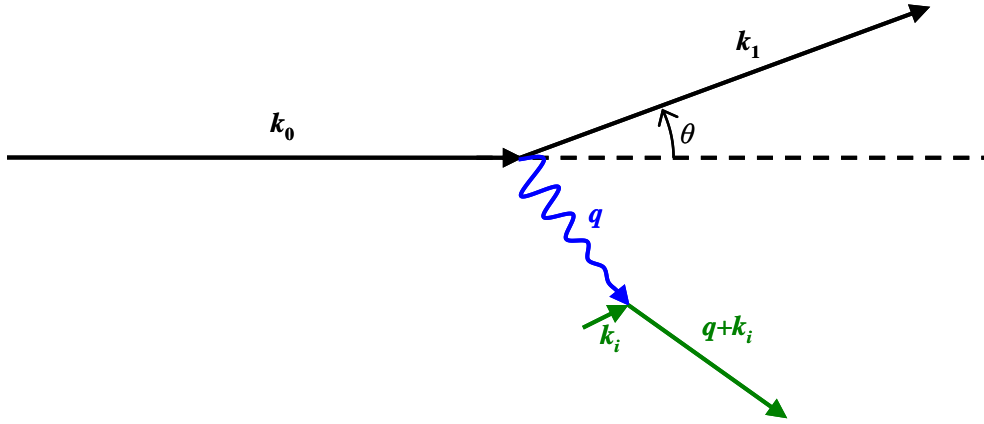


Figure I-14 : Schéma de l'excitation d'un plasmon de volume par un électron incident et de sa désexcitation à travers un électron du plasma.

I.2.3.2.1.2. Moment transféré et libre parcours différentiel

L'électron en mouvement dans un plasma d'électrons libres infini engendre une déformation locale de la densité électronique. Cette variation génère un champ électrique régi par l'équation de Poisson. Ce champ agit comme une force de rappel sur les électrons du plasma. Ils oscillent tous à la même fréquence $\omega_p(q)$ définie par une relation de dispersion :

$$\omega_p^2(q) = \omega_{p,0}^2 + q^2 \cdot \overline{v^2}, \quad (\text{I-33})$$

où q est le vecteur d'onde du plasmon, $\overline{v^2}$ la moyenne quadratique de la vitesse des électrons du plasma. Le terme propre, $\omega_{p,0}$, est la fréquence de Langmuir et est défini de la manière suivante :

$$\omega_{p,0}^2 = \frac{Ne^2}{m \cdot \epsilon_0}, \quad (\text{I-34})$$

avec N la densité d'électrons libres. Dans le cas d'un gaz de Fermi, c.-à-d. d'électrons libres, $\overline{v^2}$ devient $3 \cdot v_f^2 / 5$ où v_f est la vitesse de Fermi. Il s'agit de la vitesse des électrons situés au niveau de Fermi. L'électron incident va transférer une partie de son énergie et de sa quantité de mouvement au plasma d'électrons lors de l'excitation de cette onde plasma.

Par application des lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, la valeur de la quantité de mouvement transférée, \mathbf{q} , peut s'exprimer en fonction de l'angle de déviation et de l'énergie de l'électron incident :

$$q^2 = 2k_0^2 \cdot \left(1 - \theta_E - \sqrt{1 - 2 \cdot \theta_E} \cdot \cos \theta\right), \quad (\text{I-35})$$

où $\theta_E = \hbar\omega/(2E_0)$ ou $\frac{\gamma \cdot \hbar\omega}{(\gamma^2 - 1)mc^2}$ dans le cas relativiste.

Dans le cas où q est petit devant k_0 , l'expression (I-35) devient alors :

$$q^2 = k_0^2 \cdot (\theta_E^2 + \theta^2). \quad (\text{I-36})$$

Il existe une limite supérieure q_c du vecteur d'onde \mathbf{q} d'existence du plasmon de volume. Au-delà de cette valeur, la notion d'oscillation collective perd sa signification. Ce vecteur d'onde q_c est défini [RAE-65] de la manière suivante :

$$q_c \cong \frac{\hbar\omega_{p,0}}{2E_f} \cdot k_f, \quad (\text{I-37})$$

où E_f et k_f sont respectivement l'énergie et le vecteur d'onde de Fermi. Cette limite d'existence du plasmon définit une limite supérieure à l'énergie et la quantité de mouvement que peut transférer l'électron incident lors de l'excitation d'un plasmon de volume.

En tenant compte de l'équation (I-36), Ferrell [FER-56] a exprimé l'inverse du libre parcours moyen différentiel pour l'excitation d'un plasmon de volume par un électron incident :

$$\frac{d\lambda^{-1}}{d\Omega} = \frac{1}{2\pi \cdot a_0} \cdot \frac{m \cdot \hbar\omega}{(\hbar q)^2} = \frac{1}{2\pi \cdot a_0} \cdot \frac{\theta_E}{\theta_E^2 + \theta^2}. \quad (\text{I-38})$$

Cette expression est obtenue dans le cas d'un plasma de gaz d'électrons libres et ne décrit que l'excitation du plasmon de volume. En revanche l'approche du modèle diélectrique que nous allons exposer ci-dessous permettra, en plus, de tenir compte de l'excitation d'un électron qui résulte de l'amortissement du plasmon de volume.

I.2.3.2.1.3. Formalisme diélectrique

Ce formalisme, dans lequel intervient la fonction diélectrique, fait appel bien évidemment aux différents modèles décrivant cette fonction (section I.2.3.1.2.2) ainsi que la méthode d'extrapolation des données optiques (section I.2.3.1.2.3). En utilisant la relation (I-23), l'inverse du libre parcours moyen de l'interaction d'un électron incident d'énergie E_0 avec un plasmon de volume d'énergie $\hbar\omega_p(q)$ est donné par la relation suivante :

$$\lambda^{-1} = \frac{m \cdot e^2}{4\pi^2 \varepsilon_0 \cdot \hbar \cdot E_0} \cdot \oint_{\omega=\omega_p(q)} \frac{1}{q} \cdot \frac{1}{|\partial \varepsilon_1(q, \omega) / \partial q|} \cdot d\omega, \quad (\text{I-39})$$

où $\varepsilon_1(q, \omega)$ est la partie réelle de la constante diélectrique. L'intégration s'effectue le long de la « ligne de plasmon » de volume dans l'espace (q, ω) définie par la relation de dispersion du plasmon de volume donnée par l'expression (I-33). Cette ligne de plasmon de volume, est représentée sur la Figure I-15. La zone hachurée sur la figure représente le continuum des états de quasi-particules « électron-trou ». Pour $q < q_c$, le plasmon est une excitation élémentaire bien définie avec une durée de vie infinie. Il ne peut pas se désintégrer en quasi-particules « électron-trou » car les conditions de conservation d'énergie et du moment ne sont pas satisfaites dans cette zone (la courbe de dispersion du plasmon ne coupe pas le continuum des états), mais pour $q > q_c$, le plasmon perd la notion d'excitation élémentaire car il est noyé dans le continuum des états des quasi-particules.

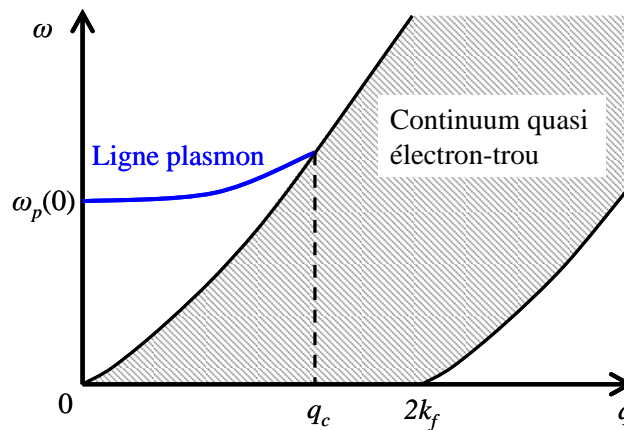


Figure I-15 : Ligne de plasmon de volume (courbe pleine). q_c est le vecteur d'onde de coupure et est situé au croisement entre la courbe de dispersion du plasmon de volume et le continuum des états de quasi-particules « électron-trou ».

Concernant l'énergie du plasmon de volume pour $q = 0$, il est important de noter que dans le modèle diélectrique, la fréquence du plasma $\omega_p(0)$ est obtenue pour $\varepsilon(0,\omega) = 0$. Elle s'exprime sous la forme $\omega_p(0) = \omega_1 + i \omega_2$. Le terme ω_1 correspond à la fréquence plasma et ω_2 est un terme d'amortissement. Ce dernier décrit l'influence de la structure de bande du matériau sur l'oscillation du plasma. À l'exception du cas où l'amortissement est négligeable (c.-à-d. ω_2 qui tend vers zéro et $\omega_1 = \omega_{p,0}$), la fréquence $\omega_p(0)$ est généralement différente de la fréquence de Langmuir (expression I-30). Cette différence est relativement faible dans le cas de l'aluminium où $\omega_{p,0}$ donne une énergie de plasmon de volume de 15,7 eV, tandis que $\omega_p(0)$ donne 15 eV. Dans le cas de l'argent, la différence est significative, l'énergie du plasmon avec $\omega_{p,0}$ est de 9.2 eV et celle obtenue avec $\omega_p(0)$ est de 3,8 eV.

I.2.3.2.2. Interaction électron-plasmon à la surface

Les modèles traités précédemment sont développés dans le cas d'un matériau considéré comme infini. La discontinuité du matériau se traduit par une modification de la densité électronique à proximité de la surface et donc du potentiel électrique dans le matériau. Ritchie [RIT-57] a montré que l'introduction de conditions aux limites, qui traduisent la présence d'une interface matériau-vide, dans le hamiltonien de l'interaction électron-gaz de Fermi entraîne l'apparition de deux termes supplémentaires. Le premier terme est interprété comme une atténuation des pertes à la fréquence plasma ω_p , cette atténuation est communément appelée « effet *Begrenzung* » [WER-03]. Le deuxième terme traduit des pertes additionnelles à la fréquence $\omega = \omega_p / \sqrt{2}$. Ces pertes additionnelles sont interprétées comme l'excitation d'une oscillation du plasma dans le plan de la surface. Nous allons d'abord traité l'interaction de l'électron incident avec le plasmon de surface à la surface. Ensuite, nous traiterons l'excitation du plasmon de surface dans le volume ainsi que la modification de l'excitation du plasmon de volume à la surface.

I.2.3.2.2.1. Excitations collectives de surface (interface)

I.2.3.2.2.1.1. Fréquence propre du plasmon de surface

Avec la présence d'une interface, l'onde de la densité de charge à la surface est traitée dans un milieu semi-infini. Cette onde s'exprime sous la forme suivante :

$$\rho_0 \exp[i(K_x x + K_y y) - i\omega_s t] \cdot \delta(z), \quad (\text{I-40})$$

avec (K_x, K_y) qui sont les composantes dans le plan de la surface du vecteur d'onde \mathbf{K} de l'onde de surface. z est la coordonnée normale à la surface. $\delta(z)$ est une fonction de Dirac qui exprime la concentration de la charge au niveau de la surface ($z = 0$). Cette onde de surface est couplée avec un champ électrique E dont la composante en z décroît exponentiellement des deux côtés de la surface (voir Figure I-16):

$$E_z = E_z(0) \cdot \exp(-K \cdot |z|). \quad (\text{I-41})$$

L'interface à $z = 0$ sépare un matériau, avec une constante diélectrique $\varepsilon^{(2)}$, d'un milieu diélectrique $\varepsilon^{(1)}$. La continuité de la composante normale du déplacement électrique D à la limite $z = 0$ donne, en appliquant les équations de Maxwell (pour plus de détail le lecteur pourra se référer à plusieurs ouvrages de référence [RAE-88, SAR-10, SCH-08]) :

$$\varepsilon^{(1)} = -\varepsilon^{(2)}. \quad (\text{I-42})$$

Dans le cas d'un cristal qui se comporte comme un plasma d'électrons libres, c.-à-d. $\varepsilon^{(2)} = 1 - \omega_p^2 / \omega^2$, et où la constante diélectrique du milieu 1 est réelle et constante, l'expression (I-38) permet d'obtenir la fréquence de l'oscillation de surface :

$$\omega_s = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + \varepsilon^{(1)}}}. \quad (\text{I-43})$$

Dans le cas où le matériau présente une interface avec le vide ($\varepsilon^{(1)} = 1$), la fréquence devient :

$$\omega_s = \omega_p / \sqrt{2}. \quad (\text{I-44})$$

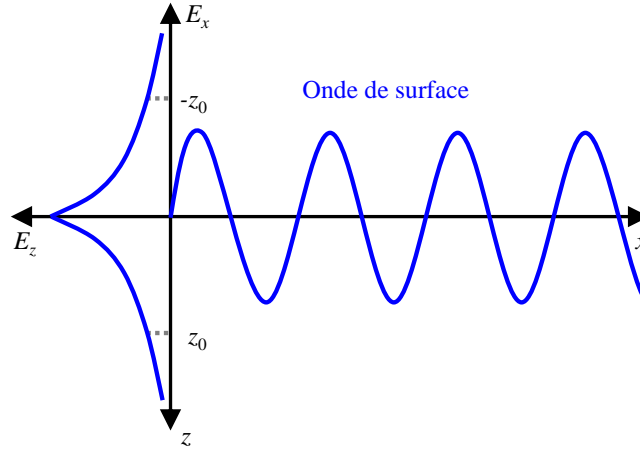


Figure I-16 : Schéma des composantes en x et en z du champ électrique de l'onde de surface.

1.2.3.2.2.1.2. Probabilité différentielle d'excitation

Un électron d'énergie E_0 qui traverse une interface peut exciter une oscillation de surface par interaction coulombienne. Il perd l'énergie $\hbar\omega_s$ et est défléchi d'un angle θ (voir Figure I-17). Le moment transféré au plasma est :

$$\hbar\vec{q} = \hbar(\vec{k}_0 - \vec{k}_1). \quad (\text{I-45})$$

où \mathbf{k}_0 et \mathbf{k}_1 sont respectivement le vecteur d'onde de l'électron incident et celui de l'électron après l'excitation du plasmon de surface.

La projection de ce moment sur la surface donne le moment de l'onde du plasma de surface, $q_{//} = K$. Contrairement au cas de l'interaction d'un électron avec un plasmon de volume, l'interaction avec un plasmon de surface présente une forte dépendance vis-à-vis de l'angle d'incidence de cet électron à la surface du matériau.

Dans le cas où q est petit devant \mathbf{k}_0 (et donc θ faible), Stern et Ferrell [STE-60] ont proposé, pour la probabilité différentielle d'excitation de l'onde de surface, l'expression suivante :

$$\frac{dP}{d\Omega_\theta} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{e^2}{\pi\hbar v_0} \cdot \frac{\theta \cdot \theta_E}{(\theta^2 + \theta_E^2)^2} \cdot \sqrt{\frac{1 + \theta_E^2/\theta^2}{\cos^2 \alpha} - \left(\tan \alpha \cdot \cos \psi + \frac{\theta_E}{\theta} \right)^2}. \quad (\text{I-46})$$

ϵ_0 est la permittivité du vide, Ω_θ l'angle solide de déflexion, θ l'angle de la déflexion subie par l'électron incident suite à l'interaction, v_0 la vitesse de l'électron incident, α l'angle

d'incidence de l'électron par rapport à la normale à la surface, ψ l'angle azimutal de l'électron incident dans le plan d'observation, et $\theta_E = \hbar\omega_s/(2E_0)$. La Figure I-17 représente cette interaction pour ψ égal à 0° (cas **a**) et à 180° (cas **b**). Cette dépendance angulaire traduit une dissymétrie de l'interaction.

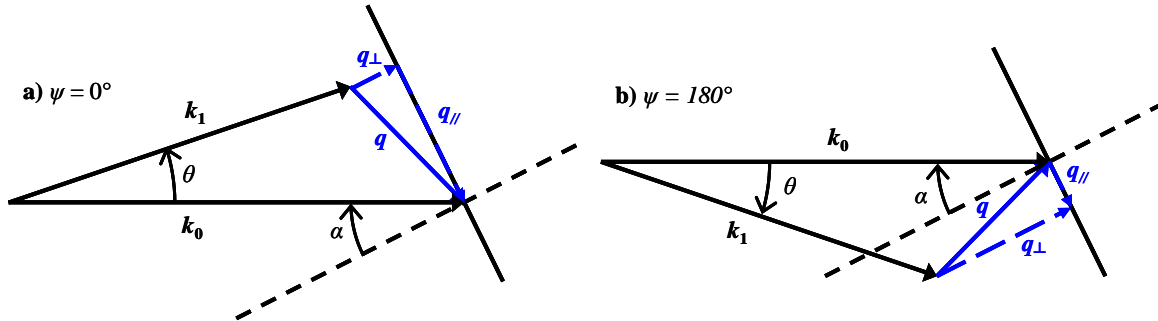


Figure I-17 : Schéma de la conservation du moment transféré de l'électron incident pour deux angles azimutaux

L'expression (I-46) est déterminée dans le cas d'un gaz d'électron libres et ne décrit que l'excitation du plasmon de surface. Comme pour l'interaction avec un plasmon de volume, le modèle diélectrique permet de prendre également en compte l'excitation d'un électron par l'amortissement du plasmon de surface. L'application de ce modèle suivant la démarche de Raether [RAE-80] donne une expression de la probabilité différentielle d'excitation d'un plasmon de surface avec une fonction de perte d'énergie modifiée :

$$\frac{d^2 P}{d(\hbar\omega) \cdot d\Omega} = \frac{2}{\pi^2 \cdot a_0 \cdot E_0} \cdot \frac{k_0^2 \cdot |q_{//}|}{q^4} \cdot \text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon(q, \omega) + 1} \right], \quad (\text{I-47})$$

où a_0 est le rayon de Bohr.

I.2.3.2.2.2. Excitation du plasmon de surface dans le volume et effet Begrenzung : modélisation de la région de surface effective

Dans la section I.2.3.2.2.1.1, nous avons vu qu'il existe une région autour de la surface appelée « surface effective » où l'excitation du plasmon est possible. Cette surface effective qui a été mise en évidence par Ritchie [RIT-57] a fait l'objet de nombreuses modélisations [NUN-80, TUG-94, WAN-96, PAU-09], tant au niveau de la détermination des limites de cette région qu'au niveau de son influence sur la probabilité d'interaction avec un plasmon de

volume ou de surface. Ritchie a montré que le champ électrostatique du plasmon de surface s'étend dans le solide jusqu'à une profondeur :

$$z_{eff} = v_0 / \omega_s, \quad (\text{I-48})$$

où v_0 est la vitesse de l'électron incident. Dans cette région un couplage orthogonal entre les modes de volume et de surface entraîne une diminution de l'intensité de la probabilité d'excitation d'un plasmon de volume dans cette région. La Figure I-18 donne une représentation de la modification des probabilités d'excitations respectives du plasmon de volume et du plasmon de surface. On remarque que la probabilité d'exciter un plasmon de surface dans le vide à proximité de la surface est non-nulle [FEI-73].

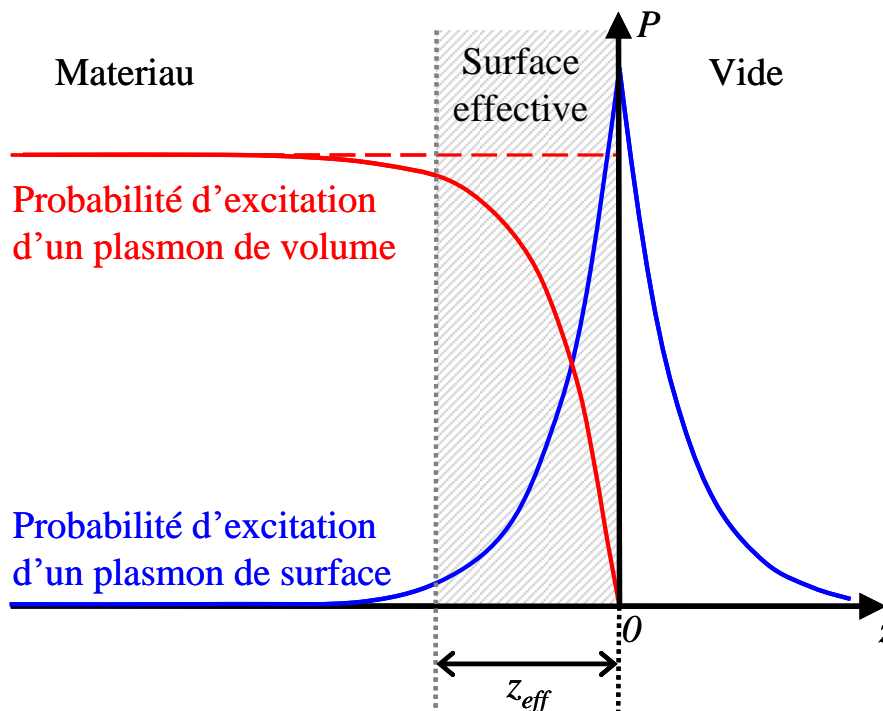


Figure I-18 : Représentation schématique de la probabilité d'excitation d'un plasmon de volume et d'un plasmon de surface en fonction de l'axe z normal à la surface. La courbe en trait discontinu représente la probabilité d'excitation du plasmon de volume sans prendre en compte l'effet *Begrenzung*.

La modélisation de cette région de surface effective peut se faire de différentes manières comme l'a souligné Pauly et Tougaard [PAU-09]. On distingue trois configurations principales de la surface effective:

- Configuration A : une surface effective plane. L'excitation du plasmon de surface ne s'effectue qu'à la surface et l'effet *Begrenzung* n'est pas pris en compte. Cette configuration a été notamment utilisée dans les travaux de Tung et co. [TUG-94]. La probabilité d'excitation du plasmon de surface en fonction de la profondeur z dans le matériau et pour une énergie E_0 est définie par : $P_{surf}(E_0, z) = P_{surf}(E_0) \cdot \delta(z)$, où $\delta(z)$ est la fonction de Dirac. Le terme $P_{surf}(E_0)$ représente la probabilité d'excitation d'un plasmon de surface à la surface à une énergie E_0 .

- Configuration B : une surface effective globale. L'excitation du plasmon de surface et l'effet *Begrenzung* se produisent dans la même surface effective. La largeur z_0 de la surface effective est calculée soit à l'aide de l'expression (I-48), soit en utilisant des données expérimentales de la spectroscopie REELS (*Reflection Electron Energy Loss Spectroscopy*) en suivant notamment la démarche de Pauly et Tougaard [PAU -09]. C'est cette configuration qui est représentée par la Figure I-18.

- Configuration C : une surface effective distincte pour l'excitation du plasmon de surface et l'effet *Begrenzung*. La largeur $z_{eff,s}$ de la surface effective pour l'excitation du plasmon de surface est fonction de la fréquence ω_s . Tandis que la largeur $z_{eff,p}$ de la surface effective pour l'effet *Begrenzung* est fonction de la fréquence ω_p . Wang et co. [WAN-96] considèrent l'expression (I-48) pour l'excitation du plasmon de surface. Pour l'excitation du plasmon de volume, ils substituent ω_p à ω_s dans l'expression (I-48) tel que $z_{eff,p} = v_0/\omega_p$. Ils proposent également une modification de la probabilité d'excitation du plasmon de volume afin de prendre en compte la modification de la probabilité d'interaction en fonction de la profondeur z dans le matériau : $P_{vol}(E_0, z) = P_{vol}(E_0) \cdot [1 - \exp(-z/z_{eff,p})]$. Le terme $P_{vol}(E_0)$ représente la probabilité d'excitation d'un plasmon de volume dans un volume infini. Une autre expression des largeurs de surfaces effectives $z_{eff,s}$ et $z_{eff,p}$ a été proposée par Núñez et co. [NUN-80] avec $z_{eff,s} = v_0/(2 \cdot \omega_s)$ et $z_{eff,p} = v_0/(2 \cdot \omega_p)$.

I.2.3.2.3. Interaction électron-phonon

I.2.3.2.3.1. Vibrations et courbes de dispersion :

L'interaction d'un électron avec un phonon décrit l'interaction d'un électron avec l'oscillation collective des atomes du matériau. Les phonons sont la représentation quantique des modes normaux de vibrations du réseau cristallin du matériau. On peut distinguer deux grands types de dispersion : les phonons optiques, associés à des vibrations des atomes en opposition de phase, et les phonons acoustiques, associés à des vibrations en phase. De plus, lorsque l'on rajoute un défaut dans le cristal, on peut également observer l'apparition de modes localisés, pour lesquels seul le défaut vibre et (dans une moindre mesure) ses plus proches voisins. La Figure I-19 représente schématiquement ces différents modes de vibration.

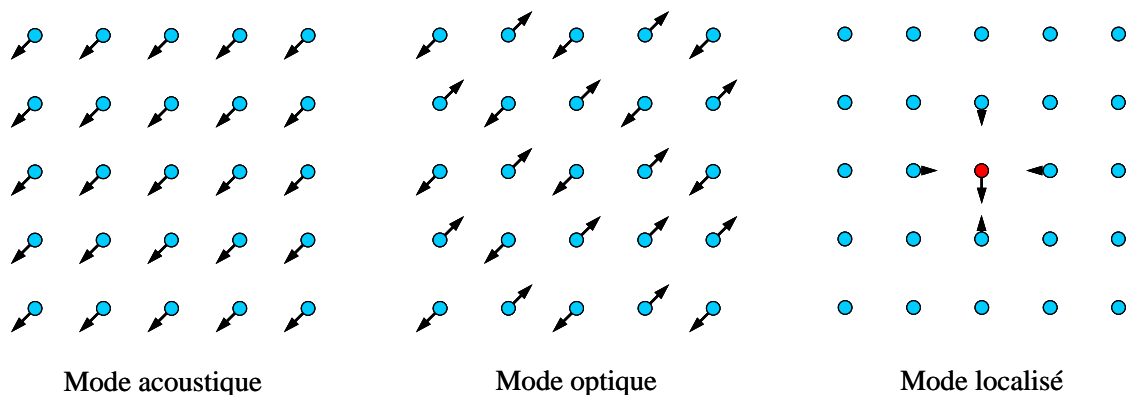


Figure I-19 : Différents modes possibles de vibration

La relation de dispersion des phonons présente deux formes différentes selon que la maille de Wigner-Seitz⁶ du réseau d'atomes contienne un ou plusieurs atomes. Cette relation ne présente qu'une branche acoustique dans le cas d'une maille qui ne contient qu'un atome, alors qu'elle présente deux branches (une acoustique et une optique) dans le cas d'une maille contenant deux atomes ou plus. La Figure I-20 donne les courbes de dispersion dans le cas d'un réseau à une dimension. On constate d'une part que la branche optique s'étend dans un domaine de fréquences plus élevé que celui relatif à la branche acoustique et qu'il existe une bande interdite de fréquences d'autre part.

⁶ La maille de Wigner-Seitz est une maille primaire du réseau cristallin, qui est construite comme la région de l'espace la plus proche d'un nœud du réseau que de n'importe quel autre nœud.

Dans le cas d'un réseau tridimensionnel, une branche comporte trois courbes : une dite longitudinale et deux dites transversales. Ainsi dans un réseau tridimensionnel avec deux atomes ou plus dans la maille de Wigner-Seitz, il y aura une courbe acoustique longitudinale (LA), deux courbes acoustiques transversales (TA), une courbe optique longitudinale (LO) et deux courbes optiques transversales (TO). La Figure I-21 représente ces courbes de dispersion déterminées expérimentalement par Strauch et Dorner [STR-90] dans le cas du GaAs.

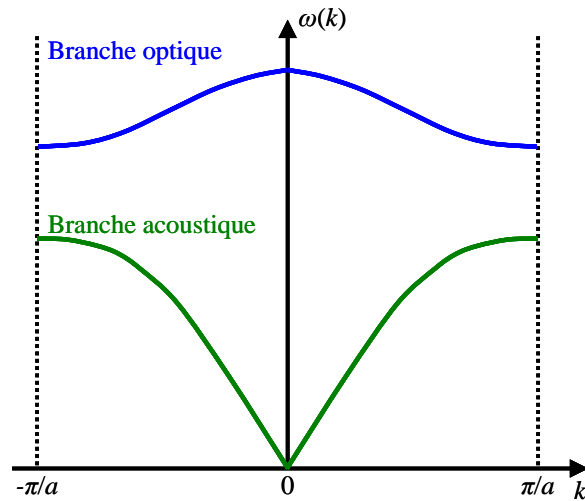


Figure I-20 : Loi de dispersion pour une chaîne linéaire avec une maille diatomique de longueur a . La branche acoustique est la même que l'unique branche acoustique dans le cas d'une maille monoatomique de même dimension.

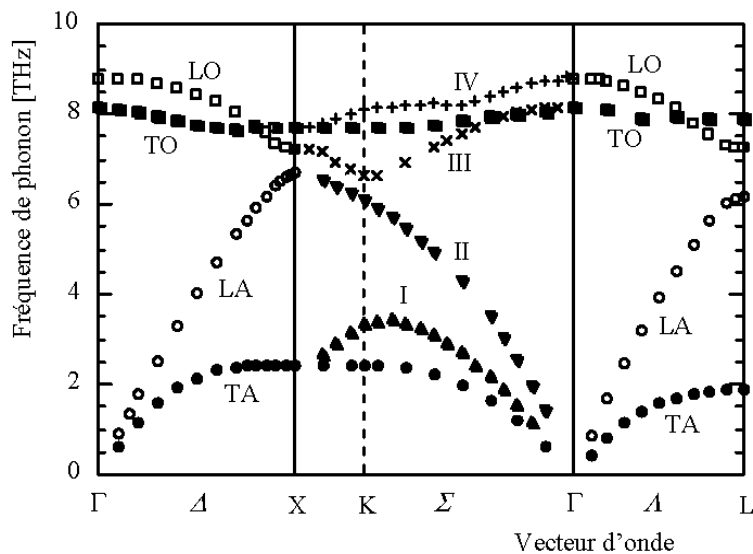


Figure I-21 : Courbes de dispersion expérimentales de GaAs suivant 3 directions cristallographiques, extraite des travaux de Strauch et Dorner [STR-90].

I.2.3.2.3.2. Processus d'interaction

Deux processus peuvent se produire lors de l'interaction de l'électron avec un phonon. L'électron va soit absorber un phonon (absorption ou annihilation), soit en exciter un (excitation ou création). Cette interaction repose sur la conservation de l'énergie et de l'impulsion du système formé par l'électron et le phonon. La Figure I-22 illustre ces deux processus.

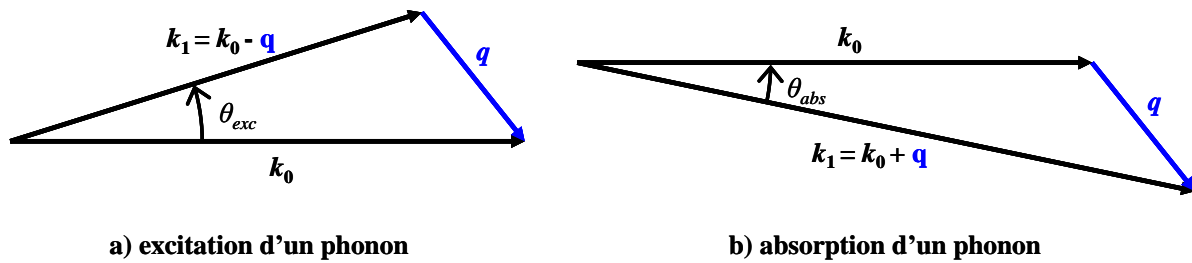


Figure I-22 : Schéma de la conservation du moment de l'interaction électron-phonon dans le cas : a) d'une excitation d'un phonon, b) d'une absorption d'un phonon.

I.2.3.2.3.3. Formalismes : probabilité d'interaction

Dans le traitement théorique de l'interaction d'un électron avec un phonon dans un solide, deux approximations sont souvent adoptées. La première considère que le mode longitudinal et les modes transverses sont distincts (c.-à-d. traitement séparé). La seconde approximation considère que les modes transverses sont négligeables pour les phonons optiques.

I.2.3.2.3.3.1. Interaction avec un phonon optique longitudinal

La collision d'un électron avec les phonons longitudinaux optiques a été décrite par Fröhlich en 1954 [FRÖ-54]. La probabilité d'interaction par unité de temps d'un électron d'énergie E_0 avec un phonon optique longitudinal d'énergie $\hbar\omega_{LO}$ est donnée par l'expression suivante :

$$P_{LO}^{\mp} = \frac{e^2}{4\pi \cdot \varepsilon_0 \cdot \hbar^2} \cdot \left(N_{LO} + \frac{1}{2} \mp \frac{1}{2} \right) \cdot \left(\frac{1}{\varepsilon_{\infty}} - \frac{1}{\varepsilon} \right) \cdot \sqrt{\frac{m^*}{2E_0}} \cdot \hbar\omega_{LO} \quad (I-49)$$

$$\times \text{Log} \left[\frac{1 + \sqrt{1 \pm \hbar\omega_{LO}/E_0}}{\mp 1 \pm \sqrt{1 \pm \hbar\omega_{LO}/E_0}} \right]$$

Les signes (\pm) se rapportent aux différents processus d'interaction, le signe (-) correspond au cas d'une absorption d'un phonon par l'électron et le signe (+) correspond au cas d'une excitation de phonon. Le terme N_{LO} décrit la distribution de Bose de la population de phonons LO. m^* est la masse effective de l'électron. Les termes ε et ε_{∞} représentent respectivement la constante diélectrique statique et optique⁷. Les valeurs de $\hbar\omega_{LO}$ sont de l'ordre du dixième d'eV.

1.2.3.2.3.3.2. Interaction avec un phonon acoustique

Les phonons acoustiques ont des énergies de l'ordre de quelques meV. Le transfert d'énergie est considéré comme négligeable lors de l'interaction d'un électron avec un phonon acoustique. Étant donné que l'énergie de ce phonon acoustique est négligeable, les cas d'absorption et d'excitation d'un phonon ne sont pas distingués. Cette interaction est considérée comme quasi-élastique et seul la déflexion qu'elle entraîne est considérée. Sparck et co. [SPA-81] ont proposé une expression de la probabilité d'interaction par unité de temps entre un électron d'énergie E_0 et un phonon acoustique. Cette expression a été modifiée par Bradford et Woolf [BRA-91] pour prendre en compte un écrantage coulombien :

$$P_{ac} = \frac{\pi \cdot k_B \cdot T}{\hbar \cdot c_s^2 \cdot \rho} \cdot E_{ac}^2 \cdot D(E_0) \cdot \frac{1}{1 + \frac{E_0}{A}}, \text{ pour } E_0 \leq \frac{E_{BZ}}{4} \quad (I-50)$$

$$P_{ac} = \frac{2\pi \cdot m^* \cdot (2N_{qBZ} + 1)}{\hbar \cdot \rho \cdot \hbar\omega_{BZ}} \cdot E_{ac}^2 \cdot D(E_0) \cdot 2E_0 \cdot \left(\frac{A}{E_0} \right)^2, \text{ pour } E_0 \geq E_{BZ} \quad (I-51)$$

$$\times \left[-\frac{E_0/A}{1 + E_0/A} + \text{Log} \left(1 + \frac{E_0}{A} \right) \right]$$

⁷ La constante diélectrique statique est la constante diélectrique à une fréquence suffisamment basse pour que l'équilibre soit maintenu alors que le champ électrique varie. La constante diélectrique optique est la constante diélectrique qui ne dépend que de la fréquence.

où k_B est la constantes de Boltzmann et T la température du matériau. E_{ac} représente le potentiel de déformation acoustique, A est le paramètre d'écrantage acoustique, ρ est la densité. Le terme E_{BZ} désigne l'énergie de l'électron à la limite de la zone de Brillouin. Les termes N_{qBZ} et $\hbar\omega_{BZ}$ représentent respectivement la population de phonon acoustique et leur énergie à la limite de la zone de Brillouin.

I.2.4. Franchissement de la surface

I.2.4.1. Énergie de la barrière de potentiel à la surface.

À l'intérieur d'un réseau cristallin parfait, le potentiel U , est périodique et est défini comme la somme des contributions des différentes mailles primitives de Wigner-Seitz en chaque point de ce réseau. À l'interface vide/cristal, ce potentiel périodique est perturbé par la discontinuité du réseau due au déplacement léger de la position des ions à l'interface par rapport à leur position idéale dans le réseau de Bravais. La distribution des charges est également modifiée et présente une dissymétrie par rapport au réseau de Bravais. Ces altérations, notamment de la distribution de charges, sont très dépendantes de l'état de la surface. Il est cependant possible de définir un potentiel macroscopique qui traduit ce potentiel à la surface U_0 . Dans le cas d'un métal, ce potentiel est donné par $U_0 = E_f + W$, avec E_f l'énergie de Fermi et W le travail de sortie. Pour un isolant, il est donné par $U_0 = \chi$, avec χ l'affinité électronique. Ces deux configurations sont représentées sur la Figure I-23.

Ainsi, tout électron émis a, par définition, franchi l'interface solide-vide, de même que tout électron incident a à franchir cette interface pour interagir avec le matériau. La traversée de la surface dans un sens comme dans un autre est conditionnée par la différence de potentiel U_0 , au niveau de l'interface matériau/vide. Selon le signe de cette différence de potentiel, l'énergie cinétique de l'électron va diminuer ou augmenter. Dans le cas où l'énergie initiale de l'électron est inférieure à U_0 , l'électron ne peut pas franchir la surface.

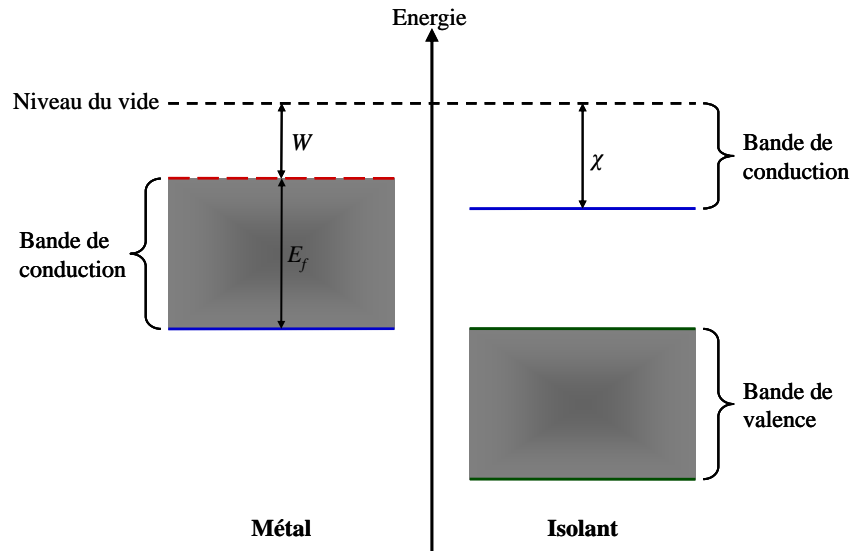


Figure I-23 : Schéma simplifié de la structure électronique d'un métal et d'un isolant.

I.2.4.2. Loi de réfraction/réflexion

Dans le cas du traitement classique du franchissement de la surface, la surface est assimilée à un plan, et la barrière de potentiel U_0 est considérée comme uniforme dans ce plan. Ce traitement consiste à comparer l'énergie de l'électron incident avec celle de la barrière. À l'interface, la traversée de la surface d'un électron dans le matériau d'énergie E_0 et d'angle d'incidence α_0 par rapport à la surface obéit à une loi de réfraction donnée par :

$$\sqrt{E_0 - U_0} \cdot \sin \alpha_1 = \sqrt{E_0} \cdot \sin \alpha_0. \quad (\text{I-52})$$

α_1 désigne l'angle de sortie de l'électron dans le vide. Il en découle un angle limite α_{lim} tel que :

$$\alpha_{lim} = \arcsin \left(\sqrt{\frac{E_0 - U_0}{E_0}} \right). \quad (\text{I-53})$$

Deux cas de figures peuvent se produire comme l'illustre la Figure I-24 :

- $\alpha_0 > \alpha_{lim}$, l'électron réfracté est émis dans le vide avec une énergie $E_1 = E_0 - U_0$.
- $\alpha_0 \leq \alpha_{lim}$, l'électron est réfléchi par la surface. Il poursuit sa trajectoire dans le matériau et son énergie est conservée.

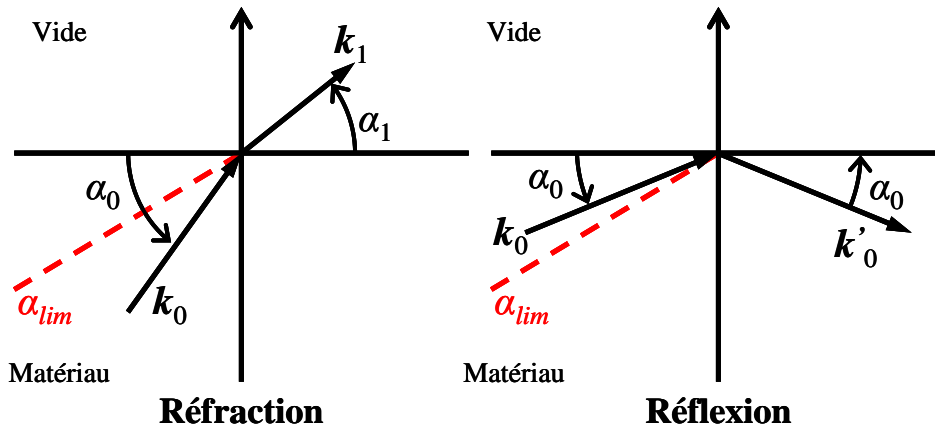


Figure I-24 : Représentation schématique de l'interaction de l'électron, d'énergie E_0 et de vecteur d'onde k_0 , avec l'interface matériau/vide.

I.2.4.3. Probabilité de transmission

Une approche complémentaire à basse énergie, est le traitement de la probabilité quantique de transmission de l'électron. En effet en mécanique quantique, contrairement au cas classique, une onde qui passe une barrière de potentiel a une probabilité non nulle d'être réfléchi même si son énergie est supérieure à la hauteur de cette barrière U_0 . Le traitement le plus simple est la résolution de l'équation de Schrödinger dans le cas d'une marche de potentiel carrée [COH-94] comme représenté sur la Figure I-25. L'expression de la probabilité de transmission T de l'onde incidente pour une énergie d'incidence E_m supérieure à U_0 et un angle d'incidence α_m est donnée par l'expression suivante :

$$T = \frac{4 \sqrt{1 - \frac{U_0}{E_m \cdot \cos \alpha_m}}}{\left(1 + \sqrt{1 - \frac{U_0}{E_m \cdot \cos \alpha_m}}\right)^2} \quad (\text{I-54})$$

Le choix d'un tel potentiel carré n'étant pas conforme à la réalité physique, il existe d'autres formes de potentiel plus élaborées qui tiennent compte notamment de la perturbation de la distribution de charges de la cible par l'électron incident. Une marche de potentiel exponentielle (voir Figure I-26) est souvent utilisée :

$$U(z) = \frac{U_0}{\exp(-z/a) + 1}, \quad (\text{I-55})$$

où a est un paramètre qui définit la constante de décroissance de l'exponentielle. Ce potentiel présente l'avantage d'avoir une solution analytique [GOL-61] qui permet d'avoir accès à la probabilité de réflexion, et donc de transmission :

$$T = 1 - R = 1 - \frac{\sinh^2 \left[\pi \cdot a \cdot (k_{0,z} - k_{1,z}) \right]}{\sinh^2 \left[\pi \cdot a \cdot (k_{0,z} + k_{1,z}) \right]}, \quad (\text{I-56})$$

où $k_{0,z}$ est le module de la composante normale à la surface du vecteur d'onde de l'électron dans le matériau \mathbf{k}_0 , et $k_{1,z}$ le module de la composante normale à la surface du vecteur d'onde de l'électron dans le vide \mathbf{k}_1 . Ces deux modules sont données par :

$$\begin{aligned} k_{0,z} &= k_0 \cdot \cos \alpha_0 \\ k_{1,z} &= k_1 \cdot \cos \alpha_1 \end{aligned} \quad (\text{I-57})$$

Il existe d'autres modèles, plus réalistes, appelés modèles de la marche image [BAR-40, SAC-50, CUT-58] qui prennent en compte l'effet de polarisation du métal quand l'électron s'approche de sa surface. En effet, l'électron en s'approchant du métal, crée une charge image positive et modifie la marche. Cette marche image (voir Figure I-27) ne dispose pas d'une solution analytique et engendre un traitement numérique complexe de l'équation de Schrödinger pour déterminer la réflectivité. Une des méthodes les plus puissantes pour résoudre cette équation dans ce cas reste la méthode dite « *propagation matrix method* » [LEV-03].

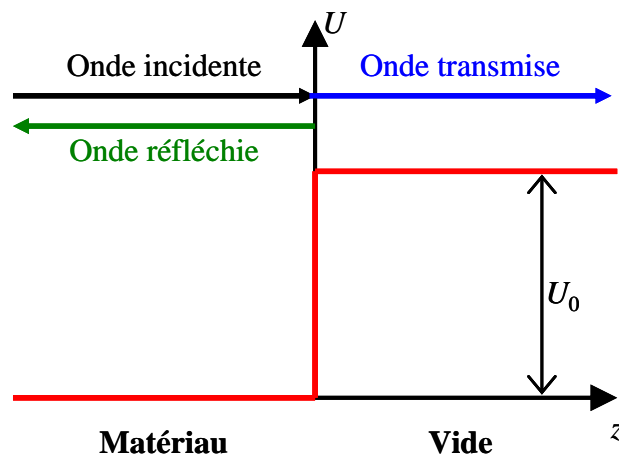


Figure I-25 : Schéma de l'interaction de l'électron avec une marche de potentiel carrée U_0 lorsque son énergie est supérieure à U_0 .

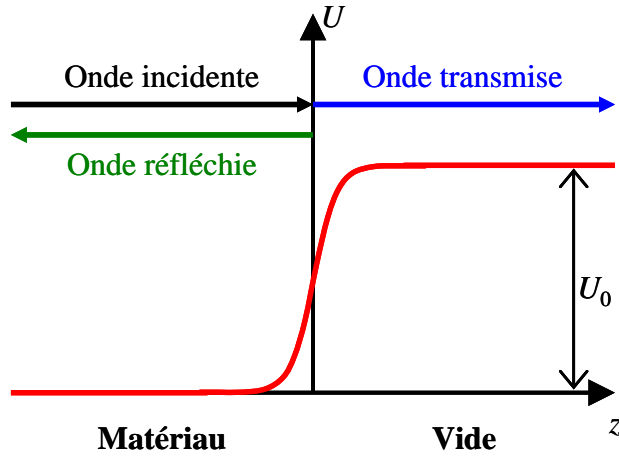


Figure I-26 : Schéma de l'interaction de l'électron avec une marche de potentiel exponentielle U_0 lorsque son énergie est supérieure à U_0 .

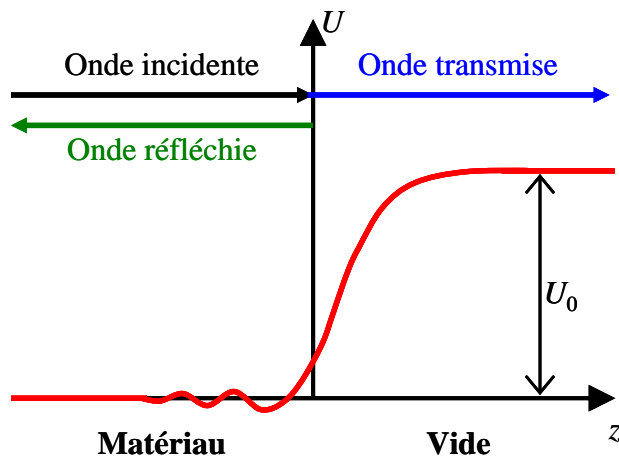


Figure I-27 : Schéma de l'interaction de l'électron avec une marche de potentiel de Bardeen [BAR-40] U_0 lorsque son énergie est supérieure à U_0 .

I.3. Aspects phénoménologiques

Le phénomène d'émission électronique désigne l'émission d'électrons par un matériau bombardé par un flux de particules et en particulier les électrons. À chaque électron émis correspondent une énergie et une direction d'émission. L'étude du phénomène d'émission électronique se fait principalement à travers trois grandeurs caractéristiques de la population des électrons émis :

- Le rendement d'émission qui représente le rapport entre la population d'électrons émis et la population d'électrons injectés.
- La distribution énergétique qui représente la population des électrons émis en fonction de leur énergie.
- La distribution angulaire qui représente la population des électrons émis en fonction de leur angle de diffusion.

I.3.1. Rendement d'émission

Par définition, le rendement d'émission électronique dit total, noté σ , est le rapport entre la population d'électrons émis et la population d'électrons injectés. Le rendement σ est le résultat de la contribution de trois populations d'électrons. La population d'électrons rétrodiffusés, correspondant au coefficient de rétrodiffusion η , la population d'électrons du matériau qui ont été excités et qui sont émis, donnant le rendement d'émission secondaire vraie δ , et enfin la population d'électrons incidents réfléchis par la surface, qui donne le coefficient de réflexion noté R . Le rendement total peut ainsi s'écrire :

$$\sigma = \eta + \delta + R. \quad (\text{I-58})$$

Cette écriture incluant le coefficient R reste valable dans le domaine des basses énergies car la population des électrons réfléchis est négligeable pour des énergies d'incidence supérieures à quelques dizaines d'eV.

I.3.1.1. Variation du rendement d'émission en fonction de l'énergie d'incidence

L'allure typique du rendement total, de rétrodiffusion et d'émission secondaire vraie en fonction de l'énergie d'incidence E_0 est représentée sur la Figure I-28. Le rendement d'émission secondaire vraie δ croît jusqu'à atteindre un maximum δ_m puis décroît lentement. Le rendement de rétrodiffusion η , dont les valeurs sont bien plus faibles que celles de δ (excepté aux basses énergies), présente une faible variation en fonction de l'énergie d'incidence. Le taux d'électrons réfléchis, également représenté sur la figure I-27, ne devient significatif qu'aux très basses énergies. La courbe $\sigma(E_0)$ a une allure principalement gouvernée par la variation du rendement d'émission secondaire vraie et présente deux points particuliers pour lesquels $\sigma = 1$ et dont les abscisses, E_{CI} et E_{CII} , sont appelés énergies critiques ou « *crossover* ».

La variation du rendement d'émission secondaire vraie est expliquée par une compétition entre le nombre d'électrons générés et la profondeur à laquelle ces électrons sont générés. L'augmentation de l'énergie primaire E_0 engendre une augmentation de la profondeur de pénétration maximale z_{\max} des électrons incidents selon une loi de la forme :

$$z_{\max} \approx C \cdot E_0^n \quad \text{(I-59)}$$

où C est une constante dépendante du matériau et $n \in [1,3,5/3]$ selon Kanaya et Kawakatsu [KAN-72]. En concomitance de cet accroissement de z_{\max} , l'augmentation de l'énergie d'incidence E_0 entraîne un accroissement du nombre d'électrons mis en mouvement dans le volume d'interaction. Ce nombre d'électrons N peut être évalué approximativement par une approche simple fondée sur la loi de perte constante [SEI-83] :

$$N = \frac{E_0}{\langle E \rangle} \quad \text{(I-60)}$$

où $\langle E \rangle$ est l'énergie moyenne nécessaire pour mettre en mouvement un électron du matériau. Ainsi dans un domaine d'énergie d'incidence où E_0 est inférieure à E_m (c.-à-d. abscisse donnant un rendement maximal), les N électrons sont mis en mouvement dans une profondeur faible et leur probabilité de sortie reste grande dans ce domaine d'énergie. Le rendement δ croît jusqu'à atteindre sa valeur maximale δ_m . En revanche, dans le domaine énergétique $E_0 \gg E_m$, N suit l'augmentation de E_0 mais les électrons secondaires sont générés dans un

volume croissant avec z_{\max} (ou E_0^n) et les seuls secondaires susceptibles de sortir proviennent essentiellement d'une couche superficielle d'épaisseur r (sensiblement égale à trois fois la longueur d'atténuation λ), bien inférieure à z_{\max} , ce qui entraîne une décroissance de δ de la forme E_0^{n-1} [CAZ-06].

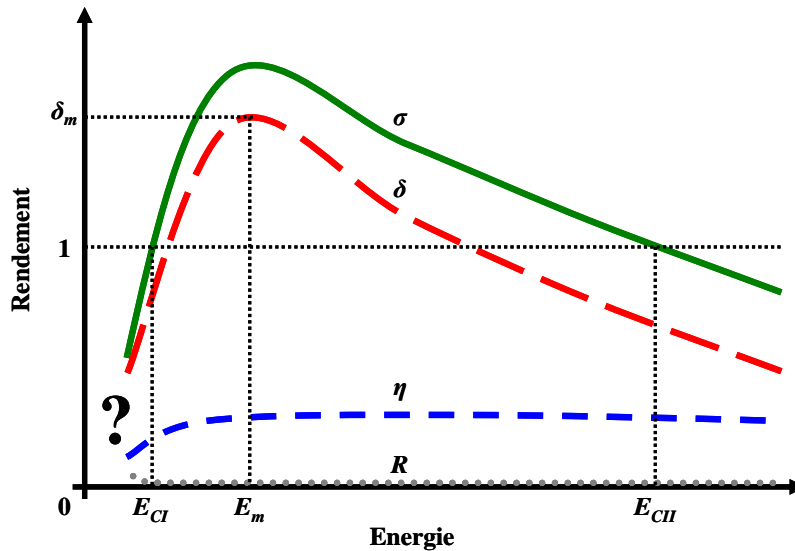


Figure I-28 : Tracé schématique du rendement d'émission électronique total σ et ses différentes contributions.

À très basse énergie, le comportement du rendement d'émission est mal connu. Des travaux dans ce domaine d'énergie apportent des réponses contradictoires avec un rendement total dont la valeur est comprise entre 0 et 1 quand E_0 tends vers zéro, [BRO-69] et [CIM-04]. L'objet de cette thèse est d'apporter des éléments de réponse sur le comportement du rendement dans cette gamme d'énergie.

I.3.1.2. Variation angulaire du rendement d'émission

L'allure classique de l'évolution du rendement, ici le rendement d'émission secondaire vraie δ , en fonction de l'angle d'incidence θ est illustré par les mesures effectuées par Shih et co. [SHI-97] sur une cible de molybdène représentés sur la Figure I-29. L'angle d'incidence θ est mesuré par rapport à la normale à la surface comme illustré dans l'encart de cette Figure I-29. En comparant la profondeur maximale de pénétration des électrons primaires, z_{\max} , à la profondeur maximale d'échappement des électrons secondaires, r , (définie à partir de la relation de la probabilité pour un électron secondaire généré à la profondeur z d'atteindre la

surface et d'être émis $P = 0,5 \cdot \exp(-z/\lambda)$ donnée par Lin et Joy [LIN-05] tel que $e^{-3} \sim 5\%$, donc sensiblement égale à trois fois la longueur d'atténuation λ), les évolutions de δ en fonction de E_0 et de l'angle Θ peuvent être qualitativement expliquées.

Dans l'intervalle énergétique, $E_0 \ll E_m$, pour lequel l'émission secondaire est limitée à la faible pénétration des électrons incidents (les électrons secondaires quittent l'échantillon sans atténuation) δ est insensible à l'angle d'incidence (topographie). Dans le domaine énergétique $E_0 \gg E_m$, l'accroissement de l'angle d'incidence, Θ , a essentiellement pour effet de réduire z_{\max} (comme $\sim z_{\max} \cos^p \Theta$ avec $1 < p < 1,5$) donc d'accroître le nombre de secondaires générés dans l'épaisseur utile r . Le résultat est une dépendance angulaire correspondant approximativement à $\delta(\Theta) \sim \delta(0)/\cos^p \Theta$.

La Figure I-30 représentant les volumes d'interactions où se déroulent les cascades électroniques illustre l'ensemble de ces considérations. À basse énergie, $E_0 \ll E_m$, le volume d'interaction ne varie pas, sa forme est indépendante de l'angle d'incidence. La quantité d'électrons qui peuvent être émis ne change pas, le rendement ne varie pas. Pour des énergies de l'ordre de E_m ou supérieure, le volume d'interaction change avec l'angle d'incidence du faisceau incident. Le volume se rapproche de la surface, cela augmente le nombre d'électrons qui peuvent être émis et donc le rendement. L'optimisation du nombre d'électrons secondaires générés se fait dans la partie centrale, $E_0 \sim E_m$ où leur atténuation est faible, ce qui explique également l'accroissement de E_m et de δ_m avec l'angle d'incidence Θ .

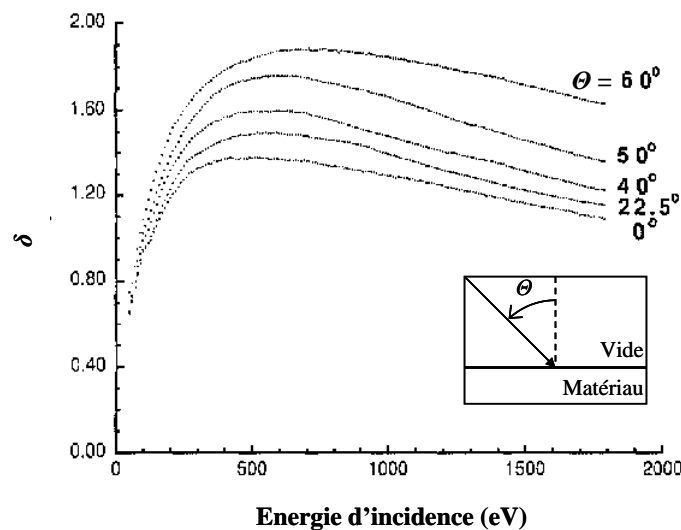


Figure I-29 : Rendement de démission secondaire vrai δ mesuré pour une cible de molybdène à incidence variable par Shih et co. [SHI-97].

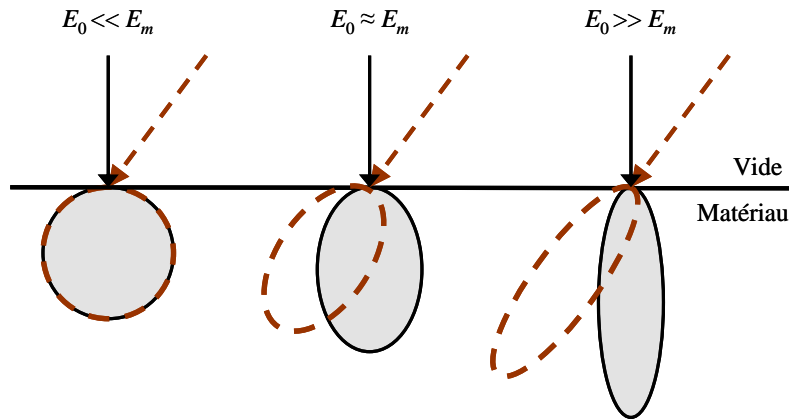


Figure I-30 : Schéma des volumes d'interactions aux incidences normale et oblique pour les trois domaines énergétiques indiqués.

I.3.2. Distribution énergétique

L'allure classique de la distribution énergétique $N(E)$ des électrons émis par le matériau soumis à un faisceau d'électrons, bien connue depuis les travaux de Harrower [HAR_56], est représentée sur la Figure I-31. Nous rappelons ci-dessous son interprétation en la divisant en trois domaines :

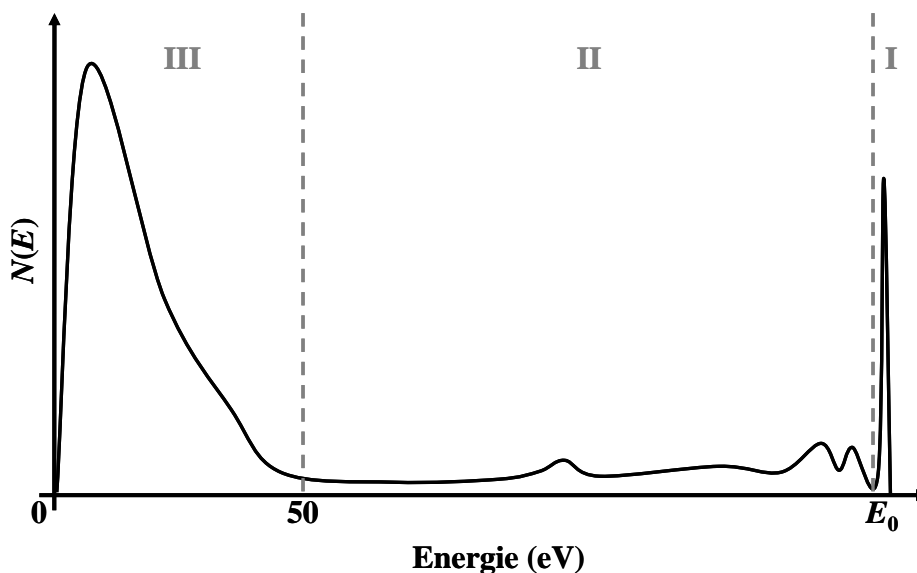


Figure I-31 : Forme générale de la distribution énergétique de l'ensemble des électrons émis par la cible sous irradiation électronique à une énergie E_0

- Le domaine I est caractérisé par un pic étroit à l'énergie E_0 des électrons primaires. C'est le domaine des électrons réfléchis par la surface, des électrons rétrodiffusés par le matériau qui ont subi des pertes d'énergie inférieures à la fraction d'eV. L'étude de la

diffraction des électrons lents (LEED) pour la détermination de la structure de surface s'effectue dans ce domaine.

- Le domaine **II** est constitué d'un fond continu correspondant aux électrons rétrodiffusés inélastiquement et d'une série de pics. Dans ce domaine, les pics peuvent être séparés en deux populations : les pics liés à l'énergie primaire E_0 et les pics indépendants de cette énergie primaire. La première population englobe les pics qui jouxtent le domaine I et ont une position fixe par rapport à ce dernier. Ils correspondent aux pertes caractéristiques subies par les électrons du faisceau primaire dans la cible par suite d'interactions soit individuelles (transitions interbandes), soit collectives (excitation des plasmons). La seconde population de pics situés dans une partie d'énergie plus faible par rapport à E_0 est caractéristique de la cible et de ses impuretés. Ce sont les pics Auger résultant d'une réorganisation non radiative des couches profondes des atomes de la cible suite à une excitation.
- Le domaine **III** est considéré comme celui des électrons secondaires vrais. Par convention la limite supérieure de ce domaine est fixée à 50 eV. En effet, bien que certains électrons secondaires puissent sortir de l'échantillon avec une énergie supérieure à 50 eV et que certains rétrodiffusés peuvent sortir avec une énergie inférieure à 50 eV, leur nombre est en revanche relativement faible et le seuil de 50 eV est donc un seuil raisonnablement correct pour distinguer les deux populations d'électrons émis par l'échantillon lorsque l'énergie d'incidence est très supérieure à 50 eV. Ce domaine peut également présenter des singularités en liaison avec la structure électronique du solide (dues aux plasmons de volume et de surface). Ces singularités ont été mises en évidence aussi bien par l'expérience [EVE-76, PIL-76] que par le calcul [QUI-62].

La distribution énergétique peut être décrite de manière analytique dans le cas des métaux, notamment par l'utilisation de l'expression établie par Chung et Everhart [CHU-77] :

$$\frac{dN(E, E_0)}{dE} = \frac{a \cdot (E - E_F - \varphi)}{(E - E_F)^4}, \quad \text{(I-61)}$$

où $N(E, E_0)$ est le nombre d'électrons émis ; E est l'énergie des électrons émis ; a est une constante de proportionnalité fonction du matériau ; E_0 est l'énergie du faisceau incident ; E_F

est l'énergie de Fermi et φ le travail de sortie. Henke et co. [HEN-79] ont apporté pour les isolants une légère modification à ce model par l'introduction de l'affinité électronique de l'isolant.

Pour les métaux, la distribution des secondaires vrais se présente sous la forme d'un pic dont la position du maximum se situe vers 2 eV et dont la largeur à mi-hauteur est généralement inférieure à 10 eV [SCH-72]. La largeur à mi-hauteur pour les isolants est plus faible que celle des métaux [DIE-60]. La Figure I-32 illustre ce propos en comparant, selon Bouchard et Carette [BOU-80], des distributions typiques d'un métal et d'un isolant. Il est à noter dans le cas des métaux que l'augmentation du travail de sortie entraîne un étalement du pic. Il provoque une diminution de l'intensité du pic et une augmentation de sa largeur à mi-hauteur [DIN-96].

Notons que le rendement d'émission secondaire « vraie » est déduit de l'expression (I-61) par l'intégration suivante :

$$\delta(E_0) = \int_{0\text{eV}}^{50\text{eV}} \frac{dN(E, E_0)}{dE} \cdot dE. \quad (\text{I-62})$$

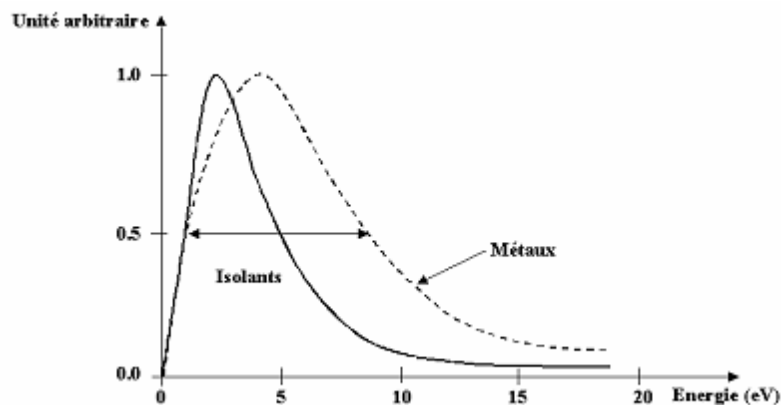


Figure I-32 : Distribution énergétique des électrons secondaires « vrais » des matériaux isolants et métalliques d'après [BOU-80].

I.3.3. Distribution angulaire

Le traitement de la distribution angulaire des électrons se fait généralement en séparant les électrons rétrodiffusés et les électrons secondaires vrais. Ces deux populations d'électrons présentent des lobes d'émissions ayant des formes différentes. Dans le cas de solides cristallins ces lobes sont caractéristiques des axes de symétrie du réseau de Bravais de ces solides [BUR-60].

L'émission angulaire dépend de la probabilité de transmission des électrons secondaires à l'interface matériau/vide faisant intervenir une loi de réfraction identique à celle donnée par l'expression (I-52):

$$\sqrt{E_S} \sin \beta = \sqrt{E_K} \sin \alpha . \quad (\text{I-63})$$

Avec E_K et E_S les énergies cinétiques respectivement de l'électron dans le vide et dans la cible. Les termes α et β sont respectivement les angles (par rapport à la normale) d'émission et d'incidence. Dans le cas d'un isolant $E_S = E_K + \chi$ et dans le cas d'un métal $E_S = E_K + E_f + W$. χ est l'affinité électronique de l'isolant, W le travail de sortie du métal et E_f son énergie de Fermi.

I.3.3.1. Distribution angulaire des électrons secondaires

La distribution angulaire des électrons secondaires présente une forme proche d'une distribution lambertienne, c.-à-d. uniforme, (voir Figure I-33). Seuls les électrons qui attaquent la surface avec un angle d'incidence inférieure à l'angle limite α_{lim} (expression (I-63)) peuvent être émis, comme indiqué sur la Figure I-33. Les électrons secondaires étant considérés comme de très faible énergie ($E \leq 50$ eV), cet angle limite peut être très contraignant et peut influencer sur la forme du lobe. La distribution angulaire des électrons secondaires présente une faible dépendance envers l'angle d'incidence du faisceau d'électrons primaires. L'écart par rapport à une distribution uniforme s'explique en partie par l'état de surface de la cible. Cette surface peut présenter des rugosités, des imperfections et des impuretés qui vont modifier l'angle de sortie de l'électron par rapport à une surface plane mais également la marche de potentiel de cette surface. La modification de cette dernière

entraîne la modification de la probabilité quantique de transmission de l'électron au passage de la surface [CAZ-06] et par conséquent celle de la distribution angulaire.

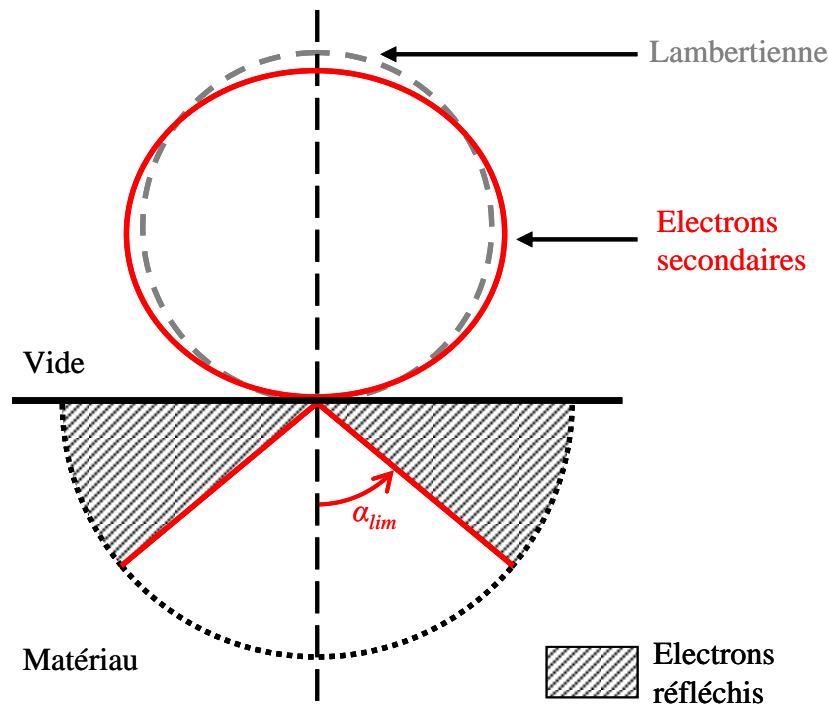


Figure I-33 : Représentation schématique de l'émission angulaire des électrons secondaires vrais. La courbe hachurée représente une distribution lambertienne, d'après [CAZ-11].

I.3.3.2. Distribution angulaire des électrons rétrodiffusés

La distribution angulaire des électrons rétrodiffusés présente la forme d'un lobe (voir Figure I-34). Seuls les électrons qui attaquent la surface avec un angle d'incidence inférieur à l'angle limite α_{lim} (expression **(I-63)**) peuvent être émis, comme indiqué sur la Figure I-34. Pour des énergies d'incidence très élevées, cet angle limite devient négligeable. Des travaux expérimentaux comme ceux de Berger et Niedrig [BER-99] ou ceux de Wagner et co. [WAG-05] montrent une forte dépendance de la forme du lobe d'émission vis-à-vis de l'angle d'incidence du faisceau d'électrons. Ainsi à incidence normale, l'orientation du lobe est dans la direction de la normale, tandis qu'à incidence oblique, le lobe présente une orientation directement lié à l'angle d'incidence du faisceau d'électrons avec, à haute énergie (\gg keV), un comportement spéculaire.

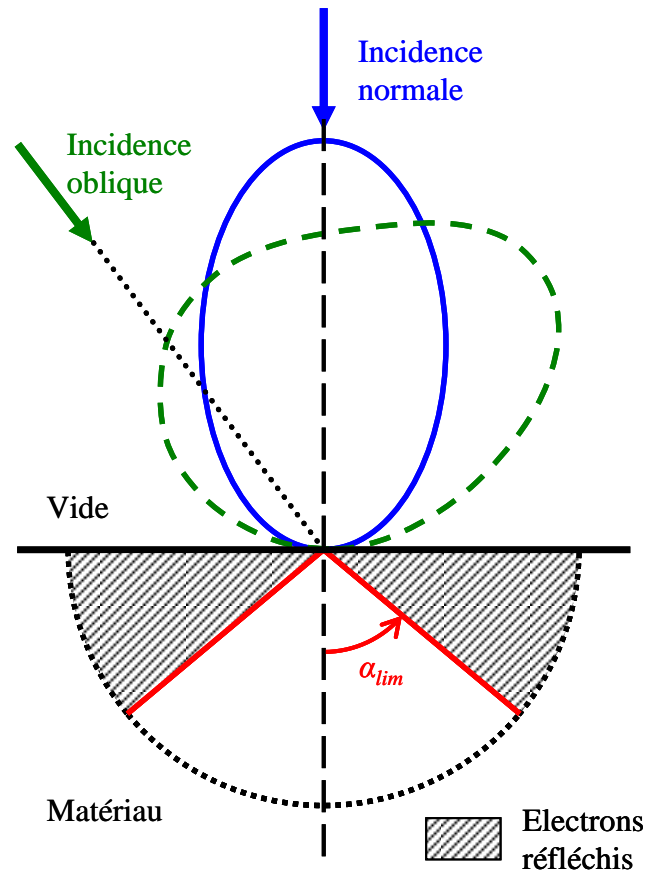


Figure I-34 : Représentation schématique de l'émission angulaire des électrons rétrodiffusés : en trait plein à incidence normale, en trait hachuré à incidence oblique, d'après [BER-99].

Bibliographie du chapitre

- [ARA-85] E. T. Arakawa, S. M. Dolfini, J. C. Ashley, M. W. Williams, « *Arc-evaporated carbon films: Optical properties and electron mean free paths* », Phys. Rev. B, **15**, (1985), pp.8097.
- [ASH-76] N. W. Ashcroft, N. D. Mermin, « *Solid State Physics* », Saunders College Publishing, (1976).
- [ASH-90] J. C. Ashley, « *Energy loss rate and inelastic mean free path of low-energy electrons and positrons in condensed matter* », J. Electr. Spectr. Rel. Phenom., **50**, (1990), pp.323.
- [BAR-40] J. Bardeen, « *The Image and Van der Waals Forces at a Metallic Surface* », Phys. Rev., **58**, (1940), pp.727.
- [BER-99] D. Berger, H. Niedrig, « *Complete Angular Distribution of Electrons Backscattered from Tilted Multicomponent Specimens* », Scanning, **21**, (1999), pp.187.
- [BET-30] H. A. Bethe, « *Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie* », Ann. Physik, **5**, (1930), pp.325.
- [BOH-53] D. Bohms, D. Pines, « *A Collective Description of Electron Interactions: III. Coulomb Interactions in a Degenerate Electron Gas* », Phys. Rev., **92**, (1953), pp.609.
- [BOU-80] C. Bouchard, J. D. Carette, « *The surface potential barrier in secondary emission from semiconductors* », Surf. Sci., **100**, (1980), pp.241.
- [BRA-91] J. N. Bradford, S. Woolf, « *Electron - acoustic phonon scattering in SiO₂ determined from a pseudo - potential for energies of $E \geq E_{BZ}$* », J. Appl. Phys., **70**, (1991), pp.490.
- [BRO-69] I. M. Bronshtein, B. S. Frajman, « *Secondary electron emission* » (en russe), Ed. Nauka, Moscow, (1969).
- [BUR-60] J. Burns, « *Angular Distribution of Secondary Electrons from (100) Faces of Copper and Nikel* », Phys. Rev., **119**, (1960), pp.1960.
- [CAZ-06] J. Cazaux, « *e⁻ Induced secondary electron emission yield of insulators and charging effects* », Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, **244**, (2006), pp.307.
- [CAZ-11] J. Cazaux, « *Calculated effects of work function changes on the dispersion of secondary electron emission data: Application for Al and Si and related elements* », J. Appl. Phys., **110**, (2011), pp.024906.
- [CHU-70] M. F. Chung, L. H. Jenkins, « *Auger electron energies of the outer Shell electrons* », Surf. Sci. **22**, (1970), pp. 479.
- [CHU-77] M.S. Chung, T.E. Everhart, « *Role of plasmon decay in secondary electron emission in the nearly-free-electron metals. Application to Aluminium* », Phys. Rev., **10**, (1977), pp.4699.
- [CIM-04] R. Cimino, I. R. Collins, M. A. Furman, M. Pivi, F. Ruggiero, G. Rumolo, F. Zimmermann, « *Can Low-Energy Electrons Affect High-Energy Physics Accelerators?* », Phys. Rev. Lett., **93**, (2004), pp.014801.

- [COH-94] C. Cohen-Tanoudji, B. Diu, F. Laloe, « *Mécanique quantique* », vol. **2**, Ed. Hermann, Paris (1994).
- [COS-35] D. Coster, R. De L. Kronig, « *New type of auger effect and its influence on the x-ray spectrum* », *Physica*, **2**, (1935), pp.13.
- [CUT -58] P. H. Cutler, J. J. Gibbons, « *Model for the Surface Potential Barrier and the Periodic Deviations in the Schottky Effect* », *Phys. Rev.*, **111**, (1958), pp.394.
- [CZY-90] Z. Czyzewski, D.O Mac Callum, A. Romig, D.C. Joy, « *Calculations of Mott scattering cross section* », *Journal of Applied Physics*, **68**, (1990), pp.3066.
- [DIE-60] W. Dietrich, H. Seiler, « *Energieverteilung von Elektronen, die durch Ionen und Elektronen in Durchstrahlung dünner Folien ausgelost werden* », *Z. Phys.*, **157**, (1960) pp.576.
- [DIN-96] Z. J. Ding, R. Shimizu, « *A Monte Carlo modeling of electron interaction with solids including cascade secondary electron production* », *Scanning*, **18**, (1996), pp.92.
- [DRO-97] D. Drouin, P. Hovington, R. Gauvin, « *CASINO: a new Monte Carlo calculation code in C language for electron beam interactions-Part II: tabulated values of the Mott cross section* », *Scanning*, **19**, (1997), pp.20.
- [EGE-11] R. F. Egerton, « *Electron Energy-Loss Spectroscopy in the Electron Microscope* », Springer-Verlag New York Inc., 3rd edition, (2011), pp.161.
- [EVE-76] T. E. Everhart, N. Saeki, R. Shimizu, T. Koshikawa, « *Measurement of structure in the energy distribution of slow secondary electrons from aluminium* », *J. Appl. Phys.*, **47**, (1976), pp.2941.
- [FAN-56] U. Fano, « *Differential Inelastic Scattering of Relativistic Charged Particles* », *Phys. Rev.*, **102**, (1956), pp.385.
- [FEI-73] P. J. Feibelman, « *Spatial variation of the electron mean free path near a surface* », *Surf. Sci.*, **36**, (1973), pp.558.
- [FER- 56] A. Ferrell, « *Angular Dependence of the Characteristic Energy Loss of Electrons Passing Through Metal Foils* », *Phys. Rev.*, **101**, (1956), pp.554.
- [FRÖ-54] H. Fröhlich, « *Electrons in lattice fields* », *Adv. Phys.*, **3**, (1954), pp.325.
- [GOL-61] I. I. Goldman, V. D. Krinchenkov, « *Problems in Quantum Mechanics* », Addison-Wesley, Reading, Mass., (1961), pp.11.
- [GRY-65] M. Gryziński, « *Two-Particle Collisions. I. General Relations for Collisions in the Laboratory System* », *Physical Review* **138** (2A), (1965), pp.A305.
M. Gryziński, « *Two-Particle Collisions. II. Coulomb Collisions in the Laboratory System of Coordinates* », *Physical Review* **138** (2A), (1965), pp.A322.
M. Gryziński, « *Classical theory of atomic collisions. I. Theory of inelastic collisions* », *Physical Review* **138** (2A), (1965), pp.A336.
- [HAN-91] E. D. Palik, « *Handbook of Optical Constant of Solids* », Ed. Academic, New York, (1991).
- [HAR-56] G. A. Harrower, « *Energy Spectra of Secondary Electrons from Mo and W for Low Primary Energies* », *Phys. Rev.*, **104**, (1956), pp.52.

- [HEN-79] B.L. Henke, J. Liesegang, S.D. Smith, « *Soft-x-ray-induced secondary-electron emission from semiconductors and insulators: Models and measurements* », Phys. Rev. B, **19**, (1979), pp.3004.
- [INO-71] M. Inokuti, « *Inelastic Collisions of Fast Charged Particles with Atoms and Molecules—The Bethe Theory Revisited* », Rev. Mod. Phys., **43**, (1971), pp.297.
- [JAB-04] A. Jablonski, F. Salvat, C.J. Powell, « *Comparison of electron elastic-scattering cross sections calculated from two commonly used atomic potentials* », J. Phys. Chem. Ref. Data. 33, **2**, (2004), pp.409.
- [KAN-72] Kanaya, Kawakatsu, « *Secondary electron emission due to primary and backscattered electrons* », J. Phys. D: Appl. Phys., **5**, (1972), pp.1727.
- [KIT-76] C. Kittel, « *Introduction to solid state physics* », John Wiley and Sons, New-York (1976).
- [KRA-79] M.O. Krausse, « *Atomic radiative and radiationless Yields for K and L Shells* », J. Phys. Chem. Ref. Data, **12**, (1979), pp.307.
- [KUH-99] J. Ch. Kuhr, H.J. Fitting, « *Monte Carlo of electron emission from solids* », J. Electr. Spect. And Rel. Phenom., **105**, (1999), pp.257.
J. Ch. Kuhr, H.J. Fitting, « *Monte Carlo of low energy electron scattering in solids* », Phys. Stat. Sol. (a), **172**, (1999), pp.433.
- [LEG-78] C. Le Gressus, « *Spectroscopie des électrons Auger* », 2620, (1978).
- [LEV-03] A. F. J. Levi, « *Applied Quantum Mechanics* », Cambridge University Press, (2003), pp.168.
- [LIN-54] J. Lindhard, « *On the Properties of a Gas of Charged Particles* », Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-Fys. Medd. **28**, (1954).
- [LIN-05] Y. Lin, D.C. Joy « *A new examination of secondary electron yield data* » Surf. Inter. Anal., **37**, (2005), pp.895.
- [MAR-79] J. P. Martinez, J. L. Balladore, J. Trinquier, « *Determination of partial and total scattering cross-sections for high energy electrons in the range 1.2–3 MeV* » Ultramicroscopy, **4**, (1979), pp.221.
- [MAS-69] H.S.W. Massey, E. H. S. Burhop, « *Electronic and Ionic Impact Phenomena, vol. 1* », Clarendon Press, Oxford, (1969).
H.S.W. Massey, « *Electronic and Ionic Impact Phenomena, vol. 2* », Clarendon Press, Oxford, (1969).
- [MER-70] N. D. Mermin, « *Lindhard Dielectric Function in the Relaxation-Time Approximation* », Phys. Rev. B, **1**, (1970), pp.2362.
- [MOL-47] G. Moliere, « *Theorie der Streuung schneller geander Teilchen* », Z. Naturforsch, **A2**, (1947), pp.133.
- [MOT-65] N.F Mott, Q.S.W Massey, « *The theory of atomic collisions* », Oxford University press, London, (1965).
- [NIG-59] B.P. Nigam, M.K. Sundaresan, T.Y. Wu, « *Theory of Multiple Scattering: Second Born Approximation and Corrections to Molière's Work* » Phys. Rev., **115**, (1959), pp.491.

- [NOU-24] B.V. Noumerov, Monthly Notices Roy. Astron Soc., **84**, (1924), pp.592.
- [NUN-80] R. Núñez, P. M. Echenique, R.H. Ritchie, « *The energy loss of energetic ions moving near a solid surface* », J. Phys. C **13**, (1980), pp.4229.
- [PAU-09] N. Pauly, S. Tougaard, « *Determination of the effective surface region thickness and of Begrenzungs effect* », Surf. Sci. **603**, (2009), pp.2158.
- [PEN-74] J.B. Pendry, « *Low energy electron diffraction* », Acad. Press, London and New York, (1974).
- [PEN-86] D.R. Penn, « *Electron mean-free-path calculations using a model dielectric function* », phys. Rev. B, **35**, (1986), pp.482.
- [PIL-76] J. Pillon, J.P Ganachaud, M. cailler, « *Secondary electron emission from aluminium* », Surf. Sci., **59**, (1976), pp.741.
- [PIN-64] D. Pines, « *Elementary Excitations in Solids* », Benjamin, New York, (1964).
- [QUI-62] J.J. Quinn, « *Range of Excited Electrons in Metals* », Phys. Rev., **126**, (1962), pp.1453–1457.
- [RAE-65] H. Raether, « *Solid State Excitations by Electrons (Plasma Oscillations and Single Electron Transitions)* », Springer Tracts in Modern Physics, **38**, Springer-Verlag, Berlin, (1965).
- [RAE-80] H. Raether, « *Excitations of plasmons and Interband Transitions by Electrons* », Springer Tracts in Modern Physics, **88**, Springer-Verlag, Berlin, (1980).
- [RAE-88] H. Raether, « *Surface Plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings* », Springer Tracts on modern physics, Springer-Verlag, Berlin (1988).
- [REI-84] L. Reimer, B. Lödding, « *Calculation and tabulation of Mott cross-sections for large-angle electron scattering* », Scanning, **6**, (1984), pp.128-151.
- [REI-89] L. Reimer, « *Transmission electron microscopy* », Springer Series in Optical sciences, second edition (1989), chaps. 5.
- [RIT-57] R.H. Ritchie, « *Plasma losses by fast electrons in thin films* », Phys. Rev., **106**, (1957), pp.874.
- [RÖS-91] M. Rösler, W. Brauer, J. Devooght, J. C. Dehaes, A. Dubus, M. Cailler, J. P. Ganachaud, « *Partial Induced Electron Emisison I* », Springer Tracts in Modern Physics, **122**, Springer-Verlag, Berlin (1991).
- [SAC-50] R.G. Sachs, D.L. Dexter, « *Quantum Limits of the Electrostatic Image Force Theory* », J. Appl. Phys., **21**, (1950), pp.1304.
- [SAR-10] D. Sarid, W. Challener, « *Modern Introduction to Surface Plasmons: Theory, Mathematica Modeling, and Applications* », Cambridge University Press, (2010).
- [SCH-72] L. Schafer, J. Holzl., « *A contribution to the dependence of secondary electron emission from the work function and Fermi energy* », Thin Solid Films, **18**, (1972), pp.81-86.
- [SCH-08] R.B.M. Schasfoort, A. J. Tudos, « *Handbook of Surface Plasmon Resonance* », Royal Society of Chemistry, (2008).
- [SEI-83] H. Seiler, « *Secondary electron emission in the scanning electron microscope* », J. Appl. Phys., **54**, (1983), pp.R1.

- [SHI-97] A. Shih, J. Yater, C. Hor, R. Abrams, « *Secondary electron emission studies* », *Appl. Surf. Sci.*, **111**, (1997), pp.251.
- [SLA-69] J.C. Slater, J.B.M. Ann, T.M. Wilson, J.H. Wood, « *Nonintegral Occupation Numbers in Transition Atoms in Crystals* », *Phys. Rev.*, **184**, (1969), pp. 672.
- [SMR-70] L. Smrčka, « *Energy band-structure of aluminium by augmented-plane-wave method* », *Czech. J. Phys.*, **B20**, (1970), pp.291.
- [SPA-81] M. Sparks, D.L. Mills, R. Warren, T. Holstein, A. A. Maradudin, L. J. Sham, E. Loh, Jr., D. F. King, « *Theory of electron-avalanche breakdown in solids* », *Phys. Rev. B*, **24**, (1981), pp.3519.
- [STE-60] E.A. Stern, R.A. Ferrell, « *Surface plasma oscillations of a degenerate electron gas* », *Phys., Rev.*, **120**, (1960), pp.130.
- [STR-90] D. Strauch, B. Dorner, « *Phonon dispersion in GaAs* », *J. Phys.: Condens. Matter*, **2**, (1990), pp.1457.
- [TUG-94] C.J. Tung, Y.F. Chen, C.M. Kwei, T.L. Chou, « *Differential cross sections for plasmon excitations and reflected electron-energy-loss spectra* », *Phys. Rev. B*, **49**, (1994), pp.16684.
- [VAS-72] P. Vashishta, K.S. Singwi, « *Electron Correlations at Metallic Densities. V* », *Phys. Rev. B*, **6**, (1972), pp.875.
- [WAG-05] J. Wagner, W. Stummer, M. Völkerer, A. Hanke, J. Wernisch, « *Measuring the Angular Dependant Energy Distribution of Backscattered Electrons at variable Geometry* », *Scanning*, **27**, (2005), pp.298.
- [WAN-96] J.P. Wang, C.J. Tung, Y.F. Chen, C.M. Kwei, « *The surface effect on Au 4f X-ray photoelectron spectra* » *Nucl. Instrum. Meth. B*, **108**, (1996), pp.331.
- [WEN-27] G. Wentzel, *Zeit. Physik*, **40**, (1927), pp.590.
- [WER-03] W.S.M. Werner, C. Eisenmenger-Sittner, J. Zemek, P. Jiricek, « *Scattering angle dependence of the surface excitation probability in reflection electron energy loss spectra* », *Phys. Rev. B.*, **67**, (2003), pp.155412.

**CHAPITRE II – SIMULATION
MONTE-CARLO DE L'ÉMISSION
ÉLECTRONIQUE DANS
L'ALUMINIUM**

CHAPITRE II. Simulation Monte-Carlo de l'émission électronique dans l'Aluminium

II.1. Introduction

Cette étude porte sur l'aluminium pour deux raisons majeures. Premièrement c'est une substance pour laquelle l'approximation d'électrons libres est justifiée par sa structure électronique. Les électrons faiblement liés de la couche électronique M sont distinguables des électrons de la couche K et L. Ainsi on peut considérer la cible d'aluminium comme une distribution aléatoire d'ions Al^{3+} dans un milieu d'électrons hautement délocalisés. Deuxièmement, c'est une substance qui a fait l'objet de nombreuses études théoriques et expérimentales, tout du moins dans un domaine d'énergie allant de la centaine d'eV à plusieurs dizaines de MeV. Ainsi les résultats obtenus dans une partie du domaine d'énergie que nous souhaitons étudier (de quelques eV à quelques keV), pourront être confrontés aux données de la littérature et validés. La simulation de l'émission électronique induite dans une cible d'aluminium soumise à l'impact d'un faisceau d'électrons incidents de basse énergie est effectuée par la méthode Monte-Carlo (MC). Cette simulation a pour objectif de générer des données liées aux électrons émis par le matériau et qui permettant de transcrire les aspects phénoménologiques de l'émission électronique.

La mise en œuvre des simulations Monte-Carlo nécessite la connaissance des sections efficaces différentielle et totale rattachées à la description de tous les événements élémentaires affectant le transport de l'électron dans la cible. Les résultats de ces simulations dépendront donc de la qualité des sections efficaces utilisées et du soin avec lequel elles seront évaluées puis échantillonnées. On cherchera alors à calculer puis échantillonner les sections efficaces qui sont reconnues actuellement comme étant les meilleures et les plus valables dans le domaine d'énergie qui nous intéresse.

Ainsi, avant de présenter les résultats proprement dits des simulations, un bref rappel du principe de la méthode MC est donné, suivi d'une description des principales méthodes mathématiques d'échantillonnage associées. La méthode MC étant appliquée à la simulation de trajectoires d'électrons dans un matériau, nous présenterons les deux méthodes classiques de simulation de ces trajectoires ainsi que les modèles d'interactions que nous avons sélectionnés dans le cas de l'aluminium pour des énergies d'incidence allant de quelques eV à

quelques keV. Les raisons de notre sélection et la stratégie d'implémentation de ces modèles seront ensuite explicitées.

Pour finir ce chapitre, les modèles adoptés seront validés en calculant le libre parcours moyen inélastique et le pouvoir d'arrêt. Ces deux caractéristiques du matériau seront confrontées aussi bien à des données expérimentales qu'aux résultats de simulations disponibles dans la littérature.

II.2. Simulation de trajectoires électroniques dans un matériau par la méthode Monte-Carlo

C'est dans les années 60 que les premières simulations par méthode de Monte-Carlo appliquées au domaine de l'émission électronique ont vues le jour. On les doit en particulier à Green [GRE-63], Van Roosbroeck [VAN-65], Llacer et Garwin [LLA-69] et Shimizu et Murata [SHI-71]. Pour une liste plus exhaustive, le lecteur pourra se reporter aux travaux de revue de Caillet et Ganachaud [CAI-90], ainsi que celui de Dubus et co. [DUB-93]. Dans ces travaux, des approches très simplifiées ont été proposées car à l'époque les performances des calculateurs, tant en vitesse de calcul qu'en capacité mémoire, étaient limitées. Il s'agit essentiellement de l'approche de diffusion simple et celle de diffusion multiple qui considèrent comme aléatoire qu'un seul processus : la diffusion élastique. Ce processus est à l'origine de l'essentiel de la déflexion des trajectoires électroniques dans la matière et de la forme générale du volume d'interaction des électrons. Le processus inélastique quant à lui, est responsable de la perte d'énergie des électrons au cours de leur cheminement dans la cible et donne lieu principalement à des diffusions aux petits angles, ce qui permet de négliger son influence sur la forme générale du volume d'interaction. À partir des années 80-90, des approches plus rigoureuses ont commencé à émerger grâce, notamment, aux travaux de Reimer et co. [REI-84], de Salvat et co. [SAL-93] ou encore de Murata et co. [MUR-95]. En effet une grande rigueur est exigée pour décrire les phénomènes physiques qui interviennent lors de l'interaction des électrons avec la matière et pour prendre en compte les différentes interactions individuelles.

II.2.1. Méthode Monte-Carlo et méthodes d'échantillonnage

II.2.1.1. Principe général de la méthode Monte-Carlo

La méthode Monte-Carlo est un outil mathématique qui permet de résoudre des problèmes probabilistes. Elle consiste en l'utilisation de nombres aléatoires afin de simuler les processus physiques aléatoires. Dans notre cas ces processus aléatoires sont des interactions électron-matière. D'un point de vue mathématique, il s'agit d'établir une relation biunivoque entre les éléments X et Y telle que :

$$\int_{-\infty}^X f(x)dx = \int_{-\infty}^Y g(y)dy, \quad (\text{II-1})$$

où $f(x)$ est la densité de probabilité qui décrit la distribution de la variable x qui représente un processus physique aléatoire. Le terme $g(y)$ représente la densité de probabilité qui décrit la distribution de nombre aléatoires y .

On simule $g(y)$ en tirant au hasard des nombres équirépartis entre 0 et 1. Si R est l'un de ces nombres, la relation (II-1) donne :

$$\int_{-\infty}^X f(x)dx = \int_{-\infty}^Y g(y)dy = Y = R. \quad (\text{II-2})$$

La variable X qui représente un processus physique est donnée par :

$$X = F^{-1}(R). \quad (\text{II-3})$$

Le terme F^{-1} représente la fonction inverse de la fonction de distribution cumulative $F(x)$ de $f(x)$. Cette relation est une relation d'échantillonnage. Elle fait correspondre à un nombre aléatoire R , uniformément réparti entre 0 et 1, la variable X . Il existe plusieurs méthodes d'échantillonnage qui peuvent être appliquées pour déterminer une valeur de X . Nous allons présenter succinctement trois méthodes d'échantillonnage utilisées lors de nos simulations.

II.2.1.2. Méthodes d'échantillonnage

II.2.1.2.1. Méthode directe

Cette méthode d'échantillonnage, efficace, consiste à utiliser la relation **(II-3)**. Pour chaque nombre aléatoire R tiré, on détermine la valeur de la variable X qui correspond au phénomène physique aléatoire considéré. L'application de la méthode directe n'est possible que si on peut intégrer analytiquement la fonction $f(x)$ et que la fonction $F(x)$ est inversible. Cette méthode a été appliquée à chaque fois que cela était possible. Cependant les formalismes utilisés pour décrire les nombreux processus physiques étudiés rendent souvent l'intégration analytique ou l'inversion très complexe voire impossible. D'autres méthodes d'échantillonnage plus adaptées ont été alors employées.

II.2.1.2.2. Méthode du rejet

La plus « expérimentale » et basique des méthodes qui a été utilisée est la technique du rejet établie par J. Von Neumann [VON-51]. Si $f(x)$ est définie sur l'intervalle $[a,b]$ et si A est le plus grand réel possible tel que $\forall x \in [a,b]$ on ait $A \cdot f(x) \leq 1$, alors on détermine des couples de nombres aléatoires indépendants R_1 et R_2 jusqu'à ce que l'on satisfasse la relation suivante :

$$R_2 \leq A \cdot f(a + (b-a) \cdot R_1), \quad \text{(II-4)}$$

Une fois le couple déterminé la valeur X de la variable échantillonnée est :

$$X = a + (b-a) \cdot R_1, \quad \text{(II-5)}$$

II.2.1.2.3. Méthode stratifiée

La méthode stratifiée est appliquée quand la densité de probabilité $f(x)$ n'est pas connue analytiquement ou sa forme est très complexe à calculer. Dans ce cas, l'utilisation de l'échantillonnage direct est impossible et la méthode du rejet peut conduire à une efficacité très faible (c.-à-d. une augmentation significative du temps de calcul pour obtenir une seule variable). La mise en œuvre de la méthode stratifiée, suppose que la densité de probabilité $f(x)$

soit connue en $n + 1$ points x_i et que cette densité soit définie sur l'intervalle $[a,b]$, voir Figure II-1. Les points x_i sont choisis afin de pouvoir assimiler $f(x)$ à une droite entre deux points consécutifs. Ils doivent être assez nombreux pour ne pas altérer l'information sur la densité de probabilité. Dans ces conditions, il est alors possible d'échantillonner une valeur X de densité $f(x)$ avec deux nombres aléatoires indépendants R_1 et R_2 et en déterminant i tel que :

$$\sum_{l=1}^i A_l < R_1 \cdot \sum_{l=1}^n A_l \leq \sum_{l=1}^{i+1} A_l . \quad (\text{II-6})$$

Le terme A_l est donné par l'expression suivante :

$$A_l = (x_{l+1} - x_l) \cdot (f(x_{l+1}) + f(x_l)) . \quad (\text{II-7})$$

La valeur de X , qui représente le phénomène physique, sera alors :

$$X = \frac{-\beta + \sqrt{f^2(x_i) + 2 \cdot \alpha \cdot \gamma \cdot R_2}}{\alpha} , \quad (\text{II-8})$$

où les termes α , β , γ sont définis de la manière suivante :

$$\alpha = \frac{f(x_{l+1}) - f(x_l)}{x_{l+1} - x_l} , \quad (\text{II-9})$$

$$\beta = f(x_l) - \alpha \cdot x_l , \quad (\text{II-10})$$

$$\gamma = \int_{x_i}^{x_{i+1}} (\alpha \cdot x + \beta) \cdot dx = \frac{\alpha}{2} \cdot (x_{i+1}^2 - x_i^2) + \beta \cdot (x_{i+1} - x_i) , \quad (\text{II-11})$$

Un choix intelligent des x_i permet d'avoir une très bonne efficacité avec cette méthode d'échantillonnage car les rejets sont évités. En effet, on augmente le nombre de points dans les zones où la densité de probabilité $f(x)$ varie rapidement et on prend un nombre restreint de points lors d'une variation faible de $f(x)$.

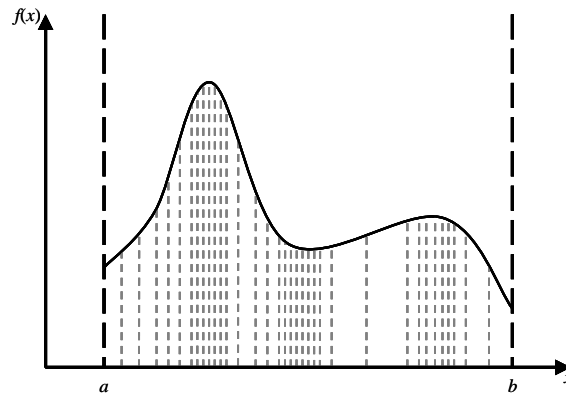


Figure II-1 : Densité de probabilité $f(x)$ découpée en n segments quasi-linéaires.

II.2.2. Simulation Monte-Carlo d'une trajectoire électronique

Nous allons décrire les deux principales démarches habituellement suivies pour simuler la trajectoire d'un électron dans un matériau donné. Il s'agit de la diffusion simple et de la diffusion multiple.

II.2.2.1. Principe de la diffusion simple

La diffusion simple peut être abordée selon deux méthodes différentes considérant respectivement les pertes continues et la cascade d'électrons. Ces deux méthodes ont vu le jour suite aux différentes évolutions dans les capacités de calcul des ordinateurs. La méthode des pertes continues a été développée dans les années 60, tandis que celle de la cascade électronique est plus récente.

II.2.2.1.1. Diffusion simple par pertes continues

Concernant cette approche, le problème est abordé de la façon suivante :

- La seule variable aléatoire est l'angle polaire de diffusion élastique θ . Cet angle est tiré entre 0 et π suivant une loi de distribution définie par la section efficace différentielle de

diffusion élastique $d\sigma_e(\theta)/d\theta$ alors que la composante azimutale φ est tirée dans un ensemble d'angles uniformément distribués entre 0 et 2π .

- La perte d'énergie résultant des interactions inélastiques, supposée continue au cours d'une étape élémentaire de la trajectoire, est évaluée à l'aide d'une loi de perte moyenne d'énergie (loi de Bethe par exemple [BET-30]) ou celle de Joy et Luo [JOY-89] qui permet d'éviter la divergence de la loi de Bethe à basse énergie. Notons que l'utilisation de ces lois revient à omettre le caractère discret des pertes d'énergie que subit l'électron incident lors de son parcours dans la cible.
- Soit on néglige la contribution des interactions inélastiques dans la diffusion des trajectoires, soit on en tient compte en corrigeant la section efficace de diffusion élastique par le facteur de Fano [FAN-47]. Ce facteur ne devient significatif que pour des atomes légers (faible numéro atomique).

La simulation d'une trajectoire s'effectue en découpant celle-ci en étapes. La longueur d'étape est définie à partir du libre parcours moyen entre chocs élastiques successifs : $\lambda_e = 1/(n \cdot \sigma_e)$, où n est la densité atomique et σ_e la section efficace élastique. Étant donné que le nombre effectif de chocs diffusants par unité de longueur suit une loi de type Poisson, il est aisé d'échantillonner la longueur d'étape l_e entre deux chocs successifs (libre parcours élastique), autour du libre parcours moyen élastique λ_e , par tirage d'un nombre aléatoire R uniformément réparti dans l'intervalle]0,1] et par l'application de la relation $l_e = -\lambda_e \cdot \log(R)$ (voir Annexe A).

La trajectoire électronique va ainsi être une succession d'interactions élastiques avec une perte d'énergie continue au cours du déplacement. L'électron se déplacera jusqu'à ce que son énergie atteigne une énergie seuil E_{seuil} fixée pour arrêter la simulation, comme l'illustre la Figure II-2. Cette énergie peut être définie à 0 eV ou à une énergie en-deçà de laquelle l'électron ne peut être émis, ou encore à l'énergie prise par convention pour distinguer électrons rétrodiffusés et secondaires : 50 eV.

Cette approche a l'avantage de la simplicité et d'une faible exigence en ressources mémoires. En effet, le traitement des pertes d'énergies comme continues permet d'éviter de traiter individuellement les interactions inélastiques. En revanche, elle présente l'inconvénient de ne pas considérer l'excitation des électrons du matériau.

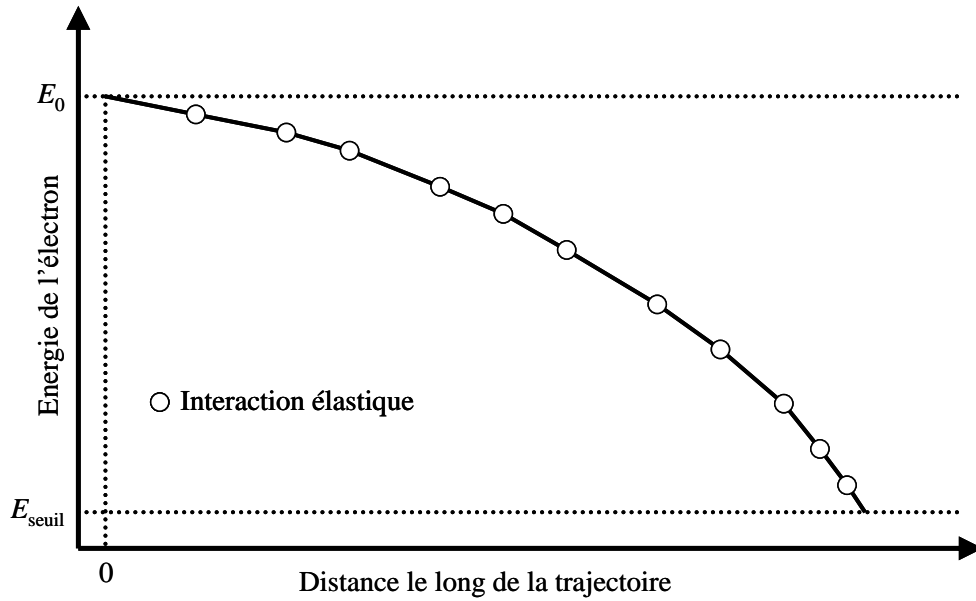


Figure II-2 : Schéma de la stratégie de diffusion simple par pertes continues.

II.2.2.1.2. Diffusion simple par cascade électronique

Dans une stratégie de diffusion simple par cascade électronique, contrairement à la diffusion par pertes continues, les interactions inélastiques sont traitées de la même manière que l'interaction élastique. Ce traitement individuel permet de considérer la mise en mouvement d'électrons du matériau là où chaque interaction inélastique a lieu. La trajectoire électronique est décrite par une succession d'étapes définies par le libre parcours entre interactions successives.

Si à chaque type d'interaction, parmi les i interactions possibles, est associé un libre parcours moyen λ_j , le libre moyen total λ_{tot} est tel que :

$$\lambda_{tot}^{-1} = \sum_{j=1}^i \lambda_j^{-1}, \quad (\text{II-12})$$

La sélection de l'interaction p qui va avoir lieu s'effectue à l'aide d'un nombre aléatoire R équiréparti entre 0 et 1, de la manière suivante :

$$\sum_{j=1}^{p-1} \frac{\lambda_j^{-1}}{\lambda_{tot}^{-1}} < R \leq \sum_{j=1}^p \frac{\lambda_j^{-1}}{\lambda_{tot}^{-1}}. \quad (\text{II-13})$$

Une fois l'interaction p sélectionnée, on peut alors calculer un libre parcours l_p en utilisant la relation d'échantillonnage suivante :

$$l_p = -\lambda_p \cdot \log(R), \quad (\text{II-14})$$

où λ_p est le libre parcours moyen de l'interaction p .

Le tirage des angles de diffusion polaire et azimutal associé à chaque type d'interaction (élastique ou inélastique) suit une procédure similaire à celle d'une interaction élastique. En effet, l'angle polaire de diffusion θ est tiré entre 0 et π suivant une loi de distribution définie par la section efficace différentielle de diffusion $d\sigma(\theta)/d\theta$ de l'interaction considérée alors que l'angle azimutal φ est tirée dans un ensemble d'angles uniformément distribués entre 0 et 2π .

En ce qui concerne les interactions inélastiques, la perte d'énergie $\hbar\omega$ que subit l'électron incident d'énergie E est tirée entre 0 et $E-E_f$ suivant une loi de distribution définie par la section efficace de diffusion $d\sigma(\hbar\omega)/d\hbar\omega$. Cet intervalle de tirage obéit au principe d'exclusion de Pauli. En effet, l'électron incident après interaction ne doit pas tomber dans la mer de Fermi soit $E-\hbar\omega \leq E_f$ ou encore $\hbar\omega \geq E-E_f$.

Lors d'une interaction inélastique, la mise en mouvement d'un électron du matériau est traitée en tenant compte de son énergie cinétique et de sa quantité de mouvement initiale. L'application de la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement permet de définir son énergie et sa direction d'émission après l'interaction inélastique. La trajectoire de l'électron mis en mouvement est à son tour simulée par interactions successives, de la même manière que l'électron qui l'a mis en mouvement. Ces trajectoires prennent fin quand l'énergie seuil, E_{seuil} , est atteinte comme l'illustre la Figure II-3.

La grande quantité de calcul mis en œuvre dans cette approche, pour simuler une trajectoire électronique, pourrait constituer un inconvénient. Toutefois ce dernier reste moins contraignant grâce à la puissance de calcul des machines dont nous disposons actuellement.

L'avantage de l'approche de diffusion simple par cascade électronique est de permettre une meilleure description des processus physiques mis en jeu au cours du déplacement des

électrons dans le matériau. Nombreux sont les programmes ayant adopté cette démarche, il s'agit notamment de PENELOPE [SAL-03], GEANT4 [SUL-03] ou CASINO [HOV-97].

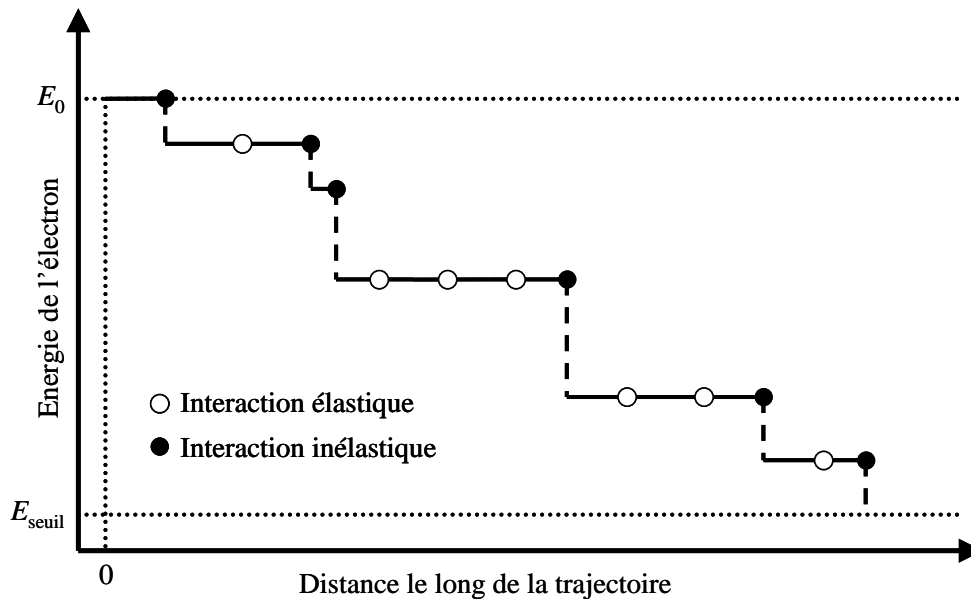


Figure II-3 : Schéma de la stratégie de la diffusion simple par une cascade électronique.

II.2.2.2. Principe de la diffusion multiple.

Dans cette approche, on ne considère comme aléatoires que les chocs élastiques. Cependant pour décrire la trajectoire, une longueur d'étape fixe est déterminée arbitrairement en divisant le parcours maximum de l'électron en un nombre réduit de segment égaux (typiquement 50). Au cours d'une étape, un électron d'énergie E subit en moyenne m chocs élastiques. Ce nombre m est donné par la section efficace totale de diffusion élastique. Ainsi pour obtenir la fonction de répartition de l'angle de diffusion multiple résultant de p chocs successifs au cours d'une telle étape et distribués selon une loi de Poisson de paramètre m , on utilise la méthode de Goudsmit et Saunderson [GOU-40]. Cette méthode consiste à convoluer les sections efficaces différentielles de diffusion multiple qui sont décomposées en polynômes de Legendre. Cependant, la fonction de répartition de l'angle de diffusion n'a plus une forme mathématique simple pour espérer réaliser analytiquement un tirage direct de l'angle de diffusion. Le tirage se fait alors à partir d'un ensemble d'angles équiprobables préalablement construit par échantillonnage de la fonction de répartition.

Dans cette approche, avant d'entreprendre la simulation des trajectoires, des calculs préliminaires sont nécessaires :

- Calcul du parcours maximum de l'électron incident, définition du nombre d'étapes et 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. La perte est calculée en utilisant une loi de ralentissement telle que celle de Bethe [BET-30].
- Calcul de la fonction de distribution de l'angle de diffusion « multiple » pour chaque étape et création d'un tableau d'angles équiprobables pour chacune.

Bien que ces calculs préliminaires prennent un certain temps, le temps de calcul pour une simulation donnée, par rapport à la diffusion simple, est considérablement réduit. Toutefois, les résultats des calculs préliminaires, peuvent être réutilisés pour une simulation portant sur les mêmes éléments chimiques à une même énergie primaire. Actuellement, la puissance des calculateurs est telle qu'on préfère revenir à l'approche de diffusion simple qui ne présente pas certains inconvénients de la diffusion multiple, en particulier son manque de résolution spatiale dû à une longueur plus importante des segments de trajectoires. Dans le cas par exemple d'une incidence très oblique voire rasante du faisceau, cet inconvénient peut conduire à des erreurs significatives dans les résultats.

II.2.3. Notre approche de la simulation Monte-Carlo des trajectoires électroniques

Actuellement l'approche de diffusion simple par cascade électronique constitue un outil presque routinier d'exploration, de compréhension voire de traitement de problèmes délicats concernant les interactions électron-matière. Le traitement individuel de chaque interaction nous permet d'avoir une description précise des mécanismes physiques mis en œuvre dans la cascade électronique. Cette approche a été alors adoptée avec tout de même une petite modification dans la façon de sélectionner l'interaction. Dans cette partie nous définirons en outre les conventions utilisées dans nos simulations et nous présenterons l'algorithme associé à notre approche.

II.2.3.1. Mode de sélection de l'interaction

Nous avons choisi de déterminer l'interaction par un biais différent de celui présenté dans la section II.2.2.1.2. Après avoir tiré un libre parcours pour chaque interaction à l'aide de l'expression (II-14), nous comparons les libres parcours obtenus. Le libre parcours le plus court correspondant à l'interaction qui se produit la première, est sélectionné. La Figure II-4 illustre schématiquement une sélection d'interaction parmi un choix de 4 types d'interactions différentes noté a , b , c et d . Pour chaque interaction est calculé respectivement le libre parcours l_a , l_b , l_c et l_d . Le libre parcours l_c est le libre parcours le plus court, c'est donc l'interaction c qui sera retenue.

Ce mode de sélection engendre des interactions identiques au mode de sélection classique. Cependant, il présente l'avantage de pouvoir traiter de manière similaire des interactions définies par des probabilités d'interactions et des événements non probabilistes, notamment le franchissement de la surface. Ce dernier cas est traité habituellement en faisant un test d'arrivée de l'électron à la surface ($z \Rightarrow 0$) alors que dans notre étude, il est affecté d'un libre parcours simulé en calculant la distance à parcourir pour atteindre la surface.

Autrement dit, cette distance est considérée comme le libre parcours de l'interaction avec la surface et comparé aux libres parcours des autres interactions. L'opération est équivalente mais permet de traiter le passage de la surface comme les autres interactions.

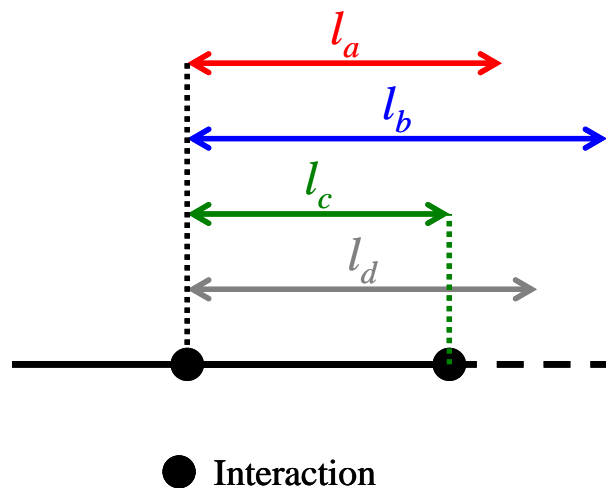


Figure II-4 : Schéma de la sélection de l'interaction qui va avoir lieu par comparaison des libres parcours.

II.2.3.2. Conventions

II.2.3.2.1. Origine des énergies des électrons en mouvement

Nos simulations MC concernent des trajectoires électroniques ayant lieu dans deux milieux différents: la cible d'aluminium et le vide. Il est alors nécessaire de préciser la référence d'énergie potentielle à utiliser pour simuler le déplacement de l'électron. Pour un métal comme l'aluminium, plusieurs origines peuvent être déterminées à partir du diagramme d'énergie représenté sur la Figure II-5 : le niveau du vide, le niveau de Fermi et le niveau du bas de la bande de conduction.

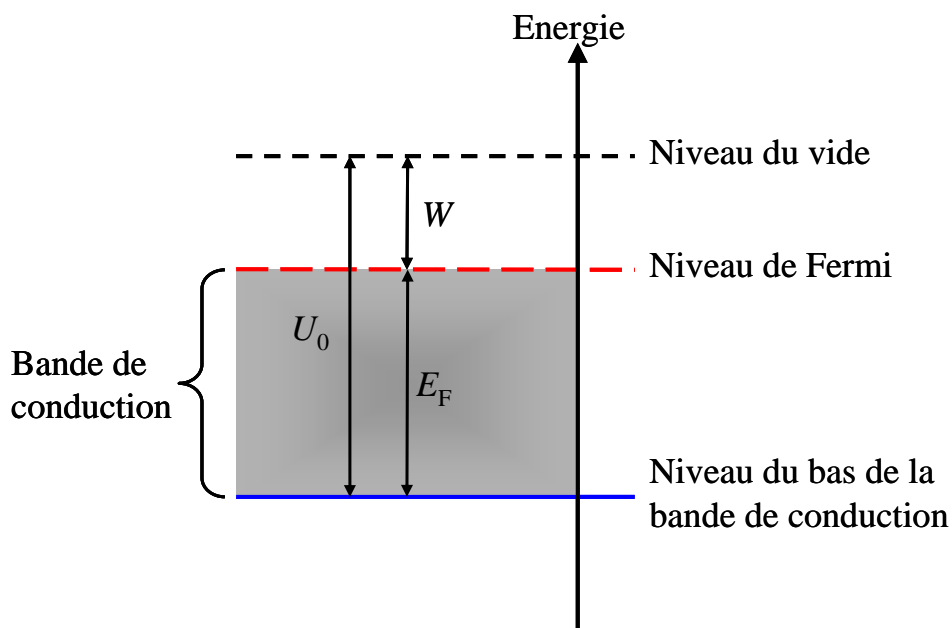


Figure II-5 : Schéma des références d'énergie possibles dans un métal comme l'aluminium.

Dans notre simulation le niveau du vide sera choisi lorsque l'électron est dans le vide. En pratique, l'énergie des électrons émis sera également exprimée par rapport à ce dernier. Le niveau de Fermi et celui du bas de la bande de conduction sont deux niveaux usuels pour décrire l'énergie de l'électron dans le matériau. Le niveau du bas de la bande de conduction a été choisi pour décrire l'énergie des électrons simulés lorsqu'ils sont dans la cible d'aluminium.

II.2.3.2.2. Géométrie de la cible et les repères utilisés

La cible d'aluminium est assimilée à un milieu semi-infini. L'interface entre la cible et le vide est parfaitement plane. Le repère du laboratoire est un repère orthonormé (O, X_0, Y_0, Z_0) . La cible est située dans le domaine $[-\infty, 0]$ de l'axe OZ_0 . L'interface cible-vidé est située dans le plan (OX_0, OY_0) comme représentée sur la Figure II-6. L'électron injecté est traité à partir de la surface et ayant les coordonnées $(0, 0, 0)$. La direction de déplacement de l'électron est définie par l'angle zénithal θ et longitudinal Φ d'incidence de l'électron en coordonnées sphériques.

L'interaction est traitée dans le repère orthonormé de l'électron incident (X, Y, Z) comme le montre la Figure II-6. Z est colinéaire à la direction de déplacement de l'électron incident et est orienté dans le même sens. La déviation (θ, φ) que subit l'électron incident au cours de l'interaction est déterminée dans ce repère. Un changement de repère est nécessaire pour exprimer la nouvelle direction de l'électron dans le repère du laboratoire.

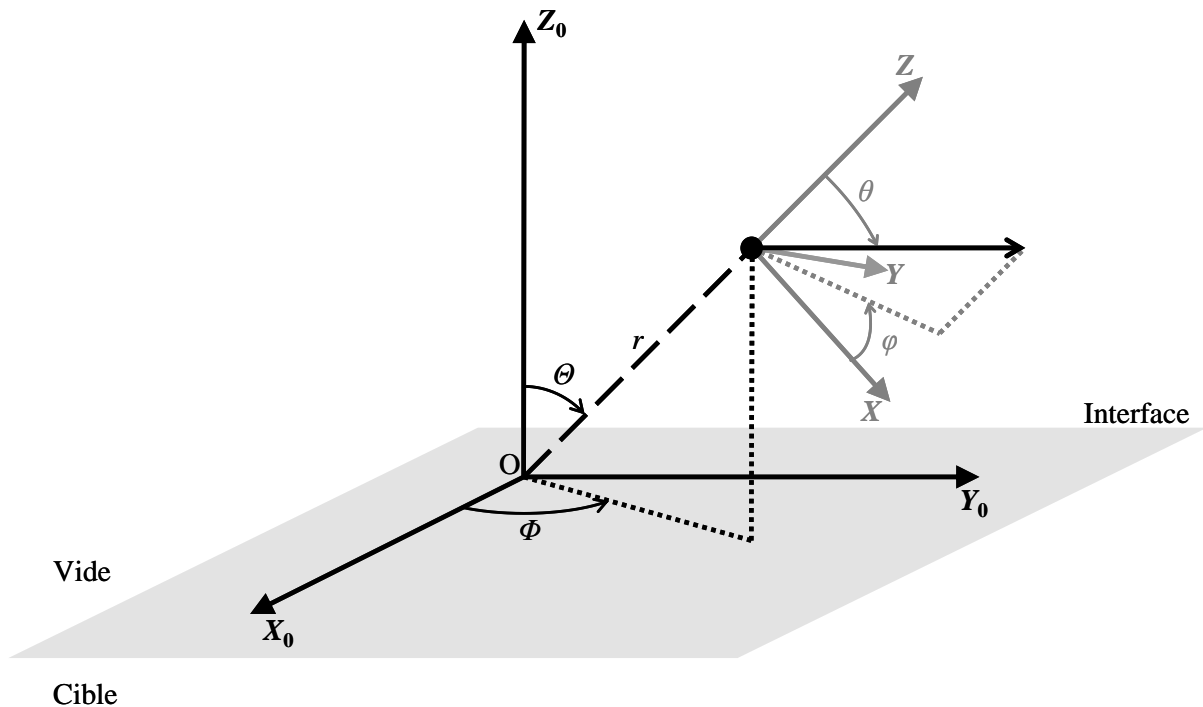


Figure II-6 : Représentation des repères utilisés au cours de la simulation.

II.2.3.3. Algorithme de la simulation d'une trajectoire

La trajectoire d'un électron injecté dans la cible d'aluminium telle que nous la simulons est représentée schématiquement sur la Figure II-7 pour quatre types d'interaction. L'organigramme de notre simulation de trajectoires électroniques est donné dans la Figure II-8. Soit un électron d'énergie E_0 dans le vide qui atteint l'interface vide-cible aux coordonnées $(x_0, y_0, z_0) = (0, 0, 0)$ avec une direction donnée par l'un angle polaire Θ_0 et l'angle azimutal Φ_0 .

Dans une première étape, la traversée de l'interface par l'électron incident est traitée comme une interaction électron-surface. Si l'électron est réfléchi par la surface, sa direction est modifiée pour rendre compte de cette réflexion et sa trajectoire est terminée. Les caractéristiques de l'électron ($E_0, x_0, y_0, z_0, \Theta_R, \Phi_R$) sont alors collectées et stockées.

Si l'électron est transmis dans la cible d'aluminium après traversée de la surface, l'électron a une énergie E dans le matériau et une direction définie par le couple d'angle polaire et azimutal (Θ, Φ) . Le processus d'interaction est alors lancé pour déterminer l'interaction qui va d'abord avoir lieu. Pour ce faire les libres parcours des interactions possibles sont calculés, et le libre parcours le plus court qui désigne l'interaction sélectionnée. Le déplacement de l'électron se poursuit en calculant les nouvelles coordonnées de l'électron à partir du libre parcours de l'interaction sélectionnée. La perte d'énergie ΔE et la déflexion (θ, φ) que subit l'électron au cours de son déplacement sont déterminés à partir de la section efficace différentielle de l'interaction sélectionnée. Ainsi, la nouvelle énergie et direction de l'électron sont définies. Si l'interaction sélectionnée est une interaction inélastique, l'énergie et la direction de l'électron du matériau mis en mouvement sont déterminées à l'aide du principe de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement. Une nouvelle trajectoire correspondant à ce nouvel électron est alors simulée. Si l'interaction sélectionnée est l'interaction électron-surface et si l'électron est transmis dans le vide, la trajectoire est arrêtée et les caractéristiques de l'électron ($E, x, y, z_0, \Theta, \Phi$) sont collectées. Dans le cas contraire l'énergie de l'électron après interaction est comparée à l'énergie seuil E_c . Si l'énergie de l'électron est inférieure à l'énergie seuil, la trajectoire de l'électron est arrêtée. Sinon une nouvelle sélection d'interaction est effectuée en suivant le même processus que précédemment. Le cycle d'interactions se répète jusqu'à ce que la trajectoire soit terminée selon un des critères précédents : transmission dans le vide ou énergie inférieure à E_{seuil} .

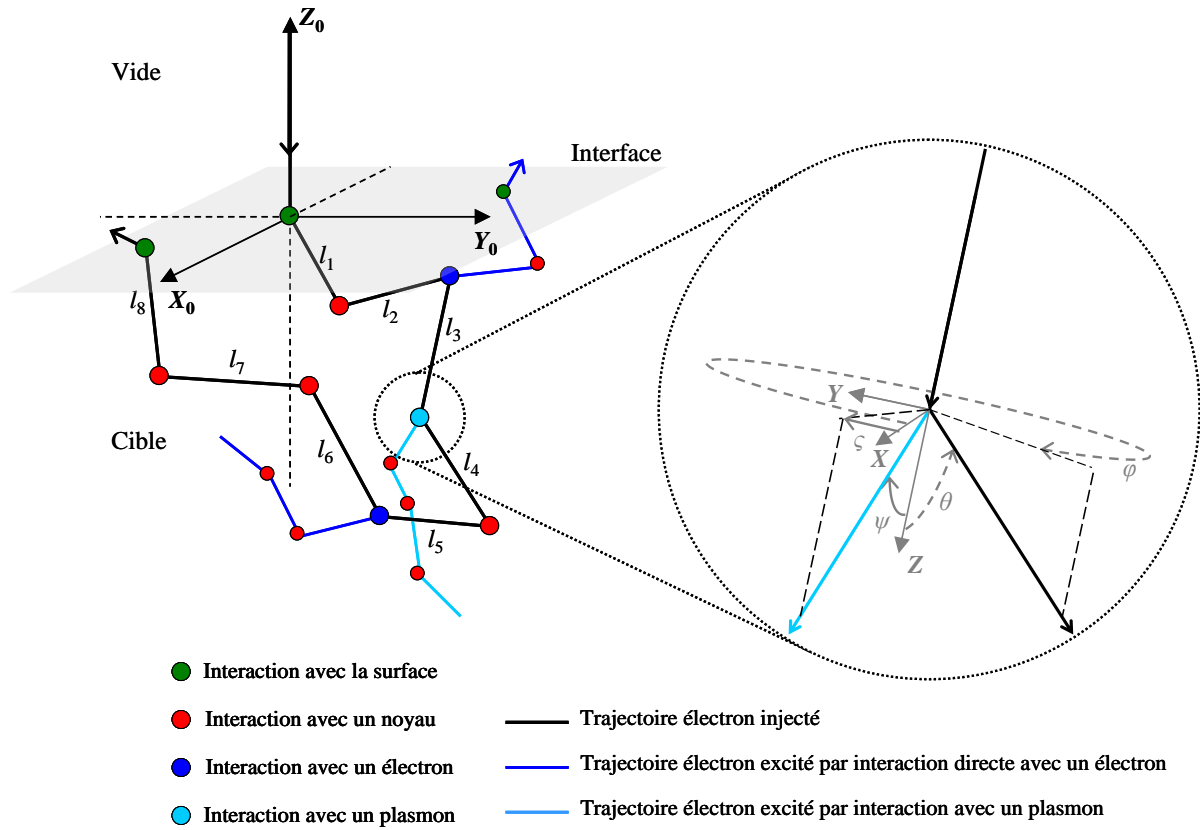


Figure II-7 : Schéma des trajectoires électroniques simulées suivant notre algorithme. l_p représente le libre parcours de l'électron avant d'interagir pour la $p^{\text{ième}}$ fois. En vue agrandie est représentée une interaction avec l'excitation d'un électron du matériau. La direction après interaction de l'électron incident et de l'électron excité dans le référentiel de l'électron incident sont respectivement (θ, φ) et (ψ, ζ) .

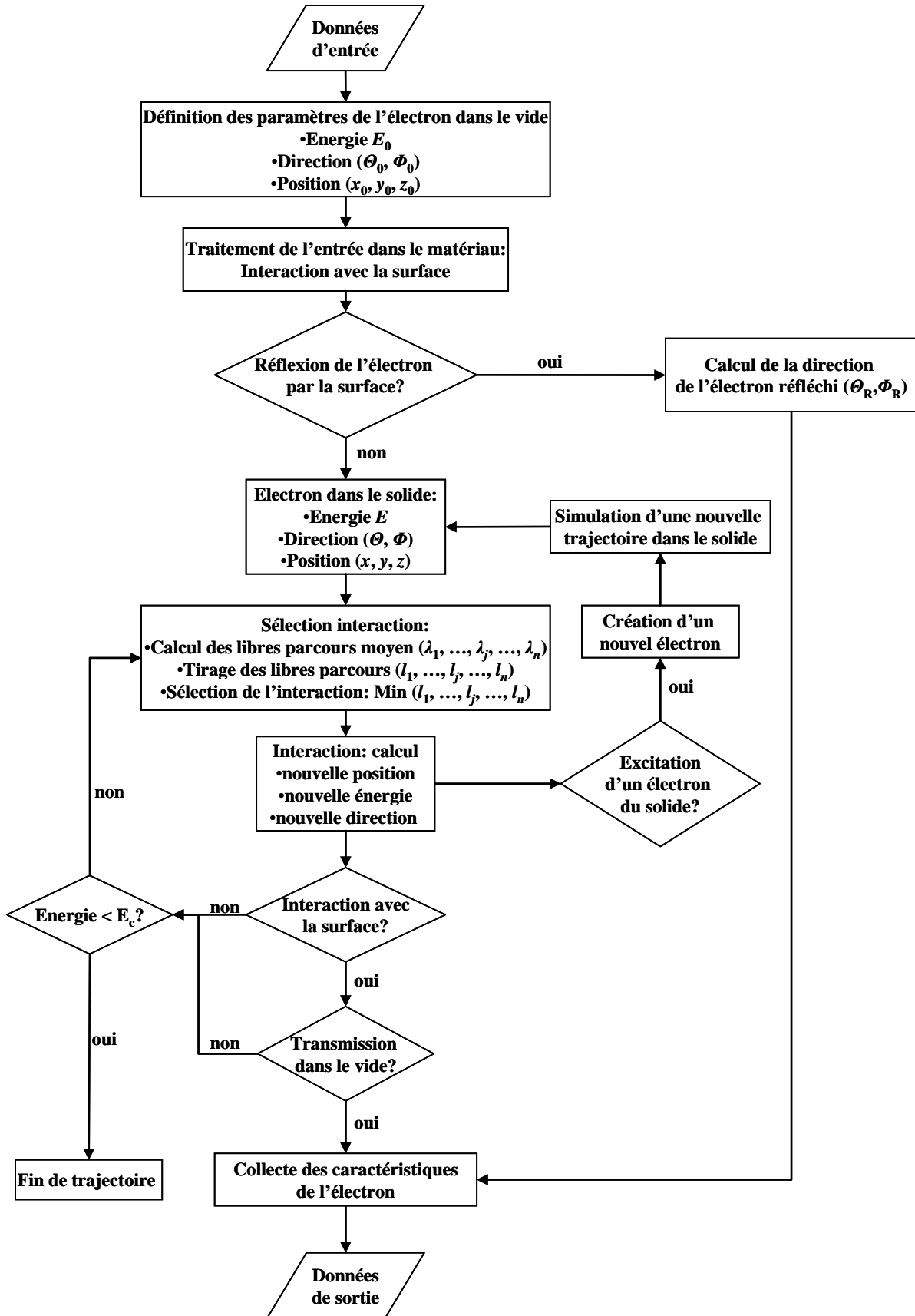


Figure II-8 : Organigramme de la simulation de la trajectoire complète d'un électron

II.3. Application de la diffusion simple par cascade électronique et formalismes

La méthode de diffusion simple par cascade électronique a été adoptée pour simuler les trajectoires d'électrons dans le matériau étudié, à savoir l'aluminium. Le choix de cette méthode est motivé par les raisons invoquées ci-dessus (section II.2.2.1.2) et implique un traitement individuel des interactions mises en jeu dans le transport des électrons dans ce matériau. Dans cette partie, nous allons présenter les modèles sélectionnés ainsi que les formalismes associés, pour décrire ces interactions dans la gamme d'énergie étudiée s'étendant de quelques eV à quelques keV. Pour chaque modèle sélectionné nous justifierons son choix et préciserons les modifications éventuelles qui lui ont été apportées. Les caractéristiques du modèle notamment la section efficace différentielle ou le libre parcours moyen ainsi que la stratégie d'implémentation suivie seront décrites

II.3.1. Interaction élastique

II.3.1.1. Choix du modèle de Mott

Dans la section I.2.2, nous avons présenté les deux principales modélisations de l'interaction électron-noyau : le modèle classique de Rutherford et le modèle quantique par analyse des ondes partielles.

Le domaine de validité du modèle de Rutherford est restreint à un domaine d'énergie s'étendant au-delà de 1 keV. Bien que ce modèle a été amélioré en introduisant le paramètre d'écrantage, cette limite a été abaissée mais n'atteint guère quelques centaines d'eV et par conséquent ne peut être utilisé dans le domaine d'énergie qui nous intéresse.

En ce qui concerne l'approche quantique de l'interaction par analyse des ondes partielles, une grande variété de calculs a été effectuée au cours des 30 dernières années pour obtenir des données sur des sections efficaces différentielles pour les éléments chimiques sélectionnés en utilisant différents potentiels d'interaction. Les travaux qui sont le plus fréquemment cités sont ceux de Reimer et Lodding [REI-84], Czyzewski et co. [CZY-90], Drouin et co. [DRO-97] et Jablonski et co. [JAB-04]. Ce dernier donne une liste plus complète des calculs de la section efficace différentielle utilisant divers modèles du potentiel d'interaction ainsi qu'une description détaillée de la physique qui en est à la base. Dans tous les cas le calcul de la section efficace élastique est basé sur la méthode de développement en ondes partielles

(Partial Wave Expansion Method) sous sa forme relativiste. Czyzewski et al [CZY-90] ont également fait une étude critique sur le choix du potentiel d'interaction et son effet sur la section efficace différentielle élastique. La présence de l'atome diffuseur dans un environnement solide modifie bien entendu les caractéristiques des collisions élastiques des électrons. La région extérieure d'un atome libre qui est responsable des diffusions à petits angles est très réduite dans un solide. L'utilisation d'un potentiel *muffin-tin*¹ en lieu et place d'un potentiel atomique permet de tenir compte de cet effet. En plus du potentiel coulombien⁸ il est indispensable de tenir compte des effets de polarisation⁹ qui apporte une contribution à petits angles de diffusion et d'échange¹⁰ et relativistes¹¹ [DIN-96]. Les effets d'échange et relativistes contribuent aux sections efficaces à des grands angles de diffusion [KWE-98]. En prenant en compte ces éléments, nous avons choisi d'utiliser le modèle de Mott pour l'interaction élastique.

II.3.1.2. Choix de la base de données

L'analyse en ondes partielles associée au modèle de Mott est complexe et nécessite une grande quantité de calculs laborieux. Ainsi, par souci de simplification et de gain de temps de traitement, plutôt que d'intégrer ces calculs dans notre programme nous avons opté pour l'exploitation d'une des nombreuses bases de données mises à disposition de la communauté scientifique par les chercheurs ayant traité ce sujet. Ces bases de données fournissent les sections efficaces différentielle et totale pour des électrons dans un large domaine d'énergie et pour presque tous les éléments de la table de Mendeleïev. Les bases de données diffèrent souvent par les ingrédients utilisés dans le modèle de diffusion et plus particulièrement le potentiel d'interaction. Les plus répandues sont celles préparées par Berger et Seltzer [BER-99] et par Jablonski et co. [JAB-03] et publiées par l'Institut National des Standards et de Technologie (NIST) [NIS]. Toutefois, les modèles associés à ces deux bases souffrent d'une insuffisance dans la description de la diffusion élastique car les effets notamment d'échange et

⁸ Potentiel du cœur ionique et des couches électroniques de l'atome dans la cible

⁹ Polarisation de l'atome dans le solide par le champ électrique de la particule incidente qui induit un moment dipolaire qui crée à son tour un champ électrique qui agit sur la particule (action attractive); on introduit un potentiel du dipôle de polarisation avec une distance « *cutoff* » égale au rayon de Wigner-Seitz.

¹⁰ Potentiel d'échange dû aux échanges de places entre les électrons incidents et les électrons atomiques.

¹¹ Interaction spin-orbite inversement proportionnel à la vitesse de la particule : le champ magnétique créé par la particule est vue par celle-ci comme un champ extérieur qui agit sur son spin : la particule fortement déviée par le potentiel atomique quand elle est lente présente un moment orbital élevé. Le couplage spin-orbite est donc fort.

de polarisation ne sont pas pris en considération. D'autre part, ces bases de données ne donnent pas d'information sur les amplitudes de diffusion et sur la polarisation du spin. La base de données, évolution de la base de Jablonski et co. [JAB-03], issue du logiciel ELSEPA (*ELastic Scattering of Electrons and Positrons by Atoms*), basé sur les calculs de Salvat et co. [SAL-05], est de loin la plus répandue et plus précise car elle est en accord avec l'expérience et avec d'autres calculs utilisant des potentiels divers et variés. Le domaine énergétique couvert va de 10 eV à 1 GeV et pour tous les éléments de numéro atomique de 1 à 103. C'est cette dernière base qui a été retenue pour mettre en œuvre nos simulations.

II.3.1.2.1. Détermination du libre parcours

Le logiciel ELSEPA donne accès à un tableau de valeurs de la section efficace totale en fonction de l'énergie d'incidence. Pour un électron d'énergie d'incidence E , la section efficace totale correspondante est obtenue par interpolation linéaire (voir Annexe B). À partir de cette section efficace totale est calculé le libre parcours moyen selon l'expression (I-6). Ensuite, à partir de ce libre parcours moyen d'interaction électron-noyau, le libre parcours de l'interaction est échantillonné avec un nombre aléatoire équidistribué R entre 0 et 1, à l'aide de l'expression (II-14).

II.3.1.2.2. Détermination de la déviation

Le logiciel ELSEPA permet de définir un tableau à double entrée de la valeur de l'angle polaire de déviation θ en fonction d'un nombre aléatoire R équidistribué entre 0 et 1 et de l'énergie d'incidence. Dans le programme de simulation, la valeur de θ , pour une énergie E_0 et un nombre tiré aléatoirement entre 0 et 1, est obtenue par interpolation linéaire (voir Annexe B). L'angle azimutal φ quand à lui est déterminé par un tirage aléatoire dans une distribution uniforme entre 0 et 2π .

II.3.1.3. Section efficace différentielle

Les sections efficaces différentielles, $d\sigma/d\Omega$, obtenues avec ELSEPA pour différentes énergies d'incidence sont représentées sur la Figure II-9 en fonction de l'angle polaire de déviation θ . On constate que pour des énergies d'incidence de 1 et 5 keV, les sections efficaces décroissent de manière monotone et les faibles déviations sont privilégiées. À partir d'une énergie de 300 eV, la section efficace présente un minimum à 90° ensuite subit une augmentation au-delà de cette valeur qui traduit par conséquent une augmentation de la probabilité de subir une forte déviation. À 10, 50 et 100 eV, les sections efficaces différentielles présentent des oscillations appelées « oscillations de Ramsauer-Townsend ». Ces oscillations peuvent être expliquées qualitativement dans le cadre d'une description quasi-classique du processus de diffusion [EGE-93]. Elles indiquent qu'il existe plusieurs intervalles de déviation ayant une probabilité importante d'occurrence.

Le comportement des sections efficaces différentielles à basse énergie indique que la rétrodiffusion élastique serait plus élevée dans ce domaine d'énergie car la probabilité pour que l'électron rebrousse chemin lors d'une interaction élastique y est bien plus importante.

Dans la Figure II-10, nous avons une représentation polaire des sections efficaces différentielles présentées dans la Figure II-9. Cette représentation permet de visualiser la déviation que va subir l'électron. Ainsi on peut très clairement voir que pour 1 keV et 5 keV, il sera très faiblement dévié. Tandis qu'à 100 et 300 eV, la probabilité d'un retour en arrière de l'électron ($\theta > 90^\circ$) est non négligeable. Pour des énergies de 10 et 50 eV, les « oscillations de Ramsauer-Townsend » se traduisent par des lobes très particuliers de probabilité de déviation élevée.

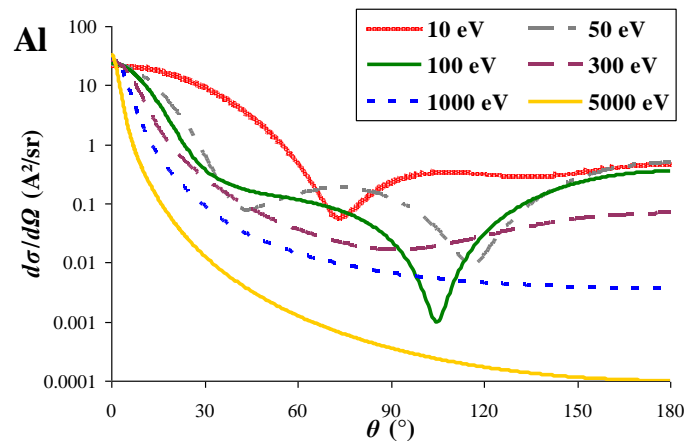


Figure II-9 : Section efficace différentielle exprimée en A^2/sr pour un électron incident de différentes énergies dans la cible d'aluminium d'après ELSEPA.

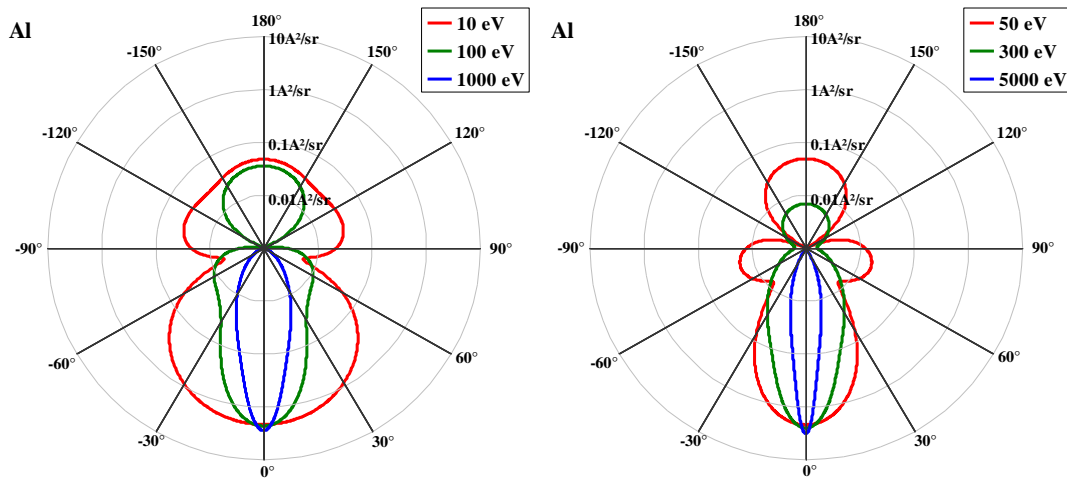


Figure II-10 : Représentation polaire de la section efficace différentielle exprimée en $\text{\AA}^2/\text{sr}$ pour un électron ayant différentes énergies dans la cible d'aluminium d'après ELSEPA.

II.3.1.4. Section efficace totale et libre parcours moyen

La section efficace totale obtenue avec ELSEPA décroît avec l'énergie de l'électron incident comme on peut le voir sur la Figure II-11. Le libre parcours moyen (LPM) de l'interaction élastique, calculé à l'aide de la relation (I-6) et de l'expression de la section efficace totale données dans la section I.2.1.2, croît avec l'énergie de l'électron. Ces allures monotones de la section efficace et du libre parcours moyen sont sujettes à caution pour des énergies inférieures à 100 eV car nombreux auteurs [CAI-90, ÖZT-91, STE-03] ont montré que ces deux grandeurs présentent un maximum quand l'énergie des électrons décroît.

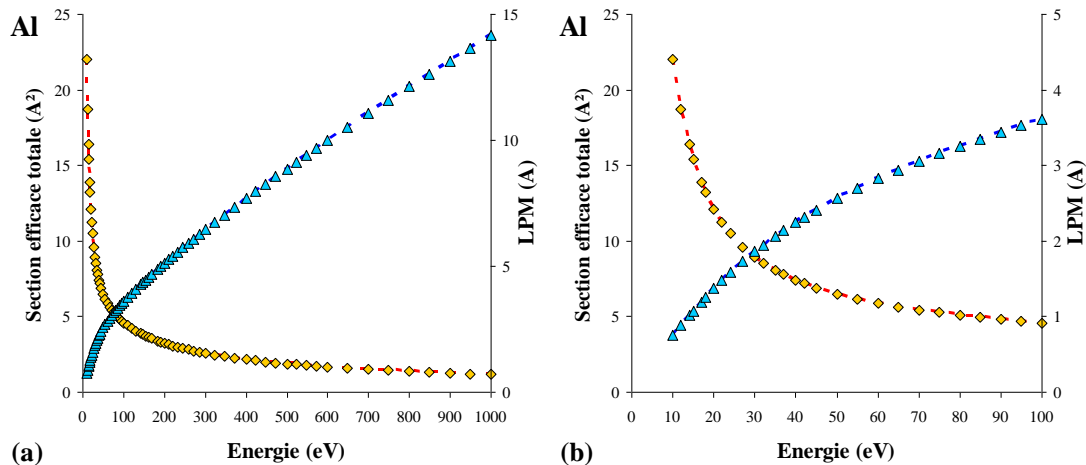


Figure II-11 : Section efficace totale en \AA^2 et LPM en \AA de l'interaction élastique électron-noyau d'aluminium obtenue avec ELSEPA en fonction de l'énergie : (a) 10 à 1000 eV, (b) 10 à 100 eV.

II.3.1.5. Critique des données à basse énergie

Cailler et Ganachaud [CAI-90] ont montré qu'aux basses énergies (< 100 eV) le libre parcours moyen élastique dans l'aluminium obtenu par la méthode d'analyse des ondes partielles est très sensible aux choix du potentiel d'interaction. Cela a été établi en comparant les résultats obtenus en utilisant le potentiel de Smrčka [SMR-70] et le potentiel donné par Pendry [PEN-74], cf. Figure II-12. L'écart observé entre les sections efficaces est attribué à la nature du terme d'échange intervenant dans le potentiel d'interaction. En effet, le terme d'échange de Slater utilisé dans l'un des potentiels est considéré tenir compte partiellement des effets de corrélation et par conséquent donne une meilleure description du potentiel dans le solide.

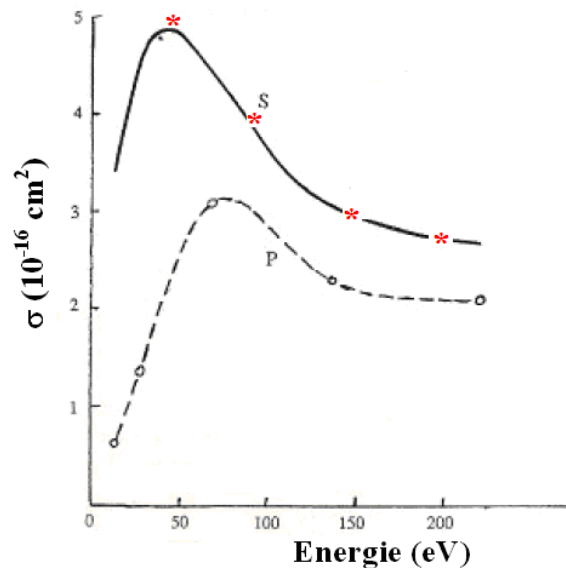


Figure II-12 : Dépendance énergétique de la section efficace élastique dans le cas de l'aluminium d'après [CAI-90]. S : potentiel de Smrčka; P : potentiel de Pendry. * : base de données ELSEPA.

En tenant compte de ces considérations et en comparant les résultats de Cailler et Ganachaud [CAI-90] obtenus à l'aide du potentiel de Smrčka à ceux de la base de données ELSEPA, voir Figure II-12, on s'aperçoit que les sections efficaces sont plus proches et ce pour des énergies supérieures à 50 eV. En revanche en dessous de cette limite les sections efficaces totales présentent des comportements différents. La section efficace obtenue par Cailler et Ganachaud [CAI-90] présente un maximum vers 50 eV et décroît pour des énergies inférieures. Cette décroissance à très basse énergie a été largement vérifiée, cependant l'énergie où se situe cette décroissance varie selon les potentiels. En effet, dans la Figure

II-12, nous voyons que le maximum n'est pas atteint à la même énergie pour le potentiel de Smrčka [SMR-70] et le potentiel de Pendry [PEN-74]. Les travaux de Stepanek [STE-03] confirment la présence du maximum mais qui n'est atteint que pour une dizaine d'eV sur une grande variété d'éléments, alors que dans les travaux d'Öztürk et co. [ÖZT-91] ce maximum est atteint vers la centaine d'eV. Ainsi, il existe une incertitude sur la position du maximum de la section efficace totale. La différence observée entre la section efficace obtenue par Cailler et Ganachaud [CAI-90] et celle obtenue avec ELSEPA peut s'expliquer par la différence de potentiel choisi.

Nous devons ainsi garder en mémoire que pour la très basse énergie (inférieure à quelques dizaines d'eV), les données d'ELSEPA sont intimement liées au potentiel choisi, et que l'on atteint la limite de validité de la modélisation de type Mott de l'interaction électron-noyau.

II.3.2. Interactions inélastiques

Comme nous l'avons exprimé au début de ce chapitre, la cible d'aluminium peut être considérée comme une distribution aléatoire d'ions Al^{3+} dans un milieu d'électrons hautement délocalisés. Les électrons dans une cible d'aluminium peuvent ainsi être séparés en deux types bien distincts (voir Figure II-13) :

- Les électrons des couches électroniques K et L (subdivisée en deux sous-couches électroniques L_1 , $L_{2,3}$) qui sont représentés comme des électrons de cœur. Ce sont donc naturellement ces électrons qui seront considérés comme prenant part à l'interaction électron-électron fortement lié.
- Les électrons de la couche électronique M qui sont représentés comme des électrons de conduction. Ce sont ces électrons qui seront considérés pour l'interaction électron-électron faiblement lié ainsi que pour l'interaction électron-plasmon.

Avant d'aborder les différents modèles qui permettent de décrire les interactions inélastiques dans l'aluminium, il est utile de rappeler les deux énergies caractéristiques, de ce dernier, utilisées lors de l'application de ces modèles. Il s'agit du travail de sortie W dont la valeur a été fixée à 4,25 eV [FOM-66] et de l'énergie de Fermi E_f . Cette dernière a été déterminée à

l'aide de la relation $E_f = \hbar^2 k_f^2 / 2m$ où k_f est le vecteur d'onde de Fermi (ou rayon de la sphère de Fermi dans l'espace des phases) et r_s est le rayon de la sphère contenant un électron de conduction de l'aluminium. Ces deux dernières grandeurs étant reliées par: $k_f = 1,92/r_s$.

La valeur de l'énergie de Fermi a été finalement fixée à 11,6 eV [ASH-76].

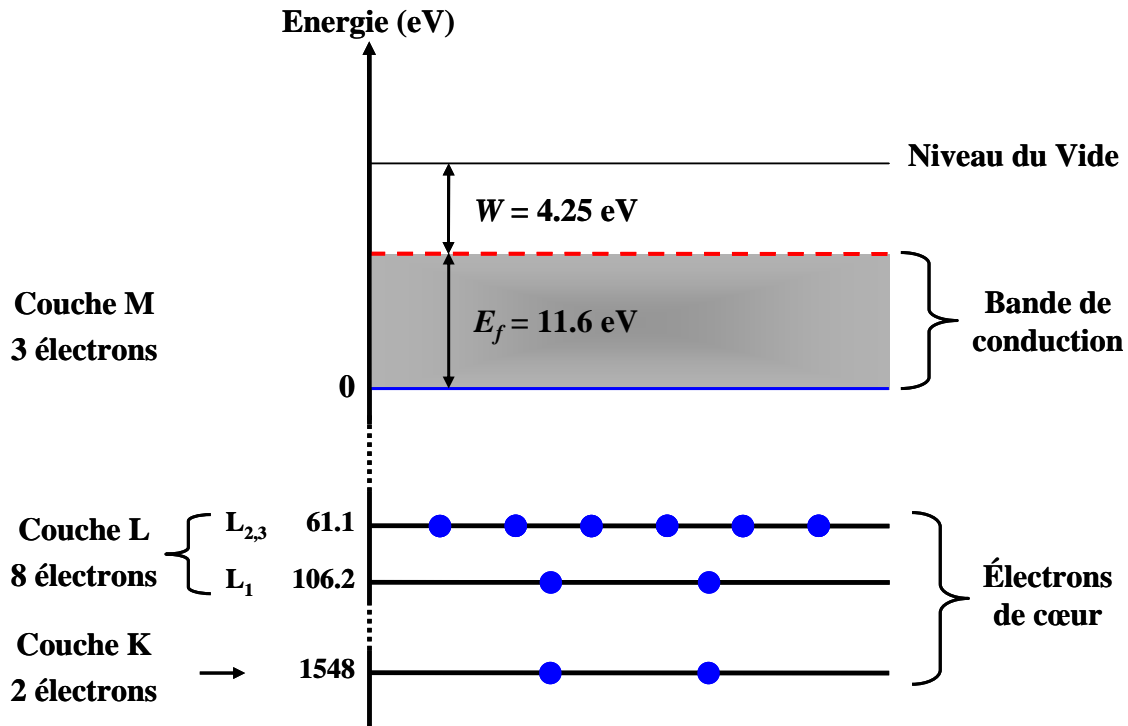


Figure II-13 : Diagramme simplifié d'énergie de l'aluminium. Les énergies indiquées pour les électrons de cœurs sont les énergies de liaison prises par rapport au bas de la bande de conduction et d'après [BEA-67].

II.3.2.1. Interactions individuelles

II.3.2.1.1. Electrons fortement liés : électrons de cœur et effet Auger

Dans le cadre de l'interaction avec les électrons fortement liés de l'aluminium ainsi que le phénomène Auger qui en résulte, les énergies de liaisons extraites des tables de Bearden et Burr [BEA-67] ont été utilisées.

II.3.2.1.1.1. Ionisation : choix du modèle

Notre simulation porte sur des énergies d'incidence allant de l'eV au keV avec un intérêt particulier pour des énergies inférieures à quelques dizaines d'eV. Comme nous pouvons le voir sur la Figure II-13, les énergies de liaisons sont de l'ordre de 1548 eV pour les électrons de la couche K et de l'ordre de 60 et 106 pour les électrons de la couche L. La couche K correspond à la limite supérieure du domaine d'énergie étudié, tandis que la couche électronique L correspond à la limite supérieure de notre domaine d'énergie de fort intérêt.

Dans la section I.2.3.1.1, deux approches ont été présentées pour décrire le phénomène d'ionisation, l'approche quantique basée sur la force d'oscillateur généralisée (GOS pour *Generalized Oscillator Strength*) et l'approche classique de Gryziński [GRY-65].

Bien que l'interaction avec les électrons fortement liés ait besoin d'être traitée pour avoir une simulation physiquement juste de l'émission électronique de l'eV au keV, elle reste inutile pour l'application à très basse énergie. Aussi, nous allons privilégier une modélisation dont l'implémentation est relativement simple à utiliser.

Dans le cas de la modélisation GOS, les travaux de Bote et Salvat [BOT-06] indiquent que cette approche perd sa validité pour des énergies d'incidence inférieures à quelques fois l'énergie de liaison de la couche électronique considérée. Dans le cas de la sous-couche électronique $L_{2,3}$ le domaine de validité correspond à des énergies de l'ordre de quelques centaines d'eV. Le formalisme mathématique associé à l'approche GOS est de surcroît relativement complexe. Il présente un coup conséquent en termes de temps de calcul, qu'il soit intégré directement au cours de la simulation ou calculé en amont de celle-ci.

L'approche de Gryziński présente le grand avantage de proposer une formulation relativement simple pour le calcul de la section efficace différentielle et totale. Cependant, il perd également sa validité lorsque l'on est proche de l'énergie de liaison de la sous-couche électronique considérée [MCF-65]. Les deux modélisations présentent le même inconvénient de validité à des énergies proches de l'énergie d'ionisation, aussi nous avons opté pour la modélisation de Gryziński dont le formalisme est le plus simple à utiliser.

II.3.2.1.1.2. Section efficace d'ionisation

L'approche de Gryziński a été adoptée et le calcul des sections efficaces différentielle et totale est donc basé sur l'expression **(I-19)** du CHAPITRE I.

II.3.2.1.1.2.1. Section efficace différentielle

La section efficace différentielle (SED) en fonction de l'énergie transférée $\hbar\omega$ est donnée par :

$$\frac{d\sigma_i(E_0, \hbar\omega, U_i)}{d\hbar\omega} = \frac{\sigma_0}{(\hbar\omega)^3} \frac{1}{x} \left(\frac{x}{x-1} \right)^{3/2} \left[y \cdot \left(1 - \frac{1}{x} \right) \cdot \frac{4}{3} \ln \left[2.718 + (x-y)^{1/2} \right] \right] \left(1 - \frac{y}{x} \right)^{1/(1+y)}$$

L'intervalle autorisé pour le transfert d'énergie est fixé par le principe de Pauli. En effet, comme l'électron excité ne doit pas se trouver dans la mer de Fermi (états occupés), il doit avoir au minimum une énergie égale à l'énergie de Fermi E_f . Il en résulte, un transfert d'énergie minimum $\hbar\omega_{\min} = U_i + E_f$ avec U_i l'énergie de liaison de l'électron dans la couche électronique considérée comme représenté dans la partie centrale de la Figure II-14. Les transferts obtenus dans le cas des sous-couches électroniques $L_{2,3}$ et L_1 sont 72,7 eV et 117,8 eV respectivement.

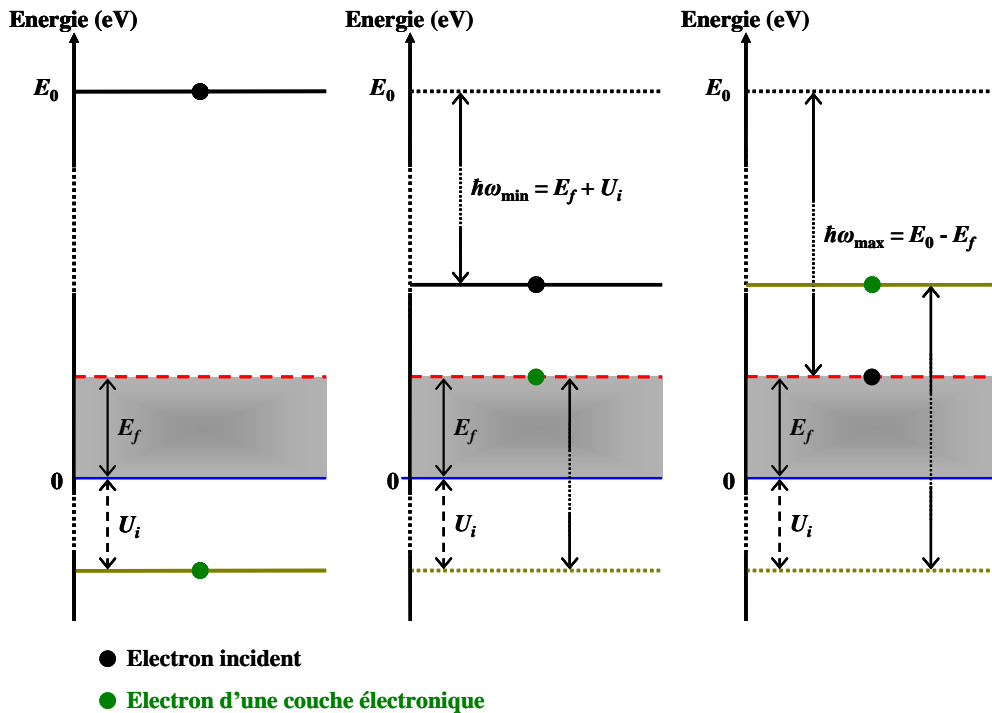


Figure II-14 : Schéma des seuils minimum et maximum de transfert d'énergie d'un électron incident d'énergie E_0 lors de l'excitation d'un électron d'une couche électronique d'énergie de liaison U_i .

L'électron incident d'énergie E_0 ne peut avoir une énergie inférieure à l'énergie de Fermi en raison du principe de Pauli, d'où une énergie de transfert maximale qui est donnée par l'expression $\hbar\omega_{\max} = E_0 - E_f$, qui est représenté dans la partie droite de la Figure II-14. Ces deux limites, impose un seuil d'interaction pour l'énergie de l'électron incident soit $E_{\text{seuil},i} = U_i + 2E_f$ en-dessous duquel il ne peut exciter un électron de cœur.

Les SED en fonction de l'énergie transférée pour les sous-couches électroniques L_1 et $L_{2,3}$ sont représentée sur la Figure II-15 pour plusieurs énergies d'incidence. Indépendamment de l'énergie d'incidence, la SED décroît de manière monotone. Les valeurs les plus probables du transfert d'énergie sont proches de l'énergie de transfert minimale pour chaque couche électronique.

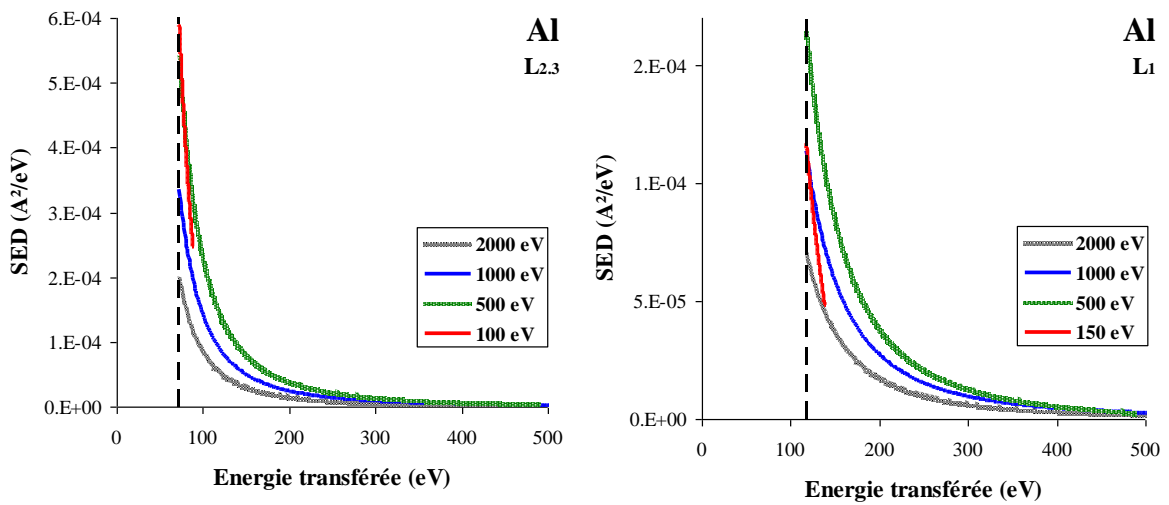


Figure II-15 : Section efficace différentielle en fonction de l'énergie transférée pour la sous-couche électronique $L_{2,3}$ (à gauche) et la sous-couche électronique L_1 (à droite). Le trait hachuré représente le seuil d'énergie transférée pour la sous-couche considérée (72.7 eV pour $L_{2,3}$ et 117.8 eV pour L_1).

II.3.2.1.1.2.2. Section efficace totale d'ionisation

L'intégration de l'expression (I-19) sur l'intervalle des valeurs autorisées pour le transfert d'énergie donne la section efficace totale d'interaction avec une couche électronique d'énergie de liaison U_i pour un électron d'énergie d'incidence E_0 :

$$\sigma_i(E, U_i) = \frac{\sigma_0}{U_i^2} \cdot \frac{1}{x} \cdot \left(\frac{x-1}{x-1} \right)^{3/2} \cdot \left[1 + \frac{2}{3} \cdot \left(1 - \frac{1}{2x} \right) \cdot \ln \left[2.718 + (x-1)^{1/2} \right] \right]$$

Les sections efficaces totales ainsi que les libre parcours moyen de l'interaction pour les sous-couches électronique L_1 et $L_{2,3}$ sont représentés sur la Figure II-16. On note une section efficace totale plus importante pour la sous-couche électronique $L_{2,3}$ et un écart important entre les libres parcours moyen. Cet écart est dû au plus grand nombre d'électrons dans la sous-couche $L_{2,3}$ par rapport à la sous-couche L_1 . La section efficace totale d'interaction avec la couche électronique K représentée sur la Figure II-17 est beaucoup plus faible que celles des sous-couches L_1 et $L_{2,3}$. En effet, pour une énergie d'incidence de 2 keV, notamment, elle est trois ordres de grandeurs plus faibles que celle de la sous-couche L_1 . Ainsi, dans la gamme d'énergie que nous considérons, l'interaction avec la couche électronique K est extrêmement faible et ne sera donc pas prise en considération. Nous ne traiterons finalement que l'ionisation de la couche électronique L avec ses sous-couches L_1 et $L_{2,3}$.

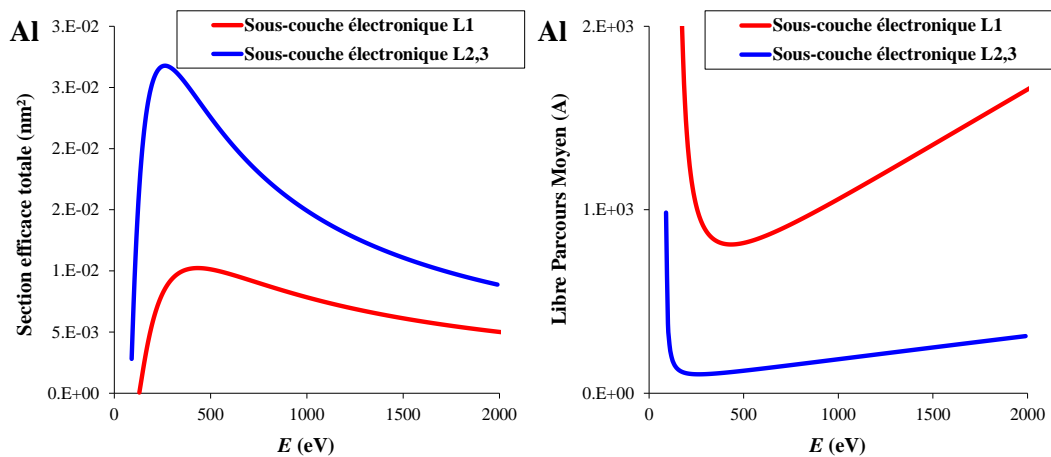


Figure II-16 : Section efficace totale en \AA^2 et libre parcours moyen en \AA des sous-couches électroniques L_1 et $L_{2,3}$ de l'aluminium obtenue avec le modèle de Gryziński.

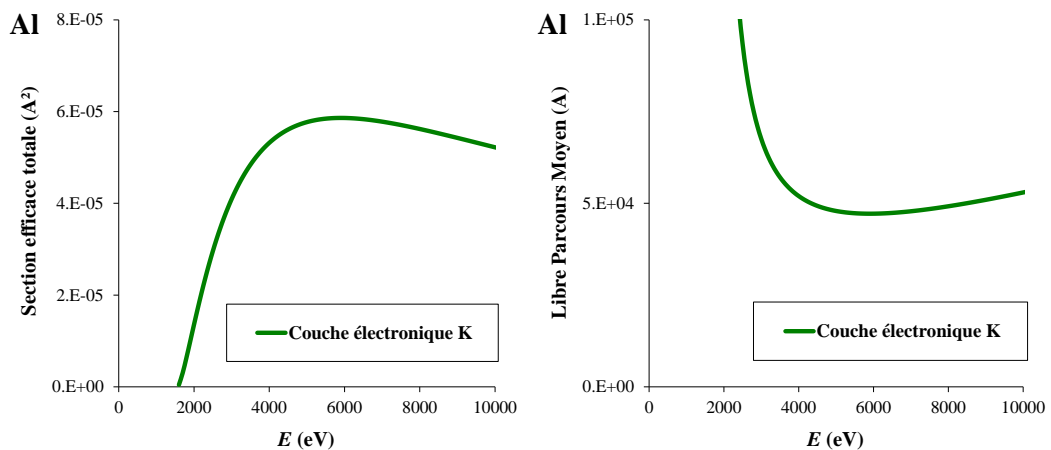


Figure II-17 : Section efficace totale en \AA^2 et libre parcours moyen en \AA de la couche électronique K de l'aluminium obtenue avec le modèle de Gryziński.

II.3.2.1.1.3. Implémentation du modèle de Gryziński

II.3.2.1.1.3.1. Libre parcours

Avant de déterminer le libre parcours de l'interaction, Nous effectuons une sélection de la couche électronique avec laquelle l'électron incident va potentiellement interagir.

Une section efficace totale d'ionisation σ_{tot} est déterminée à partir des sections efficaces totales d'ionisation des i couches électroniques telle que :

$$\sigma_{tot} = \sum_{j=1}^i \sigma_j. \quad (\text{II-15})$$

Le terme σ_j représente la section efficace d'ionisation de la $j^{\text{ème}}$ couche électronique. La sélection de la couche électronique p qui va avoir lieu s'effectue, avec un nombre aléatoire R équiréparti entre 0 et 1, de la manière suivante :

$$\sum_{j=1}^{p-1} \frac{\sigma_j}{\sigma_{tot}} < R \leq \sum_{l=1}^p \frac{\sigma_l}{\sigma_{tot}}. \quad (\text{II-16})$$

Une fois la couche électronique p sélectionnée, on peut alors tirer un libre parcours l_p à partir du libre parcours moyen λ_p de l'ionisation de la couche électronique p . L'échantillonnage s'effectue avec un nombre aléatoire R distribué uniformément entre 0 et 1 par l'application de la relation **(II-14)**.

II.3.2.1.1.3.2. Transfert d'énergie

Le transfert d'énergie $\hbar\omega$ suite à l'ionisation de la couche électronique p est échantillonné en utilisant l'expression de la SED **(I-19)**. Cette expression étant difficile à intégrer et à inverser, la méthode des rejets a été choisie pour effectuer l'échantillonnage. Ce dernier est effectué dans l'intervalle $[\hbar\omega_{\min}, \hbar\omega_{\max}]$ défini précédemment dans la section II.3.2.1.1.2.1. Une fois que le transfert $\hbar\omega$ a été déterminé, l'énergie E_1 de l'électron incident après interaction est donnée par l'expression : $E_1 = E_0 - \hbar\omega$.

II.3.2.1.1.3.3. Déviation de l'électron incident

Cette déviation est caractérisée par l'angle polaire θ et l'angle azimutal φ . Ce dernier est considéré comme distribué uniformément entre 0 et 2π et est donc échantillonné de la manière suivante : $\varphi = 2\pi \cdot R$. Le terme R est un nombre aléatoire équidistribué entre 0 et 1.

La détermination de θ se fait dans le cadre du modèle de Gryziński, qui traite le cas classique d'une collision binaire entre un électron incident en mouvement et un électron d'une couche électronique de l'atome, et de l'approximation qui considère ce dernier comme étant au repos au moment de l'interaction. L'expression de l'angle polaire θ obtenue dans ce cas [GRY-65] est :

$$\cos \theta = \sqrt{1 - \frac{\hbar\omega}{E_0}}. \quad (\text{II-17})$$

II.3.2.1.1.3.4. Détermination des caractéristique de l'électron excité

L'électron excité est considéré comme mis en mouvement là où a lieu l'interaction. Son énergie cinétique E est donnée par l'expression suivante :

$$E = \hbar\omega - U_p, \quad (\text{II-18})$$

avec $\hbar\omega$ l'énergie cédée par l'électron incident et U_p l'énergie de liaison de l'électron dans la couche électronique p concernée par l'ionisation. Sa direction d'émission est obtenue en tenant compte de la conservation de la quantité de mouvement. Cet électron étant supposé au repos avant interaction, son angle polaire de déviation ψ est obtenu, connaissant θ par la relation suivante (voir Figure II-18) :

$$\cos \theta = \sin \psi. \quad (\text{II-19})$$

Concernant l'angle azimutal, ζ , il a une distribution uniforme entre 0 et 2π et est donc échantillonné de la manière suivante : $\zeta = 2\pi \cdot R$. R est un nombre aléatoire équidistribué entre 0 et 1.

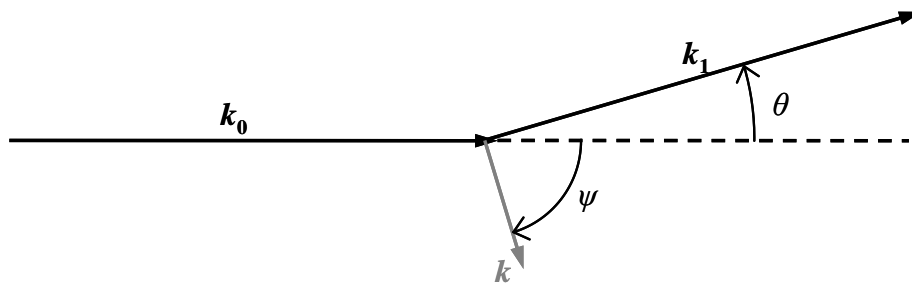


Figure II-18 : Schéma de la conservation du vecteur d'onde dans le cas d'un électron de cœur considéré au repos.

II.3.2.1.1.4. Désexcitation de l'atome ionisé : effet Auger

En tenant compte des considérations sur la section efficace d'ionisation (section II.3.2.1.1.2.2), seule l'interaction avec la couche électronique L est considérée.

La désexcitation de l'atome ionisé est traitée en même temps que l'interaction électron-électron fortement lié, puisque que ces deux processus sont intimement liés (voir section I.2.3.1.1.2). Le phénomène de désexcitation peut se produire via deux mécanismes complémentaires, l'émission radiative (émission X) ou l'émission non radiative (effet Auger). Ces mécanismes sont respectivement conditionnés par ce qu'on appelle le rendement de fluorescence et le rendement Auger. Connaissant ces rendements il est possible de déterminer le poids de chaque mécanisme suite à la désexcitation. Les tables les plus répandues qui en donnent les valeurs pour différents éléments chimiques ($Z \geq 3$) sont celles données dans les travaux de Krause [KRA-79]. En tenant compte de ces tables ; la désexcitation radiative de la couche L de l'aluminium n'est pas considérée dans nos simulations car son rendement de fluorescence est de l'ordre de 10^{-4} . En revanche, le mécanisme non radiatif est pris en compte suivant les deux émissions possibles, l'émission Auger et l'émission Coster-Kronig. Les rendements respectifs de ces dernières sont donnés dans le Tableau II-1. Ce tableau montre que l'émission Coster-Kronig est dominante dans le cas de la couche L_1 alors que c'est l'émission Auger qui l'est dans le cas de la couche $L_{2,3}$.

Tableau II-1 : Valeurs des rendements Auger et Coster-Kronig utilisé dans notre simulation. Ces rendements sont issus de [KRA-79].

Couche électronique	Rendement Auger	Rendement Coster-Kronig	Rendement de fluorescence
L ₁	0,035	0,965	0
L _{2,3}	1	0	0

II.3.2.1.1.4.1. Nature de la transition

La couche électronique i concernée par la désexcitation a été déterminé lors du traitement de l'interaction électron-électron fortement lié. On détermine le processus de transition j qui a lieu avec un nombre aléatoire R équidistribué entre 0 et 1 de la manière suivante :

$$\sum_{k=1}^{j-1} Tr_k < R \leq \sum_{k=1}^j Tr_k . \quad (\text{II-20})$$

Le terme Tr_k représente le $k^{\text{ème}}$ rendement du processus de transition. Dans notre cas, le tirage s'effectue entre l'émission Auger et l'émission Coster-Kronig.

II.3.2.1.1.4.2. Énergie de l'électron Auger

Dans notre étude, nous nous limitons à l'excitation des électrons de la couche électronique L. Ainsi une transition Auger dans l'aluminium à partir de l'ionisation d'un électron d'une sous-couche électronique L_i se fera par le déplacement d'un électron de la couche M et l'émission d'un électron de la couche M. Ces électrons de la couche M sont dans la bande de conduction. L'énergie cinétique de l'électron Auger émis notée, E_{L_iMM} , peut être estimée de façon approximative à l'aide de l'expression (I-21) de Chung et Jenkins [CHU-70] :

$$E_{L_iMM} = E_{L_i}(Z) - E_{M,1} - E_{M,2} . \quad (\text{II-21})$$

Le terme E_{L_iMM} désigne l'énergie de l'électron émis, $E_{L_i}(Z)$ est l'énergie de liaison de la couche électronique ionisée. Les termes $E_{M,1}$ et $E_{M,2}$ représentent respectivement l'énergie de l'électron de la bande de conduction qui remplit la lacune dans la sous-couche L_{i+1} et l'énergie de l'électron de la bande de conduction qui sera émis. Ces énergies sont déterminées connaissant la densité d'état de la bande de conduction.

II.3.2.1.1.4.3. Énergie de l'électron émis par effet Coster-Kronig

Notre étude, est limitée à l'excitation des électrons de la couche électronique L. Ainsi une transition Coster-Kronig dans l'aluminium à partir de l'ionisation d'un électron d'une sous-couche électronique L_i se fera par le déplacement d'un électron de la couche L_{i+1} et l'émission d'un électron de la bande M, c.-à-d. de la bande de conduction. Ayant deux sous-couches électroniques L_1 et $L_{2,3}$, la transition Coster-Kronig ne concerne que l'ionisation de la sous-couche L_1 . Ainsi l'expression de Chung et Jenkins [CHU-70] **(II-21)** devient :

$$E_{L_1L_{2,3}M} = E_{L_1}(Z) - \frac{1}{2} [E_{L_{2,3}}(Z) + E_{L_{2,3}}(Z+1)] - E_M. \quad \text{(II-22)}$$

Z est le numéro atomique de l'élément excité (ici l'aluminium), $E_{L_1}(Z)$ est l'énergie de liaison de la couche électronique ionisée. Les termes $E_{L_{2,3}}(Z)$ et $E_{L_{2,3}}(Z+1)$ sont respectivement les énergies de liaison de la couches $L_{2,3}$ de l'aluminium et du silicium. Dans ce dernier cas l'énergie de liaison prend la valeur de 88,02 eV [BEA-67]). Le terme E_M représente l'énergie de l'électron dans la bande de conduction qui sera émis. Cette énergie est également déterminée à l'aide de la densité d'état de la bande de conduction.

II.3.2.1.1.4.4. Direction de l'électron émis

Qu'il s'agisse de l'émission Auger ou Coster-Kronig, la direction d'émission de l'électron émis est déterminée de la même manière en supposant que l'émission est isotrope (il n'existe pas de direction d'émission privilégiée). L'angle polaire θ et azimutal φ de l'électron émis sont ainsi déterminés :

$$\begin{aligned}\theta &= \cos^{-1}(2 \cdot R_\theta - 1) \\ \varphi &= 2\pi \cdot R_\varphi\end{aligned}\quad (\text{II-23})$$

Les termes R_θ et R_φ sont deux nombres aléatoires distincts équidistribués entre 0 et 1 utilisés respectivement pour la détermination des angles polaire et azimutal.

II.3.2.1.2. Electrons faiblement liés :

Les électrons faiblement liés dans l'aluminium sont les électrons de la bande de conduction constituée d'un continuum de niveaux énergétiques dont le niveau occupé le plus élevé est le niveau de Fermi d'énergie, E_f . Ces niveaux d'énergies sont décrits, dans le cadre du modèle des électrons libres, par l'expression de la densité d'états suivante [KIT-76] :

$$g(E_i) = \frac{3}{2} \cdot \frac{n}{E_f} \sqrt{\frac{E_i}{E_f}} \quad (\text{II-24})$$

Où n représente la densité électronique et E_i l'énergie cinétique de l'électron dans la bande de conduction. Cette densité permet d'avoir l'énergie initiale de l'électron de conduction avec lequel l'électron incident va interagir. La comparaison de cette densité d'état avec une densité d'état plus réaliste faite par Smrčka [SMR-70] représenté sur la Figure II-19, montre que pour l'aluminium l'utilisation de l'expression (II-24) est une approximation acceptable. Dans l'ensemble de nos traitements de la densité d'état des électrons de conduction c'est l'expression (II-24) qui sera alors utilisée.

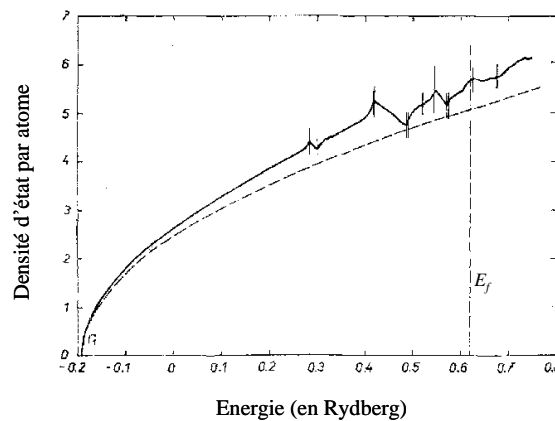


Figure II-19 : Densité d'état de électron de conduction de l'aluminium calculé par Smrčka [SMR-70] (trait plein) et donné par le modèle de l'électron libre (trait hachure). Le trait hachure vertical représente l'énergie de Fermi.

Après cette brève introduction sur les électrons faiblement liés nous allons présenter les modèles choisis pour la description de l'interaction individuelle électron-électron faiblement lié et nous allons donner les différents arguments qui ont motivés ce choix.

II.3.2.1.2.1. Modèles et formalismes

Un premier aperçu sur l'interaction électron-électron de conduction ainsi que sur les diverses variantes de modèles couramment associés a été déjà donné dans la section I.2.3.1.2. L'ensemble de ces variantes, généralement issu de la théorie diélectrique, est, entre autre, basé sur l'approximation d'un transfert de quantité de mouvement q faible par rapport à la quantité de mouvement de l'électron incident k_0 . En-dessous de quelques dizaines d'eV, cette approximation perd de sa validité.

Une analyse critique du choix de telle ou telle variante pour simuler l'émission électronique de l'aluminium a été proposée par Dubus et co. [DUB-93]. Elle consiste à comparer les libres parcours moyens obtenus respectivement par les modèles notamment de Lindhard [LIN -54], Mermin [MER-70] et Vashishta-Singwi [VAS-72]. Cette comparaison présentée dans la Figure II-20 montre que l'écart observé entre les différents modèles n'est pas très significatif. Il en découle ainsi une faible influence du choix du modèle sur la contribution de l'excitation des électrons liés sur le rendement d'émission électronique calculé. Cependant, les écarts les plus notables sur le libre parcours moyen ont été observés pour des énergies d'incidence inférieures à quelques dizaines d'eV, domaine d'énergie qui nous intéresse plus particulièrement et qui nécessite un modèle adapté remédiant aux insuffisances des autres modèles. Le modèle de Ritchie et Ashley [RIT-65] dont la validité est restreinte à quelques dizaines d'eV et qui répond à cette prérogative a été retenu pour conduire nos simulations. Ce modèle propose une formulation de la section efficace différentielle et totale de l'interaction pour des électrons ayant une énergie proche de l'énergie de Fermi. Pour couvrir l'autre gamme d'énergie explorée et allant de quelques dizaines d'eV à quelques keV, nous avons opté pour le modèle proposée par Chung et Everhart [CHU-77]. Ce modèle, relativement simple à mettre en œuvre, utilise le formalisme élaboré pour un gaz d'électrons libres.

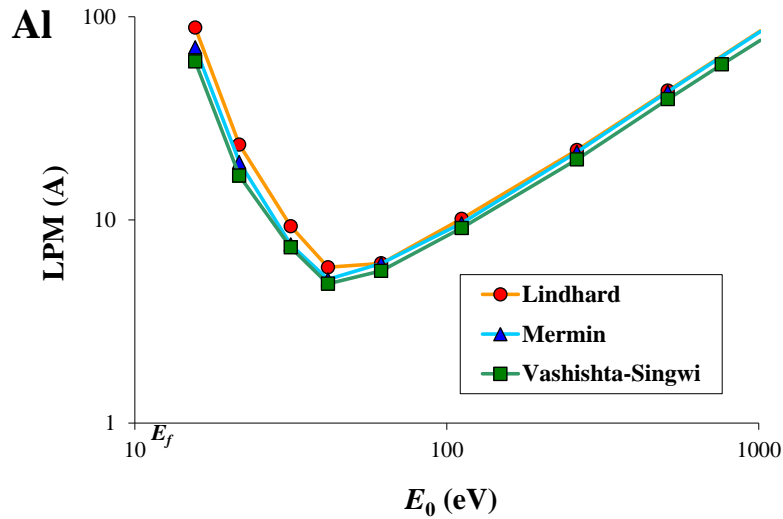


Figure II-20 : Comparaison des libres parcours moyens de l'interaction électron-électron de conduction d'après [DUB-93]

II.3.2.1.2.2. Modèle de Ritchie et Ashley

L'approche de Ritchie et Ashley [RIT-65] consiste à appliquer la théorie des perturbations à plusieurs corps¹² à la diffusion d'un électron excité dans un plasma d'électrons libres. On considère l'interaction d'un électron incident de vecteur d'onde k_0 et de spin σ_0 qui interagit avec un électron du plasma de vecteur d'onde k_i et de spin σ_i . Après interaction, nous avons deux électrons en mouvement, l'électron incident ralenti et l'électron du gaz excité, qui ont respectivement les vecteurs d'onde k_1 et k et les spins σ_1 et σ . Le diagramme de Feynman de l'interaction est représenté sur la Figure II-21(a) pour le processus direct et sur la Figure II-21(b) pour le processus avec échange.

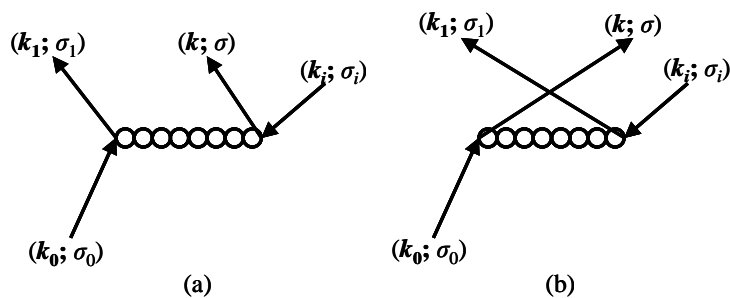


Figure II-21 : Diagramme de Feynman de l'interaction d'un électron en mouvement avec un électron du gaz de Fermi (a) par un processus direct, (b) par un processus d'échange des états.

¹² Il s'agit de traiter la corrélation électronique comme une perturbation due à la fonction d'onde d'Hartree-Fock.

L'électron incident effectue une transition d'état vers une énergie plus basse en créant une paire électron-trou. Les règles de la théorie des perturbations à plusieurs corps permettent de définir l'inverse du libre parcours moyen (ILPM) de l'interaction :

$$\lambda^{-1} = \frac{2\pi \cdot m}{\hbar \cdot k_0} \cdot \left(\frac{4\pi e^2}{\hbar} \right) \cdot \frac{1}{(2\pi)^6} \cdot \int_{|k| > k_f} d^3k \int_{|k_1| > k_f} d^3k_1 \sum_{\sigma_1, \sigma, \sigma_i} [A]^2 \cdot \quad (\text{II-25})$$

$$\times \delta[\omega(k_0) - \omega(k_1) + \omega(k_1 + k - k_0) - \omega(k)]$$

Les termes m et \hbar sont respectivement la masse de l'électron et la constante de Planck. k_f est le vecteur d'onde de Fermi. La fonction de Dirac assure la conservation de l'énergie et du spin. Le terme A qui est défini par l'expression suivante [ASH-76] :

$$A = \frac{\delta(\sigma_0, \sigma_1) \cdot \delta(\sigma_i, \sigma)}{(k_0 - k_1)^2 \cdot \varepsilon[|k_0 - k_1|, \omega(k_0) - \omega(k_1)]} \cdot \quad (\text{II-26})$$

$$\times \frac{\delta(\sigma, \sigma_0) \cdot \delta(\sigma_1, \sigma_i)}{(k_0 - k)^2 \cdot \varepsilon[|k_0 - k|, \omega(k_0) - \omega(k)]}$$

où $\omega(k) = (\hbar/2m) \cdot k^2$ et $\varepsilon(\mathbf{q}, \omega)$ est la fonction diélectrique donnée par l'expression suivante :

$$\lim_{q \rightarrow 0} \varepsilon(\mathbf{q}, \omega) = 1 + \frac{k_{FT}^2}{k_f^2} \cdot \quad (\text{II-27})$$

Avec k_f le vecteur d'onde Fermi. Le terme $k_{FT} = (12/\pi)^{-2/3} (a_0^2 \cdot r_s)$ représente le vecteur d'onde de Thomas-Fermi [ASH-76] qui rend compte de l'écrantage du potentiel et est caractéristique du matériau considéré via r_s le rayon de la sphère occupée par un électron de conduction du matériau. Le choix de l'expression de $\varepsilon(\mathbf{q}, \omega)$ est justifié par le fait que pour des excitations de faibles énergies (c.-à-d. énergie des électrons après interaction proche de l'énergie de Fermi), le vecteur d'onde de transfert \mathbf{q} est faible. Ainsi, pour des électrons incidents de très basse énergie (donc proche de l'énergie de Fermi), les énergies finales des deux électrons après interaction seront également proches de l'énergie de Fermi.

En tenant compte de l'expression (II-27) de la fonction diélectrique, l'intégration de l'équation (II-25), sur les angles de déviation polaire ψ et azimutal ζ de l'électron excité ainsi que sur l'angle de déviation azimutal φ de l'électron incident conduit à l'expression suivante de la différentielle de l'ILPM :

$$\frac{d^3 \lambda^{-1}}{dE dE_1 d\theta} = \frac{\gamma^2}{8\sqrt{2} \cdot \pi \cdot a_0} \cdot \frac{2\pi \cdot \sin \theta}{\frac{E_0}{E_f} \cdot \sqrt{1 - \cos \theta}}$$

$$\times \left\{ \begin{aligned} & \frac{1}{(2\gamma^2 + 1 - \cos \theta)^2} + \frac{1}{4\sqrt{2}\gamma^3} \cdot \frac{4\gamma^2 + 1 + \cos \theta}{(2\gamma^2 + 1 + \cos \theta)^{3/2}} \\ & - \frac{1}{\sqrt{2}\gamma} \cdot \frac{1}{(2\gamma^2 + 1 - \cos \theta) \cdot (2\gamma^2 + 1 + \cos \theta)^{1/2}} \end{aligned} \right\}. \quad (\text{II-28})$$

Le terme a_0 est le rayon de Bohr et $\gamma = \left(\frac{4}{9\pi^4}\right)^{1/6} \cdot r_s^{1/2}$. Les angles ψ , ζ , θ et φ sont définis tels que représenté sur la Figure II-22.

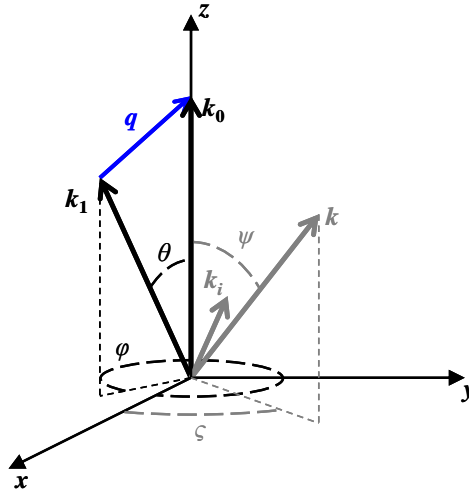


Figure II-22 : Schéma des vecteurs d'onde de l'électron incident et de l'électron de conduction avant et après interaction.

On constate que la différentielle de l'ILPM dépend seulement de l'énergie de l'électron incident, E_0 , et est indépendante de l'énergie des électrons après interaction (E_a , E_b). Cette différentielle est représentée, en fonction de l'angle polaire, sur la Figure II-23 pour trois énergies d'incidence : 20 eV, 30 eV, 40 eV. Elle est d'autant plus élevée que l'énergie E_0 est grande alors que son allure est indépendante de celle-ci. Les courbes obtenues montrent également que l'électron incident a une probabilité non négligeable d'être fortement défléchi ($\theta > 90^\circ$).

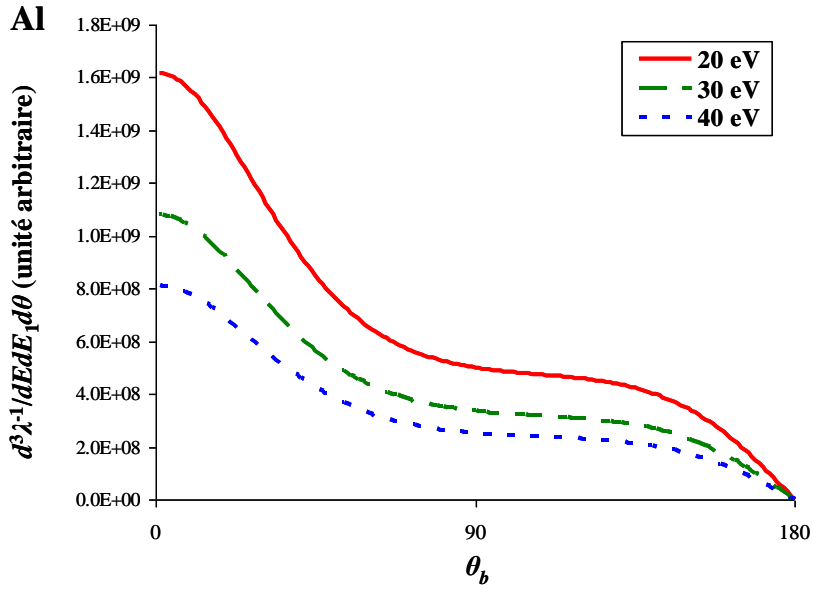


Figure II-23 : Différentielle ILPM en fonction de l'angle polaire θ de déviation pour trois énergies d'incidence d'après [RIT-65].

L'intégration de l'expression (II-28) sur toutes les directions du vecteur d'onde k_1 donne l'expression suivante :

$$\frac{d^2\lambda^{-1}}{dE dE_1} = \frac{1}{8\gamma \cdot a_0 \cdot \frac{E_0}{E_f}} \left\{ \begin{array}{l} \tan^{-1}\left(\frac{1}{\gamma}\right) + \frac{\gamma}{1+\gamma^2} \\ -\frac{\gamma}{\sqrt{1+2\gamma^2}} \cdot \tan^{-1}\left(\frac{\sqrt{1+2\gamma^2}}{\gamma^2}\right) \end{array} \right\} = \mu \cdot \frac{E_f}{E_0}. \quad (\text{II-29})$$

Le terme μ est un terme qui ne dépend que des caractéristiques de la cible, ici l'aluminium, à travers γ qui dépend de r_s (cf. l'expression (II-29)). L'intégration, relativement simple, sur E et E_1 donne le libre parcours moyen (LPM) de l'interaction en fonction de l'énergie de l'électron incident E_0 :

$$\lambda = \frac{4 \cdot E_0}{\mu \cdot E_f} \cdot \left(\frac{E_f}{E_0 - E_f} \right)^2. \quad (\text{II-30})$$

Cette expression du libre parcours moyen présente l'avantage d'être simple et est représenté sur la Figure II-24 en fonction de l'énergie d'incidence. Pour s'assurer du domaine de validité du modèle adopté, cette représentation a été volontairement prolongée jusqu'à 100 eV. En effet, à l'opposé des libres parcours moyens présentés sur la Figure II-20 qui montrent une

remonté au-delà de la quarantaine d'eV, le libre parcours moyen obtenu décroît de façon monotone. Ceci montre clairement qu'à partir de quelques dizaines d'eV, le modèle n'est plus valable et son utilisation sera par conséquent restreinte à des énergies d'incidence qui ne dépassent pas la quarantaine d'eV. Lorsque E_0 tend vers E_f , le libre parcours moyen augmente brutalement et devient très grand pour $E_0 \sim E_f$. Ceci traduit le fait que l'électron incident a une très faible probabilité d'interagir avec un électron de la bande de conduction quand l'électron incident a une énergie cinétique proche du niveau de Fermi.

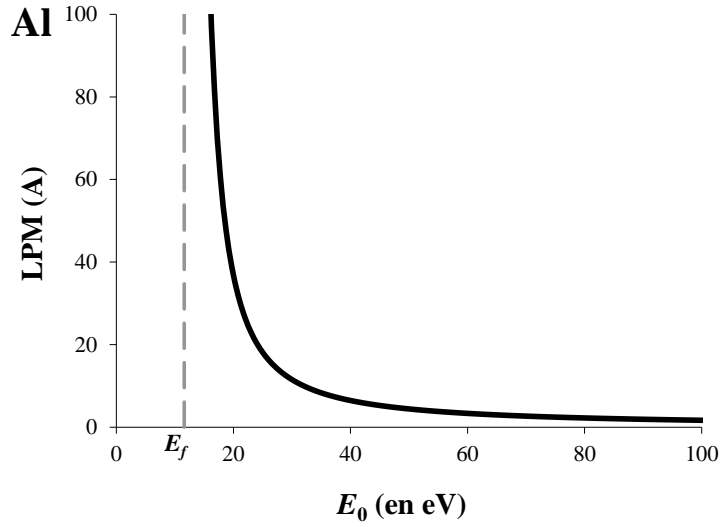


Figure II-24 : Libre parcours moyen de l'interaction électron-électron en fonction de l'énergie de l'électron incident d'après [RIT-65].

II.3.2.1.2.3. Modèle de Chung et Everhart

Dans cette approche [CHU-77], le traitement de l'interaction électron-électron de conduction est basé sur la probabilité de transition $W(l_i, \vec{k}_i \rightarrow l, \vec{k})$ d'un électron du plasma de l'état $|l_i, \vec{k}_i\rangle$ à l'état $|l, \vec{k}\rangle$ (équation (I-23)) :

$$W(l_i, \vec{k}_i \rightarrow l, \vec{k}) = \frac{32\pi^3 e^4}{\hbar \Delta^2 q^4} \cdot \frac{|\langle l\vec{k} | l_i \vec{k}_i \rangle|^2}{|\varepsilon(\vec{q}, \omega)|^2} \times \delta_{\vec{k}, \vec{k}_i + \vec{q}} \delta(E_{l\vec{k}} - E_{l_i \vec{k}_i} - \hbar\omega). \quad (\text{II-31})$$

la même approximation que Ritchie et Ashley, à savoir l'expression (II-27) a été utilisée pour exprimer la fonction diélectrique $\varepsilon(q, \omega)$. Les électrons de conduction étant considérés comme

faisant partie d'un plasma d'électrons libres, le terme $\langle l\vec{k} | l_i \vec{k}_i \rangle$ est égal à l'unité. Les nombres l et l_i sont abandonnés car on considère le cas d'un continuum d'états. Le taux de transition total W_T correspondant à la mise en mouvement d'un électron de vecteur d'onde \vec{k} est obtenu à l'aide de l'expression (II-31) tenant compte de l'approximation (II-27):

$$W_T(\vec{k}) = \frac{2\pi \cdot m \cdot e^4}{\Delta \hbar^3 \cdot |\vec{k}_0 - \vec{k}| \cdot k_{FT}^2} \cdot \left\{ \begin{array}{l} 1 - (k^2 - k_f^2 + q_{FT}^2) \times \\ \left[\begin{array}{l} (k^2 - k_f^2)^2 \\ + 2k_{FT}^2 \times \left(k^2 + k_f^2 - \frac{2|\vec{k} \cdot (\vec{k}_0 - \vec{k})|^2}{|\vec{k}_0 - \vec{k}|^2} \right) \\ + k_{FT}^4 \end{array} \right]^{1/2} \end{array} \right\}. \quad (\text{II-32})$$

Il est possible de déterminer la différentielle de l'ILPM en divisant l'expression (II-32), par la vitesse de l'électron incident et en l'intégrant sur \vec{k} . À l'aide de la relation $E = \hbar^2 k^2 / 2m$ et en effectuant l'approximation $\vec{k}_0 - \vec{k} \approx \vec{k}_0$, Chung et Everhart ont alors obtenu la différentielle de l'ILPM pour une variation élémentaire d'énergie de l'électron excité dE et pour un angle solide élémentaire $d\Omega_\psi$ dirigé dans la direction de l'angle polaire ψ de l'électron excité :

$$\frac{d^2 \lambda^{-1}}{dE d\Omega_\psi} = \Re \frac{k_{FT}}{4\pi^2 E_0 \cdot E_{FT}^{3/2}} \times \left[1 - \frac{E - E_f + E_{FT}}{\sqrt{(E - E_f)^2 + 2E_{FT} \cdot (E + E_f - 2E \cdot \cos \psi) + E_{FT}^2}} \right]. \quad (\text{II-33})$$

\Re désigne la constante de Rydberg¹³ et le terme E_{FT} l'énergie associée au vecteur d'onde de Thomas-Fermi telle que $E_{FT} = \hbar^2 k_{FT}^2 / 2m$. L'intégration sur $d\Omega_\psi$, donne l'expression de la différentielle de l'inverse du libre parcours moyen pour un élément d'énergie dE de l'électron excité :

¹³ La constante de Rydberg décrit l'énergie fondamentale de l'atome d'hydrogène. Elle est aussi appelée « énergie de Rydberg » et vaut 13.6 eV.

$$\frac{d\lambda^{-1}}{dE} = \left(2\pi \cdot E_0 \cdot \mathfrak{R} \cdot \beta^3 \cdot k_F^3 \cdot a_0^4\right)^{-1} \times \left[\begin{array}{l} 2\beta \cdot E_F - (E - E_f + E_{FT}) \\ \times \sin^{-1} \left(\frac{2\beta \cdot E_f}{\left[(E - E_f)^2 + 2E_{FT}(E + E_f) + E_{FT}^2 \right]^{1/2}} \right) \end{array} \right], \quad (\text{II-34})$$

où $\beta = k_{FT}/k_f$. À partir de cette expression, nous pouvons déterminer le libre parcours moyen de l'interaction en intégrant sur l'énergie de l'électron excité. La Figure II-25 représente $d\lambda^{-1}/dE$ pour des énergies d'incidence de 50, 100, 500 et 1000 eV. L'allure des courbes est indépendante de l'énergie d'incidence. La décroissance en fonction de l'énergie indique que l'électron de conduction après interaction aura plus probablement une énergie faible et par conséquent une section efficace d'interaction plus faible. L'énergie maximale que peut avoir l'électron excité est $E_{\max} = E_f + \hbar\omega_{\max}$ et puisque l'on a $\hbar\omega_{\max} = E_0 - E_f$, l'énergie maximale que peut avoir l'électron excité est E_0 .

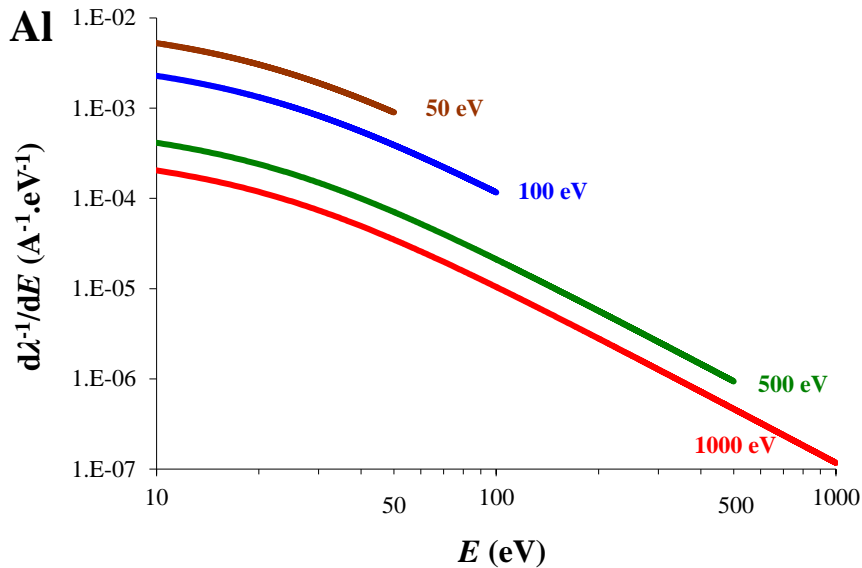


Figure II-25 : Représentation de l'inverse du libre parcours moyen différentiel $d\lambda^{-1}/dE$ en fonction de l'énergie E de l'électron du plasma excité pour différentes énergies d'incidence d'après [CHU-77].

Le libre parcours moyen de l'interaction est déterminé en intégrant l'expression (II-34), sur l'énergie de l'électron excité E . Il est représenté sur la Figure II-26 pour des énergies d'incidence de 40 à 1000 eV (la très basse énergie n'a pas été calculée puisque nous ne la traitons pas avec ce modèle). L'approximation $\vec{k}_0 - \vec{k} \approx \vec{k}_0$ utilisée pour obtenir l'expression

(II-33) rend invalide ce formalisme lorsque l'énergie de l'électron incident est de l'ordre de quelques fois l'énergie de Fermi.

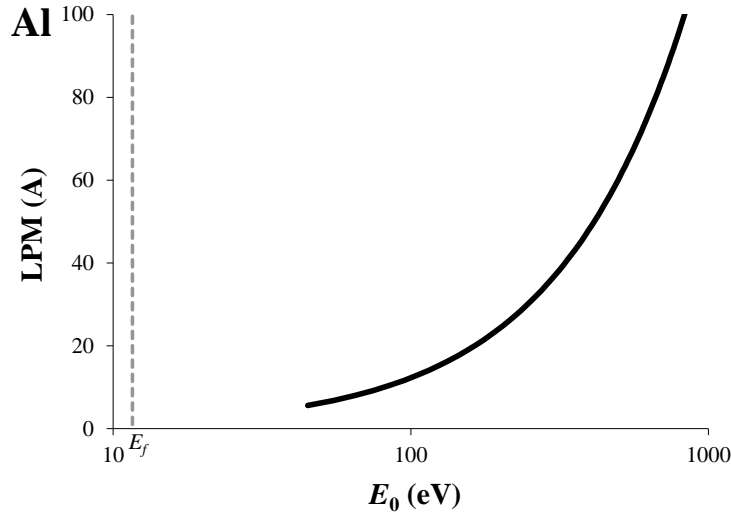


Figure II-26 : Libre parcours moyen de l'interaction électron-électron de conduction en fonction de l'énergie de l'électron incident d'après Chung et Everhart [CHU-77].

II.3.2.1.2.4. Implémentation des deux modèles

II.3.2.1.2.4.1. Limite de validité des modèles

Désormais, pour traiter l'interaction électron-électron de conduction, rappelons que le modèle de Ritchie et Ashley concerne les énergies d'incidence inférieures à une limite de quelques dizaines d'eV alors que celui de Chung et Everhart concerne les énergies au-delà de cette limite mais dans un domaine d'énergie inférieur à 1 keV. Après avoir calculé les libres parcours moyens associés à chaque modèle, leur point de croisement a été déterminé. Dans le cas du matériau étudié ce croisement s'effectue à une énergie de 44 eV comme le montre la Figure II-27. Cette énergie, qui constitue une limite inférieure ou supérieure de validité pour chacun des deux modèles, impose pour le modèle de Ritchie et Ashley, le domaine d'énergie qui s'étend de E_f à $E_0 = 44$ eV et pour celui de Chung et Everhart le domaine d'énergie de $E_0 = 44$ à $E_0 = 1$ keV.

Le libre parcours moyen obtenu pour l'interaction électron-électron de conduction est comparé, voir Figure II-28, à des données de la littérature : des mesures du libre parcours

moyen de l'électron effectué par Kanter [KAN-70], le libre parcours moyen calculé par Ganachaud [GAN-77], ainsi que les libres parcours calculés par Dubus et co.[DUB-93] et présentés précédemment sur la Figure II-20. L'accord est très satisfaisant aussi bien avec l'expérience qu'avec la théorie. Cependant, les valeurs obtenues avec le modèle de Chung et Everhart restent un peu élevées. Cet écart est lié en partie aux différentes approximations adoptées pour traiter les électrons de conduction.

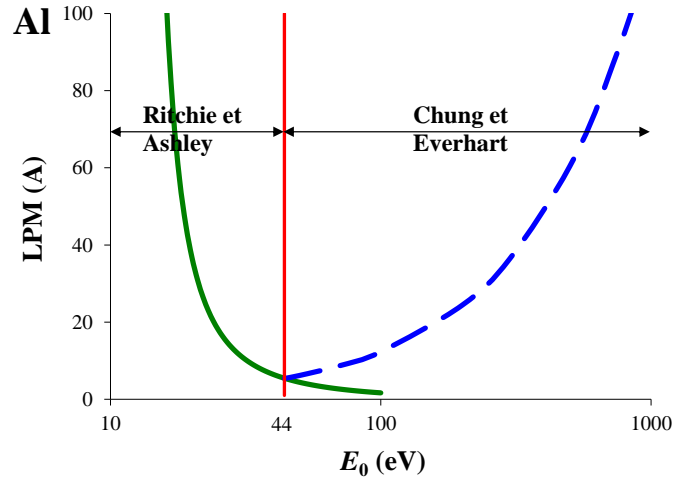


Figure II-27 : Libres parcours moyens obtenus avec les modèles de Ritchie et Ashley et de Chung et Everhart. Le trait vertical représente l'énergie limite d'utilisation de chaque modèle.

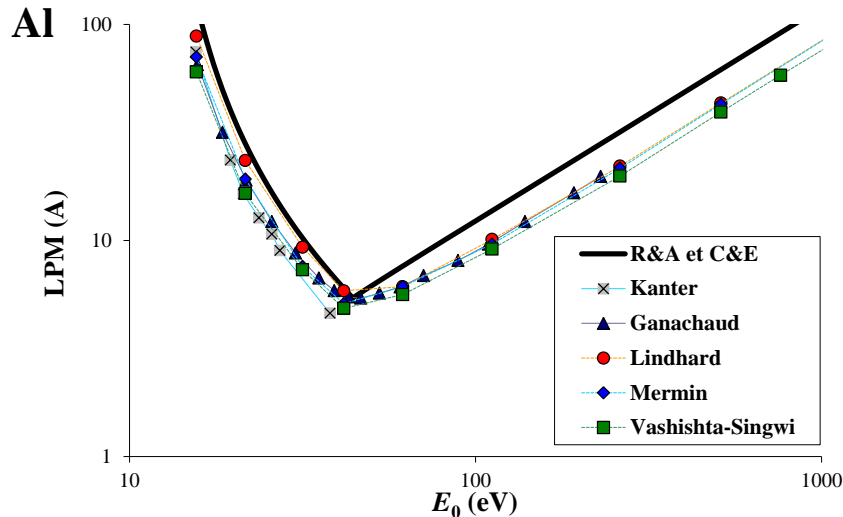


Figure II-28 : Comparaison du libre parcours moyen obtenu par concaténation du modèle de Ritchie et Ashley et de Chung et Everhart avec le libre parcours (x) mesuré par Kanter [KAN-70], (▲) calculé par Ganachaud [GAN-77] et calculé avec le formalisme de (○) Lindhard [LIN-54], (◇) Mermin [MER-70] et (◻) Vashishta-Singwi [VAS-72].

II.3.2.1.2.4.2. Libre parcours

Dans le domaine d'énergie $E_0 \leq 44$ eV, le libre parcours moyen est calculé directement à l'aide de l'expression (II-31) déduite du formalisme de Ritchie et Ashley. Le libre parcours l de l'interaction est ensuite déterminé en utilisant la relation d'échantillonnage exprimée par l'équation (II-14).

Dans le domaine d'énergie $E_0 > 44$ eV, le calcul du libre parcours moyen, au cours de la simulation, avec le formalisme de Chung et Everhart est fastidieux et couteux en temps de calcul. Aussi un calcul préliminaire a été effectué pour obtenir une expression analytique qui reproduit fidèlement ce parcours. Étant donné l'allure du libre parcours moyen qui découle du formalisme de Chung et Everhart (voir Figure II-26), un ajustement utilisant une fonction puissance de l'énergie E_0 de l'électron incident a été effectué :

$$\lambda = 0,1279 \cdot (E_0)^{0,9907} \quad (\text{II-35})$$

La Figure II-29 montre que cette expression reproduit bien le libre parcours moyen et l'erreur relative reste inférieure à 1%. Cette erreur reste inférieure à cette valeur de 1% jusqu'à 2000 eV et elle est de l'ordre de 3,3% à 5000 eV.

Finalement par souci de simplification et d'optimisation du temps de calcul, l'utilisation de l'expression analytique (II-35) s'avère importante pour obtenir le libre parcours moyen λ qui va servir ensuite à déterminer le libre parcours l à l'aide de l'expression (II-14).

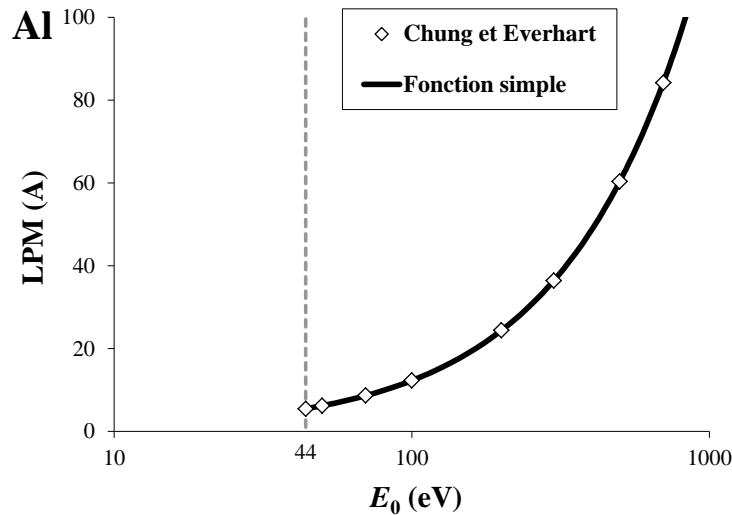


Figure II-29 : Libre parcours moyen calculé avec le formalisme de Chung et Everhart (\diamond), en trait plein l'ajustement utilisant une fonction simple (II-35).

II.3.2.1.2.4.3. Transfert d'énergie et de l'énergie de l'électron mis en mouvement.

Le transfert d'énergie $\hbar\omega$ n'est pas directement accessible dans le cas du formalisme de Ritchie et Ashley. Il exige la connaissance de l'énergie E_1 de l'électron incident après interaction en intégrant selon E l'expression **(II-29)** et en échantillonnant cette expression de façon directe. L'énergie transférée est alors donnée par l'équation $E_1 = E_0 - \hbar\omega$. L'énergie E de l'électron mis en mouvement est obtenue grâce à l'expression $E = E_i + \hbar\omega$. E_i est l'énergie de l'électron dans la bande de conduction qu'on détermine, à l'aide de la densité d'états donnée par l'expression **(II-24)**, par échantillonnage direct.

Dans le formalisme de Chung et Everhart, l'accès à l'énergie E de l'électron mis en mouvement s'effectue par échantillonnage de l'expression **(II-34)** de la différentielle de l'inverse du libre parcours moyen ; à l'aide de la méthode des rejets. L'énergie E_i de l'électron dans la bande de conduction avant interaction est échantillonnée par la méthode directe grâce à l'expression **(II-24)**. Le transfert d'énergie $\hbar\omega$ est finalement obtenu en utilisant l'expression $E = E_i + \hbar\omega$. Ce transfert permettra ensuite de déterminer l'énergie E_1 de l'électron incident après interaction soit $E_1 = E_0 - \hbar\omega$.

II.3.2.1.2.4.4. Déviation de l'électron incident et de la direction de l'électron mis en mouvement

Dans le formalisme de Ritchie et Ashley, l'angle polaire de déviation θ de l'électron incident est obtenu grâce à l'expression **(II-28)** facilement intégrable. Cependant, l'inversion de cette expression pour pouvoir appliquer la méthode directe d'échantillonnage est relativement complexe et coûteuse en temps de calcul. La méthode des rejets est alors utilisée pour échantillonner la valeur de cet angle.

Dans le cas de l'angle azimutal de déviation φ , considéré comme uniformément distribué entre 0 et 2π , l'échantillonnage est direct en utilisant la relation $\varphi = 2\pi \cdot R$, R étant un nombre aléatoire équidistribué entre 0 et 1.

L'angle polaire ψ de l'électron mis en mouvement est calculé en utilisant le principe de la conservation de la quantité de mouvement. La Figure II-30 donne quelques schémas qui

illustrent cette conservation en utilisant les vecteurs d'onde lors de l'interaction d'un électron incident avec un électron de la bande conduction.

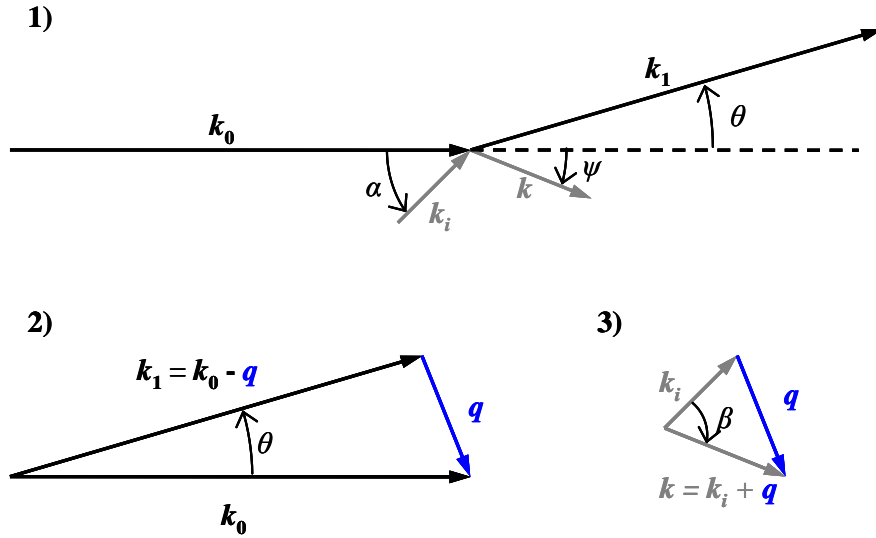


Figure II-30 : Schéma de la conservation du vecteur d'onde lors de l'interaction d'un électron incident avec un électron de la bande conduction

La détermination de l'angle polaire ψ exige la connaissance du vecteur d'onde de transfert q . En effet, connaissant le transfert d'énergie, il est possible de définir ce vecteur connaissant θ en utilisant le schéma 2) de la Figure II-30 :

$$q^2 = k_0^2 + k_1^2 - 2k_0k_1 \cdot \cos \theta. \quad (\text{II-36})$$

Avec k_0 et k_1 les vecteurs d'onde respectifs de l'électron incident avant et après interaction. D'autre part, en utilisant le schéma 3) de la Figure II-30 nous avons :

$$q^2 = k^2 + k_i^2 - 2kk_i \cdot \cos \beta. \quad (\text{II-37})$$

Avec k et k_i les vecteurs d'onde respectifs de l'électron dans la bande de conduction avant et après excitation. β est l'angle entre les vecteurs k et k_i .

Une fois connu l'angle β , l'angle polaire ψ de l'électron mis en mouvement dans le référentiel de l'électron incident est obtenu à partir de l'angle polaire α donnant la direction de l'électron dans la bande de conduction. Ce dernier est considéré comme uniformément distribué entre 0 et π et est donc échantillonné directement par $\alpha = \pi \cdot R_\alpha$. R_α est un nombre aléatoire équidistribué entre 0 et 1.

Dans le formalisme de Chung et Everhart, l'angle polaire ψ , de l'électron mis en mouvement, est obtenu en considérant que l'énergie E de cet électron est faible comparée à l'énergie E_0 de l'électron incident avant interaction. Selon cette approximation et avec $d\Omega_\psi = 2\pi \cdot \sin \psi \cdot d\psi$, l'expression (II-33) prend la forme suivante :

$$\frac{d^2\lambda^{-1}}{dE \cdot d\psi} \approx \frac{3}{4} \frac{d\lambda^{-1}}{dE} \sin^2 \psi. \quad (\text{II-38})$$

La méthode directe étant difficilement applicable car l'inversion après intégration est complexe et coûteuse en temps de calcul. La méthode de rejet est alors appliquée à l'expression (II-38) pour échantillonner ψ .

Connaissant, l'angle polaire ψ , le transfert d'énergie $\hbar\omega$ et l'énergie E_i de l'électron dans la bande de conduction, nous pouvons déterminer l'angle polaire θ de déviation de l'électron incident. En effet, il suffit de suivre le même raisonnement que dans le cas du formalisme de Ritchie et Ashley puisque les relations (II-36) et (II-37) s'appliquent ici aussi.

Indépendamment du formalisme (de Ritchie et Ashley ou de Chung et Everhart), l'angle azimutal φ de l'électron incident après interaction, ainsi que l'angle azimutal ζ de l'électron mis en mouvement sont considérés comme uniformément distribués entre 0 et 2π . Ils sont échantillonnés de la manière suivante : $\varphi = 2\pi \cdot R_\varphi$ et $\zeta = 2\pi \cdot R_\zeta$. R_φ et R_ζ sont deux nombres aléatoires équidistribués entre 0 et 1.

II.3.2.2. Interaction électron-plasmon

II.3.2.2.1. Étendue de la surface effective

Avant d'aborder les modèles choisis pour traiter respectivement les interactions de l'électron avec un plasmon de volume et avec un plasmon de surface, nous allons décrire les caractéristiques adoptées pour rendre compte de l'étendue de la surface effective. Dans la section I.2.3.2.2.2 relative à cette région, nous avons présenté plusieurs modélisations de l'effet de cette région sur l'excitation du plasmon de volume (effet *Begrenzung*). Dans le cadre de notre simulation, nous avons retenu la configuration C. Cette configuration, représentée Figure II-31, consiste à définir une zone de surface effective propre à chaque

plasmon (de volume et de surface). Nous avons opté pour la modélisation de Núñez et co. [NUN-80] de l'épaisseur de la surface. Ainsi pour le plasmon de volume, nous considérons une surface effective d'épaisseur $z_{eff,p} = v_0 / (2 \cdot \omega_p)$. Pour le plasmon de surface, nous considérons une surface effective d'épaisseur $z_{eff,s} = v_0 / (2 \cdot \omega_s)$ et qu'elle ne s'étend que dans la cible, c.-à-d. pas d'interaction avec le plasmon de surface dans le vide.

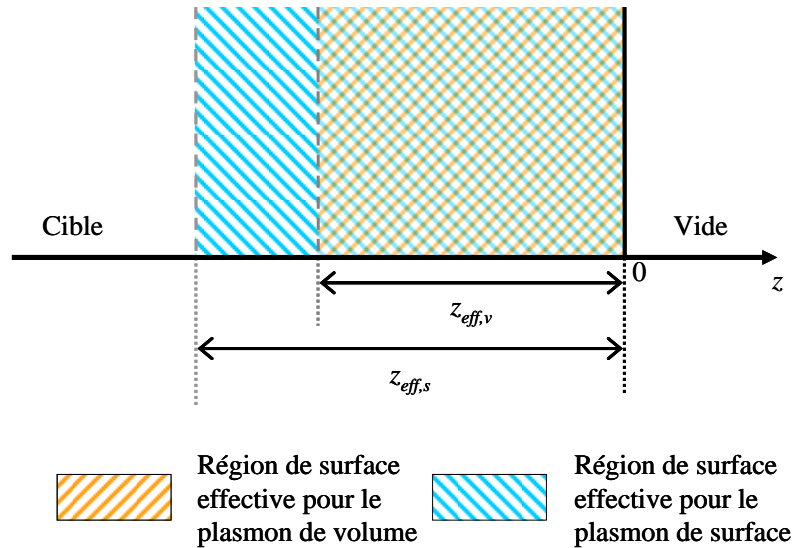


Figure II-31 : Représentation de la configuration C de la région de surface effective en deux régions propres à chaque plasmon (volume et surface).

II.3.2.2.2. Interaction électron-plasmon de volume

II.3.2.2.2.1. Modèles et formalismes

L'étude des interactions électron-plasmon de volume et électron-électron de conduction est souvent basée sur les mêmes formalismes. Cependant, comme en témoigne le travail de Dubus et co. [DUB-93], il existe une grande variété d'approches qui permettent de traiter ces interactions. Dans ce travail, les approches de Lindhard [LIN-54], de Mermin [MER-70] et de Vashishta-Singwi [VAS-72] ont été confrontées, dans le cas de l'aluminium, en comparant les LPM de l'interaction électron-plasmon de volume qui en découlent (voir Figure II-32). Bien que le libre parcours moyen de Vashishta-Singwi soit plus élevé que les autres, l'écart entre les libres parcours moyens reste relativement faible. Il en résulte ainsi une faible influence du choix du modèle sur la contribution des plasmons de volume au rendement d'émission électronique calculé. Pour notre simulation, nous avons opté pour l'approche proposée par

Chung et Everhart [CHU-77] qui présente l'avantage de proposer un formalisme relativement simple tout en prenant en compte les transitions interbandes spécifiques à l'aluminium. Avant d'aborder, de façon détaillée, le modèle choisi ainsi que les modifications susceptibles d'améliorer ces résultats (prise en compte de l'effet Begrenzung), il est primordial de définir en premier lieu, l'énergie seuil que doit avoir l'électron incident pour pouvoir interagir avec un plasmon de volume.

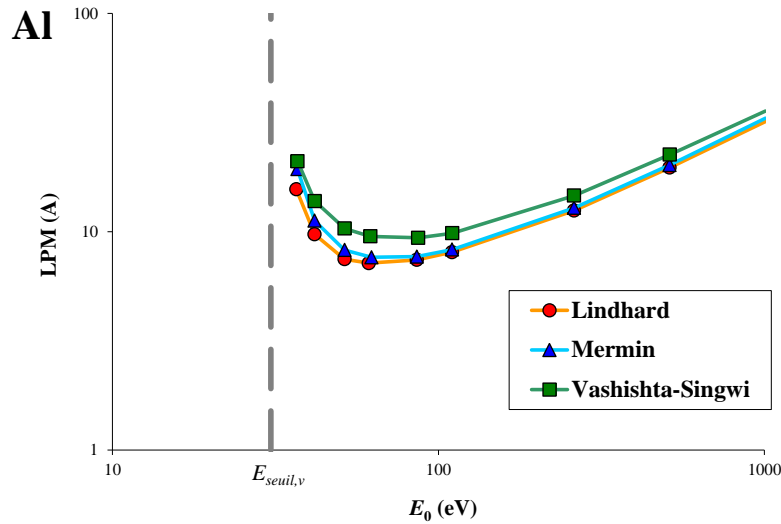


Figure II-32 : Libres parcours moyens de l'interaction électron-plasmon de volume d'après [DUB-93].

II.3.2.2.2. Energie seuil d'interaction

L'interaction électron-plasmon de volume ne peut se produire qu'à partir d'une énergie seuil, que l'on note $E_{seuil,v}$. Ce seuil d'énergie représente l'énergie que doit avoir l'électron pour pouvoir interagir avec le plasmon de volume et conserver au moins l'énergie de Fermi après transfert d'énergie. Ganachaud et Cailler [GAN-79] ont proposé une énergie seuil d'interaction $E_{seuil,v} = E_f + \hbar\omega_p(q_c)$ où $\omega_p(q_c)$ est calculé à partir de la relation de dispersion du plasmon de volume et du vecteur d'onde limite q_c d'existence du plasmon de volume tels que décrits dans la section I.2.3.2.1.2. L'application numérique dans le cas de l'aluminium nous donne $E_{seuil,v} = 30,6$ eV. Une valeur qui correspond à celle identifiée expérimentalement par Andersson [AND-72]. C'est cette énergie seuil qui est représenté sur la Figure II-32.

II.3.2.2.2.3. Formalisme du modèle de Chung et Everhart

La modélisation de l'interaction électron-plasmon de volume proposée par Chung et Everhart repose sur plusieurs hypothèses :

- Les électrons du cristal sont décrits par une fonction d'onde de Bloch¹⁴ et l'électron incident est décrit par une onde plane.
- L'amortissement des plasmons de volume est considéré pour les plasmons de grande longueur d'onde. Par suite de la présence du terme q^{-4} dans la probabilité de transition par unité de temps de la transition d'un état initial vers un état final pour l'électron du cristal, il s'en suit que les transitions correspondant à un transfert de faible impulsion sont fortement favorisées. Pour l'aluminium ε_1 est faible au voisinage de la fréquence de plasmon dans la limite $q = 0$. Ce qui entraîne pour $1/\varepsilon$ une résonance dans ce domaine lorsque ε_2 est suffisamment faible.
- L'amortissement du plasmon de volume se produit à l'endroit de son excitation et crée une paire électron-trou, qui est le processus d'amortissement dominant. En pratique cela se traduit par le fait que l'électron mis en mouvement au cours de l'interaction débute sa trajectoire là où l'interaction a lieu.
- Les transitions sont de type interbande¹⁵ ($l \neq l'$, où l et l' sont les indices de bande) directes. Pour les métaux comportant des électrons quasi-libres avec, par conséquent, des bandes d'énergie sensiblement paraboliques, les transitions de type intrabande¹⁶ ($l = l'$) s'annulent dans les limites considérées ($q \rightarrow 0$ et $\omega = \omega_p$), par suite de la non conservation de l'énergie et de l'impulsion.

¹⁴ Deux hypothèses sont nécessaires pour introduire les fonctions d'onde de Bloch : la vérification de l'approximation de Born-Oppenheimer qui assume que le noyau est presque immobile par rapport aux électrons d'où le traitement séparé des deux mouvements électronique et nucléaire. La deuxième considère que l'énergie potentielle d'un électron en mouvement dans un cristal a la périodicité du cristal et est indépendante du temps.

¹⁵ Elles correspondent à l'excitation des électrons de bandes de valence plus ou moins profondes vers des états inoccupés du continuum. Particulièrement importantes dans le cas des isolants à large bande interdite, elles apparaissent, dans la fonction perte d'énergie, liées à des maxima de ε_2 .

¹⁶ Elles consistent en l'excitation individuelle des électrons de la bande de conduction vers les états libres au dessus du niveau de Fermi (elles apportent ainsi une certaine contribution au fond continu du spectre de pertes d'énergie).

- L'énergie du plasmon de volume est considérée tout au long du traitement comme étant $\hbar\omega_p(0)$. Puisque l'on est dans un formalisme diélectrique, sa valeur est de 15 eV (cf. discussion page 49). Par commodité il sera simplement noté $\hbar\omega_p$ dans le développement du formalisme de Chung et Everhart.

Comme pour l'interaction électron-électron de conduction, l'interaction électron-plasmon de volume est traitée en utilisant l'expression **(I-23)** suivante :

$$W(l_i, \vec{k}_i \rightarrow l, \vec{k}) = \frac{32\pi^3 e^4}{\hbar\Delta^2 q^4} \cdot \frac{|\langle l\vec{k} | l_i \vec{k}_i \rangle|^2}{|\varepsilon(\vec{q}, \omega)|^2} \times \delta_{\vec{k}, \vec{k}_i + \vec{q}} \delta(E_{l\vec{k}} - E_{l_i \vec{k}_i} - \hbar\omega). \quad \text{(II-39)}$$

Cette équation représente la probabilité de transition $W(l_i, \vec{k}_i \rightarrow l, \vec{k})$ d'un électron du plasma de l'état $|l_i, \vec{k}_i\rangle$ à l'état $|l, \vec{k}\rangle$ par unité de temps. Pour l'aluminium on considère que la partie réelle ε_1 de la fonction diélectrique $\varepsilon(q, \omega)$ peut être correctement approximée par l'expression $1 - (\omega_p / \omega)^2$. Cela conduit, en utilisant le développement d'Ehrenreich [EHR-66], à la forme suivante pour la fonction diélectrique :

$$\varepsilon(q, \omega \approx \omega_p) \approx (2/\omega_p) \cdot (\omega - \omega_p) + i \cdot \varepsilon_2(q, \omega_p). \quad \text{(II-40)}$$

et nous avons donc :

$$\frac{1}{|\varepsilon(q, \omega \approx \omega_p)|^2} \approx \frac{(\Gamma_v/2\hbar) \cdot (\omega_p/2)^2}{[(\omega - \omega_p)^2 + (\Gamma_v/2\hbar)^2] \cdot \varepsilon_2(q, \omega_p)}. \quad \text{(II-41)}$$

Avec Γ_v un facteur associé à l'amortissement fini du plasmon de volume et qui est défini par :

$$\Gamma_v = \lim_{q \rightarrow 0} \hbar\omega_p \cdot \varepsilon_2(q, \omega_p). \quad \text{(II-42)}$$

Pour des fréquences ω proche de ω_p , des valeurs de q faibles et en ne tenant compte que des transitions interbandes, la partie imaginaire ε_2 de la fonction diélectrique peut être exprimée dans le cadre de l'approximation de phases aléatoires⁵ de la manière suivante :

$$\varepsilon_2(\vec{q}, \omega) = \frac{4\pi^2 e^2}{\Delta m^2 q^2} \sum_{l_i \neq l} |P_{l_i, l}^u|^2 \cdot \delta(E_{l, \vec{k}} - E_{l_i, \vec{k}} - \hbar\omega), \quad (\text{II-43})$$

où la fonction de Dirac assure la conservation de l'énergie. Le terme $P_{l_i, l}^u$ est défini tel que :

$$P_{l_i, l}^u = \frac{1}{\Delta_0} \int_0^* u_{l, \vec{k}}^* \cdot \frac{\vec{q}}{q} \cdot \vec{p} \cdot u_{l_i, \vec{k}} \cdot d\vec{r}. \quad (\text{II-44})$$

Le terme u_{l_i, \vec{k}_i} représente la périodicité du réseau dans la fonction de Bloch qui décrit l'électron de vecteur d'onde \mathbf{k}_i de la bande l_i . Le terme \mathbf{p} désigne l'opérateur du moment cinétique. Le terme Δ_0 représente le volume de la maille primitive du cristal d'aluminium. L'intégration se fait sur cette maille primitive.

En introduisant les expressions (II-42), et (II-43) dans l'expression (II-40) et en sommant sur l'ensemble des états $|l_i, \vec{k}_i\rangle$ et sur \mathbf{q} , le taux total de transition vers l'état $|l, \vec{k}\rangle$ est :

$$W_T(l, \vec{k}) = \sum_{\vec{q}} \left(\frac{4\pi e^2}{\Delta \hbar q^2} \right) \cdot \frac{\Gamma_v/2}{(\hbar\omega - \hbar\omega_p) + (\Gamma_v/2)^2} \cdot F(E, \hbar\omega), \quad (\text{II-45})$$

avec

$$F(E, \hbar\omega) = \frac{\sum_{l_i \neq l} f_0(E_{l_i, \vec{k}}) \cdot [1 - f_0(E_{l, \vec{k}})] \cdot |P_{l_i, l}^u|^2 \cdot \delta(E_{l, \vec{k}} - E_{l_i, \vec{k}} - \hbar\omega) \cdot \delta(E_{l, \vec{k}} - E)}{\sum_{l_i \neq l} f_0(E_{l_i, \vec{k}_i}) \cdot [1 - f_0(E_{l, \vec{k}})] \cdot |P_{l_i, l}^u|^2 \cdot \delta(E_{l, \vec{k}} - E_{l_i, \vec{k}} - \hbar\omega)}, \quad (\text{II-46})$$

où f_0 est la distribution de Fermi-Dirac et E est l'énergie de l'électron mis en mouvement. Puisqu'il existe une infinité d'états, la somme sur \mathbf{q} est remplacée par une intégrale telle que :

$$\sum_{\vec{q}} \rightarrow \frac{\Delta}{8\pi^3} \int d\vec{q}. \quad (\text{II-47})$$

En se fondant sur la géométrie de la diffusion de l'électron incident, représentée sur la Figure II-33, nous avons :

$$d\vec{q} = 2\pi \cdot q_{\perp} \cdot dq_{\perp} \cdot dq_{\parallel} . \quad (\text{II-48})$$

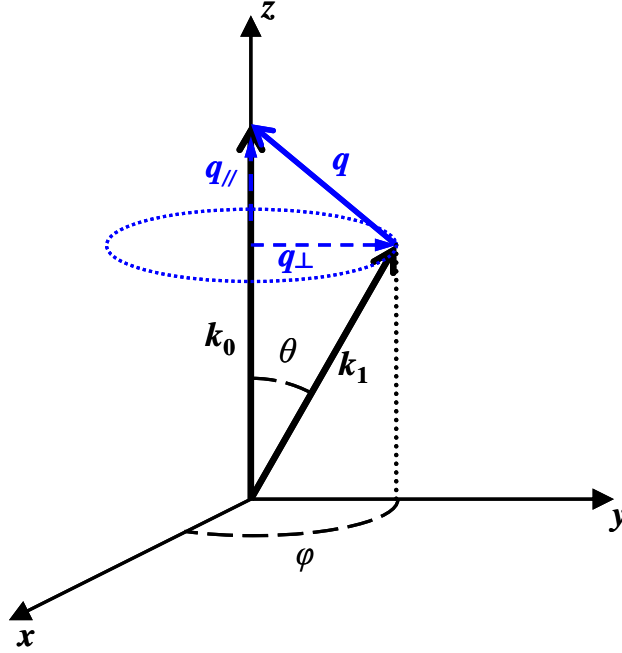


Figure II-33 : Schéma de représentation en vecteurs d'onde de la diffusion de l'électron incident lors de l'interaction électron-plasmon de volume. q_{\perp} et q_{\parallel} sont respectivement les composantes perpendiculaire et normale du vecteur d'onde de transfert q par rapport à k_0 . Le cercle en pointillée représente l'ensemble des vecteurs q_{\perp} possibles pour l'interaction.

En considérant q faible par rapport à k_0 l'expression (I-32) de q a été approximée par:

$$q^2 = q_{\perp}^2 + q_{\parallel}^2 \approx k_0^2 \cdot (\theta_E^2 + \theta^2) . \quad (\text{II-49})$$

Avec $\theta_E = \hbar\omega/2E_0$. L'expression (II-48) devient alors :

$$d\vec{q} \approx \pi \cdot k_0^3 \cdot \theta \cdot d\theta \cdot d(\hbar\omega)/E_0 . \quad (\text{II-50})$$

En tenant compte des expressions (II-45) et (II-50), l'intégration (II-47) conduit à :

$$\begin{aligned} \frac{dW_T}{dE} &= \frac{e^2 \cdot \hbar\omega_v \cdot k_0}{2\hbar \cdot E_0} \cdot \int_0^{\theta_c} \frac{\theta \cdot d\theta}{\theta^2 + \theta_E^2} \\ &\times \int_0^{\infty} F(E, \hbar\omega) \cdot \frac{\Gamma_v/2}{(\hbar\omega - \hbar\omega_v) + (\Gamma_v/2)^2} \cdot d(\hbar\omega) . \end{aligned} \quad (\text{II-51})$$

Puisque l'on se situe au voisinage de $\omega \approx \omega_p$, le terme $\theta_E = \hbar\omega/2E_0$ devient $\theta_E = \hbar\omega_p/2E_0$. La borne d'intégration θ_c représente la valeur limite de l'angle polaire θ de déviation que peut subir l'électron incident lors de l'interaction. Cet angle correspondant à une valeur maximale du vecteur d'onde de transfert \mathbf{q} , q_c (voir section I.2.3.2.1.2) est déduit de l'expression (II-49) tel que $\theta_c^2 = q_c^2/k_0^2 - \theta_E^2$. En intégrant la relation (II-51) suivant θ et en la divisant par la vitesse de l'électron incident, on obtient l'inverse du libre parcours moyen différentiel suivant E :

$$\frac{d(\lambda^{-1})}{dE} = \lambda_{eff}^{-1}(E_0, \theta_c) \cdot \int_0^\infty \frac{F(E, \hbar\omega)}{\pi} \cdot \frac{\Gamma_v/2}{(\hbar\omega - \hbar\omega_p) + (\Gamma_v/2)^2} \cdot d(\hbar\omega). \quad (\text{II-52})$$

Le terme $\lambda_{eff}(E_0, \theta_c)$ est le libre parcours moyen effectif de création d'un plasmon de volume [RAE-65]. Il est donné par :

$$\lambda_{eff}(E_0, \theta_c) = \frac{2a_0 \cdot E_0}{\hbar\omega_p} \cdot \left[\ln \left(\frac{\theta_c^2 + \theta_E^2}{\theta_E^2} \right)^{1/2} \right]^{-1}. \quad (\text{II-53})$$

Le terme $F(E, \hbar\omega)$ qui représente la distribution en énergie de la densité d'états peut-être calculé en utilisant le modèle simple à deux bandes¹⁷ [KOY-70]. Ce terme est alors donné par :

$$F(E, \hbar\omega) = \frac{\sum_{\bar{G}} n_{\bar{G}} \cdot G \cdot |W_{\bar{G}}|^2 \cdot [H(E - E_1^G(\omega) - \hbar\omega) - H(E - E_f - \hbar\omega)]}{\sum_{\bar{G}} n_{\bar{G}} \cdot G \cdot |W_{\bar{G}}|^2 \cdot (E_f - E_1^G(\omega))}, \quad (\text{II-54})$$

où $H(x)$ est la fonction d'Heaviside, \mathbf{G} est un vecteur de la matrice réciproque de l'aluminium, n_G le nombre de vecteur \mathbf{G} équivalents dans la matrice réciproque, W_G est l'écart entre les deux bandes selon le vecteur \mathbf{G} . Le terme E_1^G est défini par :

$$E_1^G(\omega) = \frac{(\hbar\omega - \hbar^2 G^2/2m)^2 - 4|W_{\bar{G}}|^2}{2 \cdot \hbar^2 G^2/m}. \quad (\text{II-55})$$

¹⁷ Dans le modèle à deux bandes, les transitions interbandes et intrabande ne sont considérées que pour la bande de conduction partiellement remplie et la bande d'énergie d'au-dessus non occupée.

L'intégration de l'expression (II-52) suivant $\hbar\omega$ conduit finalement à :

$$\frac{d\lambda^{-1}}{dE} = \lambda_{\text{eff}}^{-1}(E_0, \theta_c) \cdot D(E, \hbar\omega_p, \Gamma_v), \quad (\text{II-56})$$

avec

$$D(E, \hbar\omega_p, \Gamma_v) = \left\{ \sum_{\vec{G}} n_{\vec{G}} \cdot G \cdot |W_{\vec{G}}|^2 \cdot \left[\begin{array}{c} \tan^{-1}\left(\frac{E - E_0^G - \hbar\omega_p}{\Gamma_v/2}\right) \\ - \tan^{-1}\left(\frac{E - E_f - \hbar\omega_p}{\Gamma_v/2}\right) \end{array} \right] \right\} \times \left\{ \sum_{\vec{G}} n_{\vec{G}} \cdot G \cdot |W_{\vec{G}}|^2 \cdot (E_f - E_0^G) \right\}^{-1}. \quad (\text{II-57})$$

Le terme E_0^G est donné par $E_0^G = E_1^G(\omega_p)$. Dans le cas de l'aluminium seuls les vecteurs \mathbf{G}_{111} et \mathbf{G}_{200} de la matrice réciproque sont considérés. L'inverse du libre parcours moyen différentiel, expression (II-56), qui en découle est représenté pour différentes énergies d'incidence sur la Figure II-34. Soulignons que l'énergie de l'électron excité est dans l'intervalle $[\hbar\omega_p, \hbar\omega_p(q_c) + E_f]$ car l'énergie transférée est dans l'intervalle $[\hbar\omega_p, \hbar\omega_p(q_c)]$ d'une part et l'énergie initiale de l'électron dans la bande de conduction est dans l'intervalle $[0, E_f]$ d'autre part.

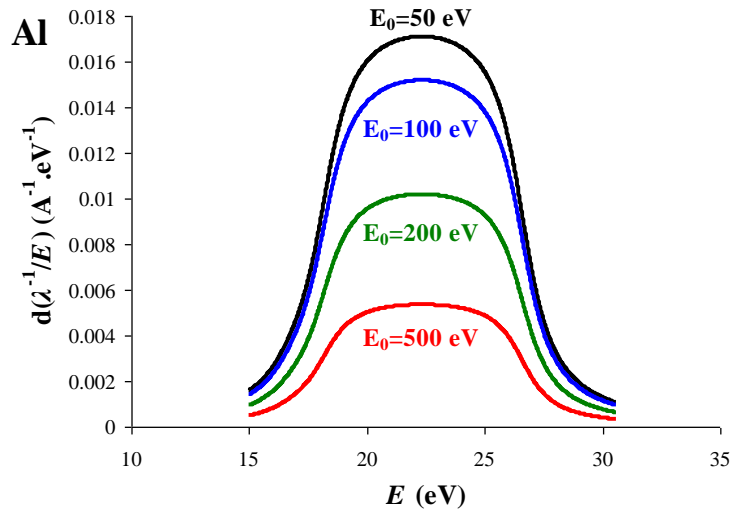


Figure II-34 : Inverse du libre parcours moyen différentiel en fonction de l'énergie E de l'électron excité pour différentes énergies d'incidence.

L'allure générale de l'inverse du libre parcours moyen différentiel de l'interaction électron-plasmon de volume varie avec l'énergie d'incidence. Bien que l'on observe un maximum toujours autour d'une énergie de 22 eV, les courbes ont tendance à s'aplatir au sommet quand l'énergie d'incidence augmente. On constate également que la variation de la probabilité d'interaction par rapport à la variation d'énergie de l'électron excité augmente quand l'énergie d'incidence diminue.

L'énergie du maximum est la somme de l'énergie initiale de l'électron excité depuis le haut de la bande de conduction et de l'énergie du plasmon de volume pour une déviation maximale θ_c .

Dans le formalisme de Chung et Everhart on ne dispose pas d'une expression pouvant donner directement le libre parcours moyen. Cependant, l'expression **(II-56)** peut conduire à une expression relativement simple car son intégration selon E (c.-à-d. pour obtenir λ) n'implique pas le terme $\lambda_{eff}(E_0, \theta_c)$ qui est indépendant de E . Seul $D(E, \hbar\omega_p, \Gamma_v)$ qui ne dépend pas de l'énergie d'incidence E_0 , tout comme ses bornes d'intégrations $[\hbar\omega_p, \hbar\omega_p(q_c) + E_f]$, est alors à intégrer. Le résultat étant une constante, que l'on notera I , le libre parcours moyen λ est donné par :

$$\lambda = \lambda_{eff}(E_0, \theta_c)/I. \quad \text{(II-58)}$$

La constante I prend la valeur $I = 0,90876$, compte tenu des valeurs des différents paramètres impliqués dans le formalisme, de Chung et Everhart, appliqué au cas de l'aluminium (Tableau II-2). La représentation du LPM obtenu en fonction de l'énergie de l'électron incident est donnée sur la Figure II-35. Pour E_0 proche de $E_{seuil,v}$, le LPM décroît fortement jusqu'à atteindre un minimum vers 50 eV. Au-delà de 50 eV, le LPM croît avec l'énergie de l'électron incident.

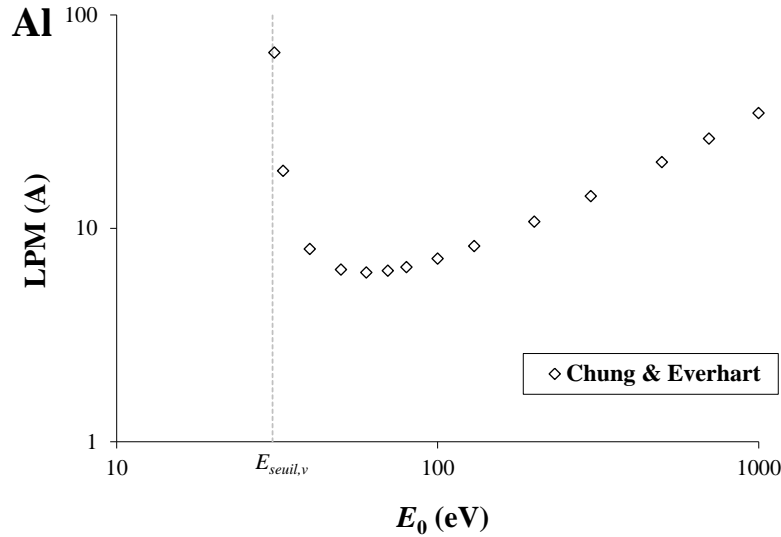


Figure II-35 : Libre parcours moyen de l'interaction électron-plasmon de volume en fonction de l'énergie d'incidence d'après [CHU-77].

Tableau II-2 : Paramètres utilisés dans le formalisme de Chung et Everhart.

Paramètre	Nom	Valeur	Unité
$\hbar\omega_p$	Energie du plasmon de volume pour $q = 0$	15	eV
Γ_v	Amortissement fini du plasmon de volume	2	eV
G_{111}	Norme du vecteur du réseau réciproque selon l'axe de symétrie 111	2,7	Å^{-1}
n_{111}	Nombre de vecteur G_{111} équivalent dans le réseau réciproque	8	sans dimension
W_{111}	Écart entre la bande de conduction et la bande supérieure vide selon l'axe de symétrie 111	0,24	eV
G_{200}	Norme du vecteur du réseau réciproque selon l'axe de symétrie 200	3,1	Å^{-1}
n_{200}	Nombre de vecteur G_{200} équivalent dans le réseau réciproque	6	sans dimension
W_{200}	Écart entre la bande de conduction et la bande supérieure vide selon l'axe de symétrie 200	0,76	eV

II.3.2.2.2.4. Modification du modèle de Chung et Everhart : prise en compte de l'effet *Begrenzung*

En dehors du choix du modèle approprié à notre étude, une de nos contributions majeures a été d'améliorer le modèle de Chung et Everhart sur deux points. Le premier concerne le fait que ce modèle considère l'interaction électron-plasmon de volume dans un cristal d'aluminium infini et ne rend pas compte de l'existence de la surface et de ce qu'on

appelle l'effet *Begrenzung*. Le second point que nous allons aborder plus loin concerne le franchissement de la surface par les électrons. Pour tenir compte de la région de surface effective, l'effet de l'épaisseur de surface effective pour le plasmon de volume, $z_{eff,p}$, a été introduite dans la relation de la probabilité $P_{vol}(E_0, z)$ d'interaction avec un plasmon de volume dans un matériau fini [WAN-96] :

$$P_{vol}(E_0, z) = P_{vol}(E_0) \cdot [1 - \exp(-z/z_{eff,p})]. \quad (\text{II-59})$$

$P_{vol}(E_0)$ représente la probabilité d'interaction avec le plasmon de volume calculé pour un matériau infini. z est la profondeur dans le matériau à laquelle se situe l'électron incident. En tenant compte de cette relation la nouvelle expression de l'inverse du libre parcours moyens différentiel (II-56) est :

$$\frac{d\lambda^{-1}}{dE} = \lambda_{eff}^{-1}(E_0, \theta_c) \cdot D(E, \hbar\omega_p, \Gamma_v) \cdot [1 - \exp(-z/z_{eff,p})]. \quad (\text{II-60})$$

L'intégration de cette expression selon E donne un libre parcours moyen modifié $\lambda^*(z)$ tel que :

$$\lambda^*(z) = \frac{\lambda}{[1 - \exp(-z/z_{eff,p})]} = \frac{\lambda_{eff}^{-1}(E_0, \theta_c)}{I \cdot [1 - \exp(-z/z_{eff,p})]}, \quad (\text{II-61})$$

où λ_{eff} est calculé à l'aide de l'expression (II-53). C'est ce nouveau libre parcours moyen qui est utilisé pour déterminer le libre parcours de l'interaction électron-plasmon de volume.

II.3.2.2.2.5. Implémentation

II.3.2.2.2.5.1. Libre parcours

Le libre parcours l de l'interaction est déterminé en appliquant la relation d'échantillonnage (expression (II-14)) et l'expression (II-61) :

$$l = -\frac{\lambda_{eff}^{-1}(E_0, \theta_c)}{I \cdot [1 - \exp(-z/z_{eff,p})]} \cdot \log(R), \quad (\text{II-62})$$

avec R un nombre aléatoire équiréparti entre 0 et 1.

II.3.2.2.5.2. Transfert d'énergie et de la déviation de l'électron incident

Le transfert d'énergie est calculé à partir de la relation de dispersion du plasmon de volume dans un gaz de Fermi [RAE-65] :

$$\omega_p^2(q) = \omega_p^2(0) + q^2 \cdot \frac{3v_f^2}{5}. \quad (\text{II-63})$$

avec $\omega_p(0)$ la valeur de la fréquence plasma au zéro absolu de la température et v_f la vitesse d'un électron situé au niveau de Fermi. Cette relation nécessite la connaissance du vecteur d'onde de transfert q . Ce vecteur peut être déduit en utilisant l'expression (II-49) qui implique l'angle polaire de déviation θ de l'électron incident. Cet angle peut être échantillonné à l'aide de la relation (II-49) dans l'intervalle $[0, \theta_c]$ en utilisant un nombre aléatoire R_θ équiréparti entre 0 et 1 tel que :

$$\theta = \theta_E \cdot \sqrt{\left(\frac{\theta_c^2 + \theta_E^2}{\theta_E^2}\right)^{R_\theta} - 1}. \quad (\text{II-64})$$

Connaissant θ et ensuite q , le calcul du transfert d'énergie $\hbar\omega_p(q)$ est aisé et permet de déterminer l'énergie E_1 de l'électron incident après interaction soit : $E_1 = E_0 - \hbar\omega_p(q)$.

L'énergie de transfert va ainsi varier de 15 eV pour $\theta = 0$ à 19 eV pour $\theta = \theta_c$.

L'angle azimutal φ de l'électron incident après interaction est considéré comme uniformément distribué entre 0 et 2π . Il est échantillonné de la manière suivante : $\varphi = 2\pi \cdot R_\varphi$. Le terme R_φ est un nombre aléatoire équidistribué entre 0 et 1.

II.3.2.2.5.3. Énergie et direction de l'électron mis en mouvement

L'énergie E de l'électron mis en mouvement est déterminée en utilisant l'expression (II-56), soit en effectuant l'échantillonnage à l'aide de l'expression (II-57) de la fonction

$D(E, \hbar\omega_p, \Gamma_\nu)$. Cette dernière étant difficilement intégrable de façon analytique, la méthode du rejet pour échantillonner E est alors utilisée.

La Figure II-30 représente également la conservation du vecteur d'onde de l'interaction électron-plasmon de volume. L'angle polaire ψ de l'électron excité est déterminé de la même manière que dans le cas de l'interaction électron-électron de conduction en utilisant l'expression (II-38) qui implique la connaissance de la norme k_i du vecteur d'onde \mathbf{k}_i de l'électron dans la bande de conduction, de k le vecteur d'onde de l'électron incident après interaction), de q le vecteur d'onde de transfert et enfin l'angle β . k_i est déterminée, par tirage à partir de la densité d'état donnée par l'expression (II-24).

L'angle azimutal ζ de l'électron mis en mouvement est considéré comme distribué uniformément entre 0 et 2π . Il est échantillonné de la manière suivante : $\zeta = 2\pi \cdot R_\zeta$. Le terme R_ζ est un nombre aléatoire équadistribué entre 0 et 1.

II.3.2.2.3. Interaction électron-plasmon de surface

La surface de l'échantillon produit une rupture de continuum de matière. Cette discontinuité donne naissance à un deuxième type d'oscillations collectives, les plasmons de surface. L'énergie du plasmon de surface $\hbar\omega_s$ est définie par l'expression (I-44) bien vérifiée expérimentalement [KRA-76] dans le cas de l'aluminium où $\hbar\omega_p = 15$ eV donne $\hbar\omega_s = 10,6$ eV.

L'excitation d'un plasmon de surface par un électron incident est un traitement de l'excitation de l'interaction à la surface. Un des traitements les plus connus est celui proposé par Raether [RAE-80] en utilisant un modèle diélectrique avec une fonction diélectrique modifiée. Cependant, à cause de sa complexité de mise en œuvre, peu d'auteurs l'ont adopté. Ainsi, dans ce travail, une autre approche bien plus simple a été préférée au modèle de Raether tout en se plaçant dans le cadre de l'approximation d'un gaz d'électrons libres. Cette approche requiert la satisfaction de quatre hypothèses :

- L'interaction est négligée au voisinage de la surface du côté du vide [DEV-91] ;
- La probabilité d'interaction en fonction de la profondeur dans la cible suit une loi exponentielle avec une profondeur caractéristique $z_{eff,s}$, (c.-à-d. profondeur de la région de surface effective) ;

- La probabilité d'interaction par unité de temps à une profondeur donnée ne dépend pas de l'énergie de l'électron incident ;
- La perte d'énergie est constante et est égale à $\hbar\omega_s$. La pulsation du plasmon de surface est logiquement définie par une relation de dispersion, notamment celle de Feibelman [FEI-73]. Cependant vu la complexité de la détermination des paramètres qu'elle implique, cette relation n'a pas pu être mise en œuvre. Le vecteur de transfert \mathbf{q} est parallèle à la surface. En effet, le couplage lors de l'interaction avec une onde de surface s'effectue dans le plan de la surface [RAE-65]. Ceci implique que le seuil en énergie à partir duquel l'interaction est possible est de $E_{seuil,s} = \hbar\omega_s + E_f$, soit 22,2 eV. De plus, la composante parallèle à la surface $k_{0,\parallel}$ du vecteur d'onde \mathbf{k}_0 de l'électron incident doit respecter la condition $k_{0,\parallel} \geq q$.

II.3.2.2.3.1. Notre approche

En tenant compte des hypothèses ci-dessus, la relation donnant la probabilité qu'a l'électron incident d'interagir avec le plasmon de surface à la profondeur z au cours de l'élément de temps élémentaire dt est obtenue :

$$\frac{dp}{dt} = B \cdot \exp\left(-\frac{z}{z_{eff,s}}\right), \quad (\text{II-65})$$

B est une constante.

Si on considère un électron incident de vitesse $v = dL/dt = \alpha\sqrt{E_0}$, avec $\alpha = \sqrt{2/m}$ et E_0 l'énergie de l'électron incident et si on pose $A = B/\alpha$ la probabilité d'interaction sur un élément de longueur dL à la profondeur z (voir Figure II-36) est donnée par:

$$\frac{dp}{dt} \cdot \frac{dt}{dL} = \frac{dp}{dL}, \quad (\text{II-66})$$

soit :

$$\frac{dp}{dL} = \frac{A}{\sqrt{E_0}} \cdot \exp\left(-\frac{z}{z_{eff,s}}\right), \quad (\text{II-67})$$

A est également une constante.

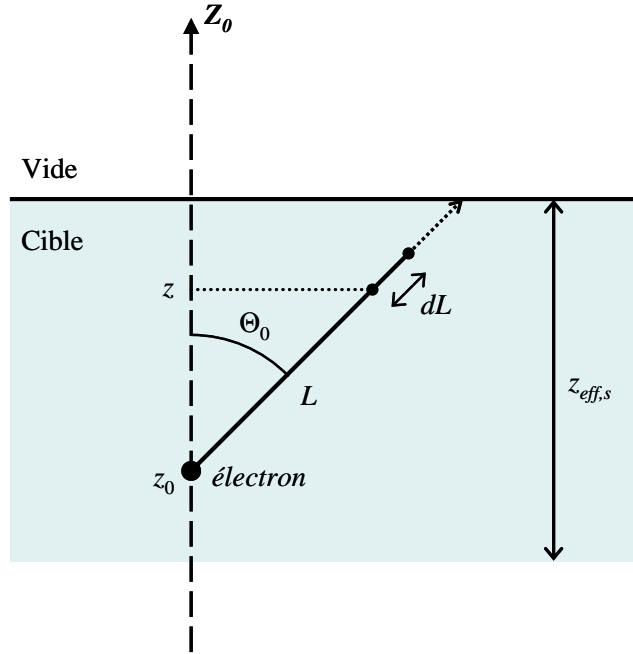


Figure II-36 : Schéma représentant l'interaction à la surface et la direction de déplacement de l'électron (flèche en pointillé).

Cette probabilité peut également s'exprimer en fonction de la probabilité complémentaire \bar{p} (c.-à-d. probabilité de ne pas avoir interagi avec le plasmon de surface entre 0 et L) :

$$\frac{dp}{dL} = \bar{p} \cdot \frac{dp}{dL}. \quad (\text{II-68})$$

Puisque nous avons $z = z_0 + L \cdot \cos \Theta_0$, avec Θ_0 l'angle polaire de l'électron d'incidence dans

le référentiel du laboratoire, et que $\frac{d\bar{p}}{dL} = -\frac{dp}{dL}$, nous pouvons écrire :

$$\frac{d\bar{p}}{dL} = -\bar{p} \cdot \frac{dp}{dL} = \frac{A}{\sqrt{E}} \cdot \exp\left(\frac{z_0}{z_{eff,s}}\right) \cdot \exp\left(\frac{L \cdot \cos \Theta_0}{z_{eff,s}}\right), \quad (\text{II-69})$$

ce qui donne :

$$\bar{p}(L) = C \cdot \exp\left(-\frac{A}{\sqrt{E}} \cdot \frac{z_{eff,s}}{\cos \Theta_0} \cdot \exp\left(\frac{z_0}{z_{eff,s}}\right) \cdot \exp\left(\frac{L \cdot \cos \Theta_0}{z_{eff,s}}\right)\right). \quad (\text{II-70})$$

La constante C peut être déterminée en utilisant la condition $\bar{p}(0) = 1$ soit:

$$C = \exp\left(\frac{A}{\sqrt{E}} \cdot \frac{z_{eff,s}}{\cos \Theta_0} \cdot \exp\left(\frac{z_0}{z_{eff,s}}\right)\right), \quad (\text{II-71})$$

d'où :

$$\bar{p}(L) = \exp\left(\frac{A}{\sqrt{E}} \cdot \frac{z_{eff,s}}{\cos \Theta_0} \cdot \exp\left(\frac{z_0}{z_{eff,s}}\right) \cdot \left(1 - \exp\left(\frac{L \cdot \cos \Theta_0}{z_{eff,s}}\right)\right)\right). \quad (\text{II-72})$$

Finalement la probabilité $p(L)$ d'excitation des pertes par plasmons de surface est donnée par:

$$p(L) = 1 - \exp\left(\frac{A}{\sqrt{E}} \cdot \frac{z_{eff,s}}{\cos \Theta_0} \cdot \exp\left(\frac{z_0}{z_{eff,s}}\right) \cdot \left(1 - \exp\left(\frac{L \cdot \cos \Theta_0}{z_{eff,s}}\right)\right)\right). \quad (\text{II-73})$$

L'inversion de la relation (II-72) permet d'obtenir la distance L que nous assimilons à un libre parcours :

$$L = \frac{z_{eff,s}}{\cos \Theta_0} \cdot \log\left[1 - \log(1 - p(L)) \frac{\sqrt{E}}{A} \exp\left(\frac{-z_0}{z_{eff,s}}\right) \cdot \frac{\cos \Theta_0}{z_{eff,s}}\right]. \quad (\text{II-74})$$

L'épaisseur $z_{eff,s}$ est décrite par l'expression $z_{eff,s} = v/2\omega_s$ proposée par Vicanek [VIC-99]. La constante A est un paramètre ajustable que nous avons déterminée à l'aide d'expériences de la spectroscopie REELS (Réflexion énergétique spectroscopie de perte) [TOU-87, RIC-10]. Le but est de trouver la valeur du paramètre qui permet un meilleur ajustement des spectres expérimentaux.

II.3.2.2.3.2. Implémentation de notre approche

II.3.2.2.3.2.1. Libre parcours

L'expression (II-73) donne le libre parcours $l = L$ en considérant $p(L)$ comme un nombre aléatoire équidistribué entre 0 et 1.

II.3.2.2.3.2.2. Transfert d'énergie et déviation de l'électron incident

Le transfert d'énergie lors de l'interaction de l'électron incident avec le plasmon de surface est supposé fixe et vaut $\hbar\omega_s = 10,6$ eV. L'énergie E_1 de l'électron incident après interaction étant $E_1 = E_0 - \hbar\omega_s$. L'angle polaire Θ_1 de l'électron incident dans le référentiel du laboratoire est déterminé directement après interaction plutôt que l'angle polaire de déviation θ dans le référentiel de l'électron incident. En effet, puisque le vecteur d'onde de transfert \mathbf{q} est considéré comme étant parallèle à la surface, nous avons, avec la conservation de la quantité de mouvement (voir Figure II-37), l'expression suivante :

$$\begin{cases} k_{0,\parallel} - q = k_{1,\parallel} \\ k_{0,\perp} = k_{1,\perp} \end{cases} \quad \text{(II-75)}$$

Sachant que $k_{0,\perp} = k_0 \cdot \cos \Theta_0$ et que $k_{1,\perp} = k_1 \cdot \cos \Theta_1$, on en déduit la relation suivante :

$$\Theta_1 = \cos^{-1} \left(\frac{k_0}{k_1} \cdot \cos \Theta_0 \right). \quad \text{(II-76)}$$

L'angle azimutal φ de déviation de l'électron incident ne peut être tiré dans une distribution. En effet, les conditions particulières de l'interaction avec un \mathbf{q} unique et parallèle à la surface induit que l'angle azimutal de l'électron incident ne varie pas. Nous avons donc $\varphi = 0$.

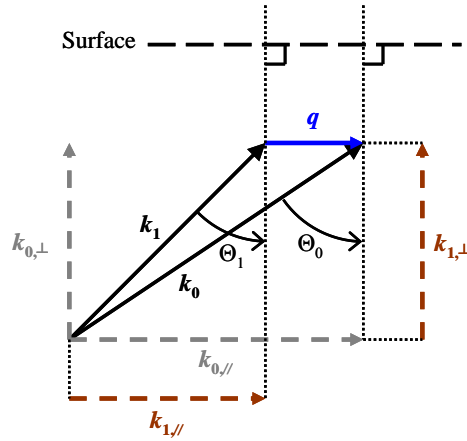


Figure II-37 : Schéma de la conservation du vecteur d'onde lors de l'excitation d'un plasmon de surface par un électron incident.

II.3.2.2.3.2.3. Énergie et direction de l'électron mis en mouvement

Le transfert d'énergie, $\hbar\omega_s$, étant connu, on échantillonne l'énergie E_i de l'électron dans la bande de conduction à partir de la densité d'états, énergie donnée par l'expression (II-24). On obtient alors l'énergie E de l'électron mis en mouvement puisque $E = E_i + \hbar\omega_s$.

Nous supposons qu'il n'existe pas de direction privilégiée pour l'électron mis au mouvement par l'amortissement du plasmon de surface. L'angle polaire ψ et azimutal ζ de l'électron mis en mouvement sont déterminés de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \psi &= \cos^{-1}(2 \cdot R_\psi - 1) \\ \zeta &= 2\pi \cdot R_\zeta \end{aligned} \quad \text{(II-77)}$$

Les termes R_ψ et R_ζ sont deux nombres aléatoires distincts équidistribués entre 0 et 1 qui sont utilisés respectivement pour la détermination de l'angle polaire ψ et de l'angle azimutal ζ .

II.3.2.3. Interaction électron-phonon

Dans les semi-conducteurs et les isolants, l'interaction électron-phonon est significative lorsque l'électron incident à une énergie inférieure au *gap*¹⁸ En effet, dans ces matériaux, il n'y a pas d'électron dans cette bande d'énergie, l'électron incident ne peut interagir qu'avec le

¹⁸ Le *gap* est l'écart entre la dernière bande de valence remplie et la bande de conduction vide dans un semi-conducteur ou un isolant ou encore l'énergie de la bande interdite.

noyau ou avec les phonons. En revanche, dans les métaux ce *gap* n'existe pas et l'électron en mouvement dans la cible peut toujours interagir avec les électrons de conduction. Cette interaction masque l'interaction avec les phonons. Ainsi, dans le cas de la cible d'aluminium étudiée, l'interaction électron-phonon est négligée au cours des simulations.

II.3.3. Franchissement de la surface

Nous supposons que l'interaction avec la surface a lieu à $z = 0$ et s'effectue sans perte d'énergie. Dans le cas de l'aluminium le franchissement de sa surface est celui d'une marche de potentiel $U_0 = 15,85$ eV car le potentiel de surface dans un métal est la somme du travail de sortie W et de l'énergie de Fermi E_f . Les valeurs utilisées pour ces deux derniers paramètres sont $W = 4,25$ eV et $E_f = 11,6$ eV.

II.3.3.1. Choix de la marche de potentiel exponentiel

Dans la section I.2.4.3, nous avons présenté trois types de marches de potentiel : la marche de potentiel carrée, la marche de potentiel exponentiel et la marche de potentiel image. La première est la plus simple et est généralement utilisée dans la simulation Monte-Carlo de l'émission électronique [KHU-99, DIN-01] ou encore pour expliquer des grandeurs expérimentales associées à l'émission électronique [CIM-06, CAZ-12]. Cependant, il s'agit d'une approximation ne reflétant pas correctement ni la surface réelle d'un matériau ni son interaction avec un électron incident. Cutler et Davis, dans leur travail de revue [CUT-64], ont calculé le coefficient de réflexion (c.-à-d. rapport du nombre d'électrons réfléchis et du nombre des électrons incidents) correspondant à une hauteur de marche U_0 de 10 eV pour les trois types de marches considérées. Notons que dans ces calculs l'origine de l'énergie correspond à l'énergie du niveau du vide. Les résultats obtenus en fonction de l'énergie primaire sont présentés sur les Figure II-38 (a) et (b). On constate que, le coefficient de réflexion obtenu avec le potentiel le plus réaliste, à savoir le potentiel image, reste très faible pour des énergies inférieures à 1 eV et s'annule à partir d'une dizaine d'eV. Quant à la marche de potentiel carrée, elle présente des valeurs élevées à très basse énergie, à 1eV la réflexion est de l'ordre de 0,4. Les valeurs du coefficient de réflexion obtenues à l'aide de la marche de potentiel exponentielle sont comprises entre celles données par les deux autres marches.

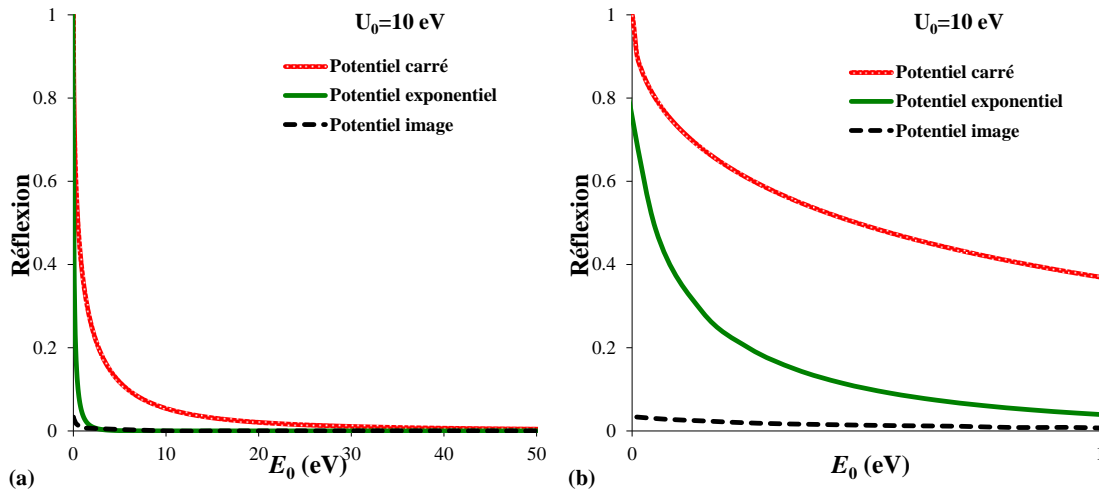


Figure II-38 : Comparaison de la probabilité de réflexion à l'entrée du matériau à incidence normale avec la surface obtenue avec le modèle de potentiel carré (trait discontinu), de potentiel exponentiel (trait plein) et de potentiel image (trait hachuré) pour un potentiel de surface de 10 eV pour des énergies d'incidence allant jusqu'à 50 eV (a) et 1 eV (b) par Cutler et Davis [CUT-64]. Il est à noter que l'origine de l'énergie est celle dans le vide.

En ce qui concerne le comportement de la probabilité de réflexion, ou de transmission en fonction de l'angle d'incidence, le cas d'une marche de potentiel image est rarement traité. En revanche dans le cas des autres marches, bien que les valeurs des probabilités soient différentes (cf. Figure II-39) la comparaison des résultats montre que l'allure des courbes est la même qu'à incidence normale. Les courbes de la Figure II-39 à des incidences obliques montrent qu'il existe une énergie minimale, $E_{\min, \alpha}$, en-dessous de laquelle un électron attaquant la surface avec un angle α par rapport à la normale ne sera pas transmis.

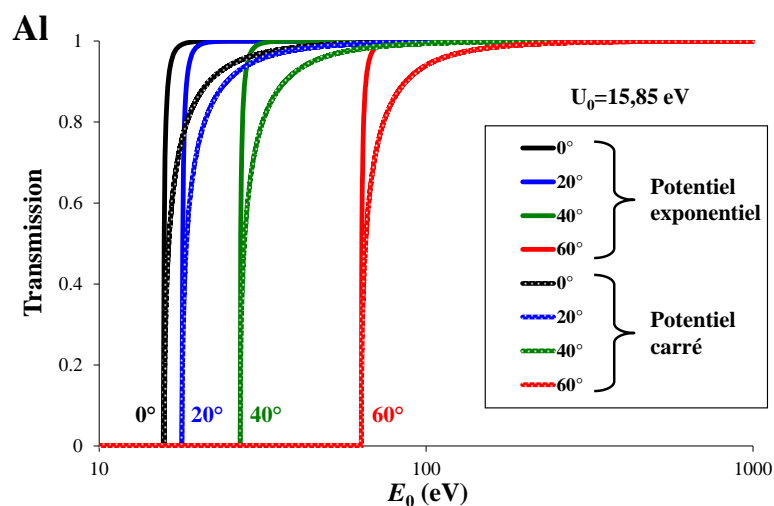


Figure II-39 : Comparaison des probabilités de transmission obtenues avec le potentiel exponentiel (trait plein) et le potentiel carré (trait creux) dans le cas de l'aluminium pour le passage de la cible vers le vide en fonction de l'énergie de l'électron et pour des angles polaires de 0°, 20°, 40° et 80°.

Ce seuil en énergie est obtenu de la même manière que l'angle limite que nous avons présenté dans la section I.2.4.2, c.-à-d. à partir de la loi de réfraction donnée par l'expression **(I-48)**. Cette énergie limite s'exprime de la manière suivante : $E_{\min,\alpha} = U_0 / \cos^2 \alpha$.

Pour conclure cette partie, notons que le modèle de la marche de potentiel de type image est incontestablement le plus proche de la réalité et son utilisation est sans doute la plus appropriée pour notre étude. Toutefois, les calculs du coefficient de réflexion sont complexes et coûteux en temps de calcul. Bien que la probabilité de transmission (ou de réflexion) soit simple à calculer dans le cas d'une marche de potentiel carrée, son utilisation reste très approximative. Aussi la marche de potentiel exponentielle, constituant un compromis entre les deux autres, a été retenue pour la simplicité de ses calculs (expression analytique **(I-52)**) et pour l'ordre de grandeur des valeurs du coefficient de réflexion, plus proche de la réalité (nul pour quelques dizaines d'eV et faible à quelques eV).

II.3.3.2. Implémentation de la marche de potentiel exponentielle

II.3.3.2.1. Libre parcours

Bien que l'interaction d'un électron avec la surface ne possède pas de probabilité d'interaction proprement dite (c.-à-d. section efficace d'interaction) pour pouvoir définir un libre parcours moyen, il a été défini, à l'intérieur de la cible d'aluminium, le libre parcours l en calculant la distance qui sépare l'électron de la surface, soit :

$$l = \frac{|z_0|}{\cos \Theta_0}. \quad \text{(II-78)}$$

Avec z_0 la profondeur à laquelle se trouve l'électron dans le matériau et Θ_0 son angle polaire dans le référentiel du laboratoire. Le calcul est conduit pour les directions $\Theta_0 \in [0, \pi/2[$ permettant d'atteindre la surface. Ce libre parcours est comparé aux libres parcours des autres interactions afin d'effectuer la sélection de l'interaction qui va avoir lieu.

II.3.3.2.2. Conditions de passage

Le traitement classique des phénomènes de réflexion et de réfraction associés au passage d'un électron d'énergie E_0 à la surface représentée par une hauteur de marche U_0 conduit à la relation suivante :

$$E_0 \cdot \cos^2 \Theta_0 \geq U_0. \quad (\text{II-79})$$

Si cette inégalité est satisfaite, l'électron sera transmis dans le vide s'il était dans la cible (et inversement s'il était dans le vide) avec un taux de transmission T . Connaissant Θ_0 et E_0 , ce dernier peut être calculé à l'aide de l'expression (I-52) déduite d'un traitement quantique. Si cette inégalité n'est pas remplie, l'électron sera alors réfléchi par la surface.

Du point de vue des simulations, la condition de réflexion-réfraction est vérifiée en utilisant la relation suivante :

$$R \leq T(E_0, \Theta_0, U_0). \quad (\text{II-80})$$

R étant un nombre aléatoire équidistribué entre 0 et 1.

II.3.3.2.3. Trajectoire et énergie de l'électron incident

II.3.3.2.3.1. Franchissement de la surface

Le franchissement de la surface se fait sans perte d'énergie de l'électron incident mais on assiste à un changement de référentiel d'énergie de l'électron quand il change de milieu. En passant du vide à la cible d'aluminium, l'électron passe du référentiel du vide au référentiel du bas de la bande de conduction, et inversement lorsque il passe de la cible au vide. Ainsi l'énergie de l'électron, E_1 , après le franchissement de la surface, est donnée par :

$$E_1 = E_0 \pm U_0. \quad (\text{II-81})$$

Le signe positif correspond à l'électron rentrant dans la cible d'aluminium (descente de la marche de potentiel) alors que le signe négatif correspond à l'électron sortant dans le vide (remontée de la marche de potentiel).

L'angle polaire Θ_1 de l'électron après traversée de la surface (c.-à-d. angle de réfraction), voir Figure II-40(a)), est donné par l'expression suivante :

$$\Theta_1 = \sin^{-1} \left(\sqrt{\frac{E_0}{E_1}} \cdot \sin \Theta_0 \right). \quad (\text{II-82})$$

En ce qui concerne l'angle azimutal de l'électron, il n'est pas modifié par le passage de la surface.

II.3.3.2.3.2. Réflexion à la surface

On suppose que la réflexion de l'électron se fait également sans perte d'énergie. L'électron ne perd donc pas d'énergie et reste dans le même référentiel d'énergie (c.-à-d. cible). Son angle polaire Θ_1 après réflexion par rapport au plan (OX_0, OY_0) (voir Figure II-40(b)) est donnée par l'expression $\Theta_1 = \pi - \Theta_0$. L'angle azimutal de l'électron n'est pas plus modifié lors de la réflexion.

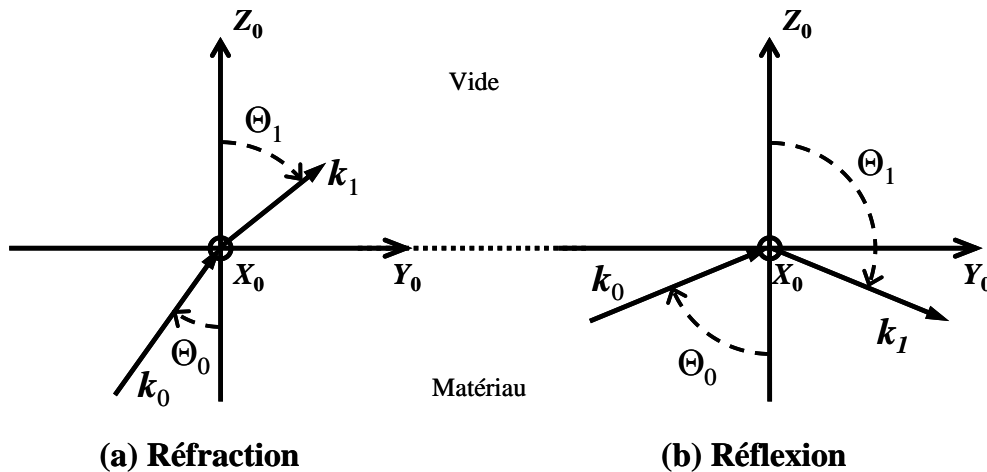


Figure II-40 : Déviation de l'électron incident lors de son interaction avec la surface, soit par réfraction (à gauche), soit par réflexion (à droite).

II.4. Validation préliminaire de l'approche

Avant la mise en œuvre des différents modèles évoqués précédemment et que nous avons choisis pour simuler l'émission électronique proprement dite de l'aluminium, il est important de vérifier ce choix de modèles ainsi que les modifications que nous leur avons apportées. Cette vérification se fera à travers deux grandeurs caractéristiques des interactions électron-matière à savoir le libre parcours moyen inélastique et le pouvoir d'arrêt que nous allons définir. Le libre parcours moyen inélastique (LPMI) λ_{inel} est le libre parcours moyen de l'ensemble des interactions inélastiques défini par :

$$\lambda_{inel}^{-1} = \sum_l \lambda_l^{-1}, \quad (\text{II-83})$$

avec λ_l le libre parcours moyen de la $l^{\text{ième}}$ interaction inélastique caractéristique du matériau. Le pouvoir d'arrête représente la perte d'énergie par unité de longueur que subit l'électron au cours de son déplacement dans le matériau. Pour chaque interaction on peut définir un pouvoir d'arrêt S tel que :

$$S = \int \hbar\omega \cdot \frac{d\lambda^{-1}}{d\hbar\omega} d\hbar\omega, \quad (\text{II-84})$$

avec $\frac{d\lambda^{-1}}{d\hbar\omega}$ la différentielle de l'inverse du libre parcours moyen de l'interaction considérée.

Le pouvoir d'arrêt total S_{tot} du matériau est donné par :

$$S_{tot} = \sum_i S_i, \quad (\text{II-85})$$

avec S_i le pouvoir d'arrêt de la $i^{\text{ième}}$ interaction considérée.

Désormais, nous allons comparer les résultats de la simulation de ces deux grandeurs, obtenus dans le cas de l'aluminium aux données, aussi bien théoriques qu'expérimentales, issues de la littérature.

II.4.1. Libre parcours moyen inélastique

L'expression (II-82), prenant en compte l'ensemble des interactions inélastiques traitées, a été utilisée pour calculer le libre parcours moyen inélastique. Ces interactions étant les interactions électron-électron faiblement lié, électron-électron fortement lié, électron-électron plasmon de volume et électron-électron plasmon de surface. Les résultats obtenus ont été confrontés aussi bien à ceux déduits de simulations que d'expériences (voir Figure II-41) Dans le cas des simulations il s'agit notamment des travaux de Mao et co. [MAO-08], Fernandez-Varea et co. [FER-05] et Ashley [ASH-88]. Ces travaux décrivent les interactions avec les électrons faiblement liés et avec les plasmons de volume en utilisant la constante diélectrique déduite des pertes optiques [PEN-86] alors que l'interaction avec les électrons fortement liés est décrite par la méthode GOS. Les données expérimentales sont celles de Kanter [KAN-70], de Huen et Wooten [HUEN-71], de Callcott et Arakawa [CAL-75], de Powell *el al.* [POW-77] et de Beilschmidt et co. [BEI-94]. Nous avons également représenté sur la Figure II-41 les valeurs du LPMI déduites de la spectroscopie du pic élastique par Gergely [GER-87].

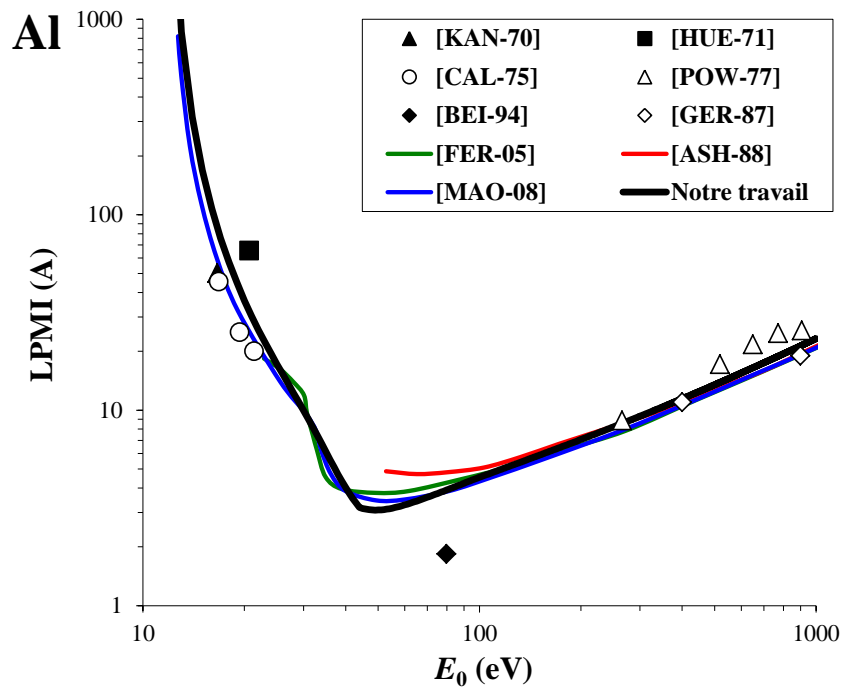


Figure II-41 : Libre parcours moyen inélastique dans l'aluminium en fonction de l'énergie de l'électron. Simulations : notre approche (trait noir) ; Mao et co. [MAO-08] (trait bleu) ; Fernandez-Varea et co. [FER-05] (trait vert) ; Ashley [ASH-88] (trait rouge). Expériences : Kanter [KAN-70] (▲) ; Huen et Wooten [HUEN-71] (■) ; Callcott et Arakawa [CAL-75] (○) ; Powell *el al.* [POW-77] (△) ; Beilschmidt et co. [BEI-94] (◆) ; Gergely [GER-87] (◇).

Pour des énergies incidentes de 100 à 1000 eV, à l'exception des résultats expérimentaux de Beilschmidt et co. [BEI-94], nos résultats sont globalement en très bon accord avec ceux des simulations et des expériences. Aux très basses énergies (c.-à-d. énergies d'incidences inférieures à une trentaine d'eV), la comparaison se fait avec les seuls résultats de la simulation rencontrés dans la littérature et obtenus par Mao et co. [MAO-08] et avec les résultats expérimentaux cités. L'accord est également très satisfaisant. Indépendamment du modèle utilisé, on constate que le libre parcours moyen présente toujours un minimum qui se produit dans le domaine d'énergie entre une trentaine d'eV et une centaine d'eV. Bien que sa position ait tendance à changer légèrement avec le modèle utilisé, les écarts restent faibles exceptés pour le modèle d'Ashley dont le formalisme ne rend pas correctement compte de cette gamme d'énergie. L'énergie où apparaît ce minimum correspond à une gamme d'énergie où l'interaction avec le plasmon de volume apparaît et où son libre parcours moyen atteint son minimum. Pour des énergies inférieures, c'est l'interaction électron-électron de conduction qui domine le comportement du LPMI.

II.4.2. Pouvoir d'arrêt

Bien que notre approche n'utilise pas directement le pouvoir d'arrêt, nous l'avons déterminé pour, d'une part, estimer la perte d'énergie effective moyenne sur un élément de trajectoire de l'électron ce qui permettra de caractériser globalement l'interaction inélastique et d'autre part, pour valider nos simulations en comparant nos résultats avec ceux obtenus par la formule de Bethe (prise en compte de tous les processus inélastiques dans un mode de ralentissement continu) valable pour des énergies suffisamment élevées (au-delà de quelques centaines d'eV).

Le pouvoir d'arrêt total est déterminé en faisant la somme des pouvoirs d'arrêt associés aux différentes interactions calculés à l'aide de l'expression **(II-83)**. Le pouvoir d'arrêt de l'interaction élastique de l'électron avec le noyau étant nul puisque les pertes d'énergies lors de cette interaction sont négligeables.

La Figure II-42 donne une comparaison du pouvoir d'arrêt déduit de nos simulations avec des résultats théoriques et expérimentaux trouvés dans la littérature. Pour les simulations, il s'agit des travaux mentionnés précédemment pour le libre parcours moyen inélastique [MAO-08, FER-05, ASH-88]. Le calcul du pouvoir d'arrêt proposé par Bethe [BET-30] est également

représenté. Concernant les pouvoirs d'arrêts obtenus expérimentalement, nous avons repris ceux compilés par Joy et co. [JOY-96]. On constate que l'accord entre nos résultats et ces derniers est très satisfaisant. L'accord est également très satisfaisant à très basse énergie aussi bien avec l'expérience qu'avec les simulations de Mao et co. [MAO-08] et de Fernandez-Varea et co. [FER-05]. En revanche, notre pouvoir d'arrêt est relativement plus faible que celui de Mao et co. et Fernandez-Varea et co. de la dizaine d'eV à plusieurs centaines d'eV. Comme on pouvait s'y attendre le pouvoir d'arrêt issu de notre approche est en bon accord, à haute énergie (quelques centaines d'eV), avec celui de Bethe, qui ne prend en compte que des électrons fortement liés mais également avec ceux déduits des autres modèles. Excepté l'accord avec les résultats de Bethe, le modèle d'Ashley donne des valeurs plus faibles que celles de l'ensemble des modèles y compris notre approche. Nous devons noter deux épaulements dans notre pouvoir d'arrêt. Un vers la quarantaine d'eV et un autre vers la centaine d'eV. Le premier peut être dû à la jonction entre les modèles de Ritchie et Ashley et de Chung et Everhart pour l'interaction avec les électrons faiblement liés. Le deuxième peut être assigné à l'excitation des électrons sur les couches internes de l'atome (1s, 2s, 2p), c.-à-d. interaction avec les électrons fortement liés [ASH-79].

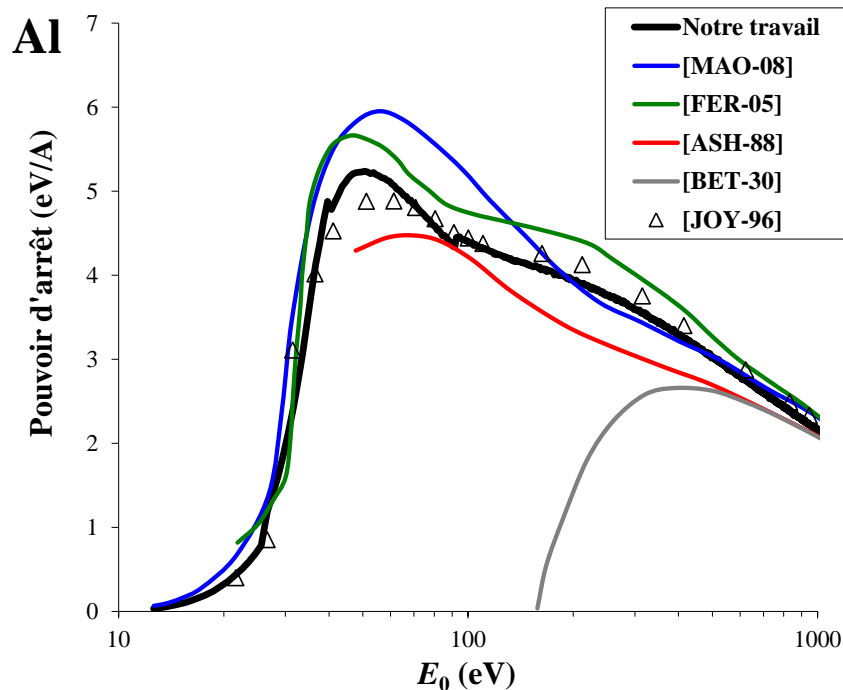


Figure II-42 : Comparaison des pouvoirs d'arrêt total dans l'aluminium. Simulations : Notre approche (trait noir) ; Mao et co. [MAO-08] (trait bleu) ; Fernandez-Varea et co. [FER-05] (trait vert) ; Ashley [ASH-88] (trait rouge) ; Bethe [BET-30] (trait gris). Mesures : compilation de Joy et co. [JOY-96] (Δ).

Bibliographie du chapitre

- [AND-72] S. Andersson, « *Plasmon thresholds in the secondary electron yield – I. Experiment* », Solid State Commun., **11**, (1972), pp.1401.
S. Andersson, B. I. Lundqvist, G. Srinivasan, E. Wikborg, « *Plasmon thresholds in the secondary electron yield – II. Dispersion laws* », Solid State Commun., **11**, (1972), pp.1405.
- [ASH-76] N.W. Ashcroft, N. D. Mermin, « *Solid State Physics* », Saunders College Publishing », (1976).
- [ASH-79] J.C. Ashley, C. J. Tung, R.H. Ritchie, « *Electron inelastic mean free paths and energy losses in solids I* », Surf. Sci., **81**, (1979), pp.409.
- [ASH-88] J.C. Ashley, « *Interaction of low-energy electrons with condensed matter: stopping powers and inelastic mean free paths from optical data* », J. Electr. Spectr. Rel. Phenom., **46**, (1988), pp.199.
- [BEA-67] J.A. Bearden, A.F. Burr, « *Reevaluation of X-Ray Atomic Energy Levels* », Rev. Mod. Phys., **39**, (1967), pp.125.
- [BEI-94] H. Beilschmidt, I.S. Tilinin, W.S.M. Werner, « *Inelastic mean free path of medium energy electrons in Au, Pt, Ni and Al determined by Elastic peak electron spectroscopy* », Surf. Interface Anal., **22**, (1994), pp.120.
- [BER-99] D. Berger, H. Niedrig, « *Complete Angular Distribution of Electrons Backscattered from Tilted Multicomponent Specimens* », Scanning, **21**, (1999), pp.187.
- [BET-30] H.A. Bethe, « *Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie* », Ann. Physik, **5**, (1930), pp.325.
- [BOT-06] D. Bote, F. Salvat, « *Calculations of inner-shell ionization by electron impact with the distorted-wave and plane-wave Born approximations* », Phys. Rev. A, **77**, (2006), pp.042701.
- [CAI-90] M. Cailler, J.P. Ganachaud, « *Secondary electron emission from solids. I. secondary electron spectroscopy* », Scanning Microscopy Suppl., **4**, (1990), pp.57.
M. Cailler, J.P. Ganachaud, « *Secondary electron emission from solids II. Theoretical description* », Scanning Microscopy Suppl., **4**, (1990), pp. 81.
- [CAL-75] T.A. Callcott, E.T. Arakawa, « *Volume and surface photoemission processes from plasmon resonance fields* », Phys. Rev. B, **11**, (1975), pp.2750.
- [CAZ-12] J. Cazaux, « *Reflectivity of very low energy electrons (<10 eV) from solid surfaces: Physical and instrumental aspects* », J. Appl. Phys., **111**, (2012), pp.064903.
- [CHU-70] M.F. Chung, L.H. Jenkins, « *Auger electron energies of the outer Shell electrons* », Surf. Sci. **22**, (1970), pp. 479.
- [CHU-77] M.S. Chung, T.E. Everhart, « *Role of plasmon decay in secondary electron emission in the nearly-free-electron metals. Application to Aluminium* », Phys. Rev., **10**, (1977), pp.4699.
- [CIM-06] R. Cimino, « *Surface related properties as an essential ingredient to e-cloud simulations* », Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, **561**, (2006), pp. 272.

- [CUT-64] P. H. Cutler, J. C. Davis, « *Reflexion and Transmission of electrons through surface potential barriers* », *Surf. Sci.*, **1**, (1964), pp.194.
- [CZY-90] Z. Czyzewski, D.O Mac Callum, A. Romig, D.C. Joy, « *Calculations of Mott scattering cross section* », *Journal of Applied Physics*, **68**, (1990), pp.3066.
- [DEV-91] J. Devooght, J.C. Dehaes, A. Dubus, M. Cailler, J.P. Ganachaud, « *Theoretical description of secondary electron emission induced by electron or ion beams impinging on solids* », *Particle induced electron emission I*, Springer Tracts in modern Physics, **22**, (1991), pp.67.
- [DIN-96] Z.J. Ding, R. Shimizu, « *A Monte Carlo modeling of electron interaction with solids including cascade secondary electron production* », *Scanning*, **18**, (1996), pp.92.
- [DIN-01] Z.J. Ding and X.D. Tang, « *Monte Carlo study of secondary electron emission* », *J. Appl. Phys.*, **89**, (2001), pp.718.
- [DRO-97] D. Drouin, P. Hovington, R. Gauvin, « *CASINO: a new Monte Carlo calculation code in C language for electron beam interactions-Part II: tabulated values of the Mott cross section* », *Scanning*, **19**, (1997), pp.20.
- [DUB-93] A. Dubus, J.C. Dehaes, J.P. Ganachaud, A. Hafni, M. Cailler, « *Monte Carlo evaluation of the influence of the interaction cross sections on the secondary-electron-emission yields from polycrystalline aluminum targets* », *Phys. Rev. B*, **47**, (1993), pp.11056.
- [EGE-93] W. F. Egelhoff, « *Semiclassical explanation of the generalized Ramsauer-Townsend minima in electron-atom scattering* », *Phys. Rev. Lett*, **71**, (1993), pp.2883.
- [EHR-66] H. Ehrenreich, « *Optical Properties of Solids* », Ed. J. Tauc (Academic, New York, 1966), pp.106.
- [FAN-47] U. Fano, « *Ionization Yield of Radiations. II. The Fluctuations of the Number of Ions* », *Phys. Rev.*, **72**, (1947), pp.26.
- [FEI-73] P.J. Feibelman, « *Sensitivity of Surface-Plasmon Dispersion and Damping to Potential Barrier Shape* », *Phys. Rev. Lett.*, **30**, (1973), pp.975-978.
- [FER-05] J.M. Fernandez-Verea, F. Salvat, M. Dingfelder, D. Liljequist, « *A relativistic optical-data model for inelastic scattering of electrons and positrons in condensed matter* », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, **229**, (2005), pp.187.
- [FOM-66] V. S. Fomenk, « *Handbook of Thermonic Properties* », G. V. Samsanov, Ed. Plenum Press Data Division, New-York, (1966).
- [GAN-77] J.P. Ganachaud, « *Contribution à l'étude théorique de l'émission électronique secondaire des métaux* », Thèse d'état, Université de Nantes 1977.
- [GAN-79] J.P. Ganachaud, M. Cailler, « *A Monte Carlo simulation of secondary electron emission of normal metals. I. The model* », *Surf. Sci.*, **83**, (1979), pp.498.
- [GER-87] G. Gergely, « *Angular corrections for determining the electron inelastic mean free path (IMFP) by elastic peak electron spectroscopy* », *Vacuum*, **37**, (1987), pp.149.
- [GOU-40] S. Goudsmit, J.L. Saunderson, « *Multiple Scattering of Electrons* », *Phys. Rev.*, **57**, (1940), pp.24.

- [GRE-63] M. Green, « *A Monte Carlo Calculation of the Spatial Distribution of Characteristic X-ray Production in a Solid Target* », Proc. Phys. Soc., **82**, (1963), pp.204.
- [GRY-65] M. Gryziński, « *Two-Particle Collisions. I. General Relations for Collisions in the Laboratory System* », Physical Review **138** (2A), (1965), pp.A305
M. Gryziński, « *Two-Particle Collisions. II. Coulomb Collisions in the Laboratory System of Coordinates* », Physical Review **138** (2A), (1965), pp.A322.
M. Gryziński, « *Classical theory of atomic collisions. I. Theory of inelastic collisions* », Physical Review **138** (2A), (1965), pp.A336.
- [HOV-97] P. Hovington, D. Drouin, R. Gauvin, « *CASINO: A new Monte Carlo code in C language for electron beam interaction-Part I: Description of the program* », Scanning, **19**, (1997), pp.1.
- [HUE-71] T. Huen, F. Wooten, « *Photoemission from aluminum* », Solid State Commun., **9**, (1971), pp.871.
- [JAB-03] A. Jablonski, F. Salvat, C.J. Powell, « *NIST Electron Elastic-Scattering Cross-Section Database—Version 3.1* », National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg MD, 2003; <http://www.nist.gov/srd/nist64.htm.cell>.
- [JAB-04] A. Jablonski, F. Salvat, C.J. Powell, « *Comparison of electron elastic-scattering cross sections calculated from two commonly used atomic potentials* », J. Phys. Chem. Ref. Data. **33**, **2**, (2004), pp.409.
- [JOY-89] D.C. Joy, S. Luo, « *An Empirical Stopping Power Relationship for Low-Energy Electrons* », Scanning, **11**, (1989), pp.176.
- [JOY-96] D.C. Joy, S. Luo, R. Gauvin, P. Hovington, N. Evans, « *Experimental measurements of electron stopping power at low energies* », Scanning Microsc., **10**, (1996), pp.653.
- [KAN-70] H. Kanter, « *Slow-Electron Mean Free Paths in Aluminum, Silver, and Gold* », Phys. Rev. B, **1**, (1970), pp.522.
- [KIT-76] C. Kittel, « *Introduction to solid state physics* », Ed. John Wiley & Sons, New-York (1976).
- [KOY-70] R.Y. Koyama, N.V. Smith, « *Photoemission Properties of Simple Metals* », Phys. Rev. B, **2**, (1970), pp.3049.
- [KRA-76] K.J. Krane, H. Raether, « *Measurement of Surface Plasmon Dispersion in Aluminum and Indium* », Phys. Rev. Lett., **37**, (1976), pp.1355.
- [KRA-79] M.O. Krausse, « *Atomic radiative and radiationless Yields for K and L Shells* », J. Phys. Chem. Ref. Data, **12**, (1979), pp.307.
- [KUH-99] J.Ch. Kuhr, H.J. Fitting, « *Monte Carlo of electron emission from solids* », J. Electr. Spect. And Rel. Phenom., **105**, (1999), pp.257.
J. Ch. Kuhr, H.J. Fitting, « *Monte Carlo of low energy electron scattering in solids* », Phys. Stat. Sol. (a), **172**, (1999), pp.433.
- [KWE-98] C. M. Kwei, Y. F. Chen, C. J. Tung, « *Elastic reflection of low-energy electrons from polycrystalline gold targets* », J. Phys. D: Appl. Phys., **31**, (1998), pp.36.
- [LIN-54] J. Lindhard, « *On the Properties of a Gas of Charged Particles* », Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-Fys. Medd. **28**, (1954).

- [LLA-69] J. Llacer, E.L. Garwin, « *Electron - Phonon Interaction in Alkali Halides. I. The Transport of Secondary Electrons with Energies between 0.25 and 7.5 eV* », J. Appl. Phys., **40**, (1969), pp2766; « *Electron - Phonon Interaction in Alkali Halides. II. Transmission Secondary Emission from Alkali Halides* », J. Appl. Phys., **40**, (1969), pp2776.
- [MAO-08] S.F. Mao, Y.G. Li, R.G. Zeng, Z.J. Ding, « *Electron inelastic scattering and secondary electron emission calculated without the single pole approximation* », J. Appl. Phys., **104**, (2008), pp.114907.
- [MCF-65] R. H. McFarland, « *Gryziński Electron-Impact Ionization Cross-Section Computations for the Alkali Metals* », Phys. Rev., **139**, (1965), pp.A40.
- [MER-70] N.D. Mermin, « *Lindhard Dielectric Function in the Relaxation-Time Approximation* », Phys. Rev. B, **1**, (1970), pp.2362.
- [MUR-95] K. Murata, M. Yasuda, H. Kawata, « *Effects of the introduction of the discrete energy loss process into Monte Carlo simulation of electron scattering* », Scanning, **17**, (1995), pp.228.
- [NUN-80] R. Núñez, P. M. Echenique et R. H. Ritchie, « *The energy loss of energetic ions moving near a solid surface* », J. Phys. C **13**, (1980), pp.4229.
- [ÖZT-91] N. T Öztürk, W. Williamson, A.J. Antolak, « *Elastic scattering of electrons and positrons by bound gallium and arsenic atoms* », J. Appl. Phys., **70**, (1991), pp.537.
- [PEN-74] J.B. Pendry, « *Low energy electron diffraction* », Acad. Press, London and New York, (1974).
- [PEN-86] D. R. Penn, « *Electron mean-free-path calculations using a model dielectric function* », phys. Rev. B, **35**, (1986), pp.482.
- [POW-77] C. J. Powel, R. J. Stein, P. B. Needham, Jr., T. J. Driscall, « *Attenuation lengths of low-energy electrons in solids derived from the yield of proton-excited Auger electrons: beryllium and aluminum* », Phys. Rev. B, **16**, (1977), pp.1370-1379.
- [RAE-65] H. Raether, « *Solid State Excitations by Electrons (Plasma Oscillations and Single Electron Transitions)* », Springer Tracts in Modern Physics, **38**, Springer-Verlag, Berlin, (1965).
- [RAE-80] H. Raether, « *Excitations of plasmons and Interband Transitions by Electrons* », Springer Tracts in Modern Physics, **88**, Springer-Verlag, Berlin, (1980).
- [REI-84] L. Reimer, B. Lödding, « *Calculation and tabulation of Mott cross-sections for large-angle electron scattering* », Scanning, **6**, (1984), pp.128.
- [RIC-10] P. Riccardi, M Pisatta, A. Cupolillo, M. Comisso, A. Sindonna, R.A. Baragiola, C.A. Dukes, « *Secondary electron emission spectra from clean and cesiated Al surfaces : the role of plasmon decay and data analysis for applications* », J. Phys. Condens. Matter, **22**, (2010), pp.305004.
- [RIT-65] R.H. Ritchie and J.C. Ashley, « *The interaction of hot electrons with free electron gaz* », J. Phys. Chem. Solids, **26**, (1965), pp.1689.
- [SAL-93] F. Salvat, R. Mayol, « *Elastic scattering of electrons and positrons by atoms. Schrödinger and Dirac partial wave analysis* », Comp. Phys. Com., **74**, (1993), pp.358-374.

- [SAL-03] F. Salvat, J. M. Fernandez-Varea, J. Sampaú, « *PENELOPE-A code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport* », 2nd ed (OECD/Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux, Paris, 2003).
- [SAL-05] F. Salvat, A. Jablonsky, C.J. Powell, « *ELSEPA-Dirac partial-wave calculation of elastic scattering of electrons and positrons by atoms, positive ions and molecules* », *Comp. Phys. Comm.*, **165**, (2005), pp.157.
- [SHI-71] R. Shimizu, K. Murata, « *Monte Carlo calculations of the electron-sample interactions in the scanning electron microscope* », *J. App. Phys.*, **42**, (1971), pp.387.
- [SMR-70] L. Smrčka, « *Energy band-structure of aluminium by augmented-plane-wave method* », *Czech. J. Phys.*, **B20**, (1970), pp.291.
- [STE-03] J. Stepanek, « *Electron and positron atomic elastic scattering cross sections* », *Radiation Physics and Chemistry*, **66**, (2003), pp.99.
- [SUL-03] J. Sulkimoah, M. Takahataay, S. Tanakabg, E. Tcherniaeva, E. Safai Tehranig, M. Tropeanoae, P. Truscotbe, H. Unoaw, L. Urbanv, P. Urbanaq, M. Verderiap, A. Walkdenas, W. Wanderav, H. Weberaf, J. P. Wellischa, I, T. Wenaus, D.C. Williamsj, D. Wrightg, h, T. Yamadaaw, H. Yoshidaaw, D. Zschiescheaf, « *Geant4—a simulation toolkit* », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **506**, (2003), pp.250.
- [TOU-87] S. Tougaard, I. Chorkendorff, « *Differential inelastic electron scattering cross sections from experimental reflection electron-energy-loss spectra: Application to background removal in electron spectroscopy* », *Phys. Rev. B*, **22**, (1987), pp. 6573.
- [VAN-65] W. Van Roosbroeck, « *Theory of the yield and fano factor of electron-hole pairs generated in semiconductors by high-energy particles* », *Phys. Rev.*, **139**, (1965), pp.A1702.
- [VAS-72] P. Vashishta, K.S. Singwi, « *Electron Correlations at Metallic Densities. V* », *Phys. Rev. B*, **6**, (1972), pp.875.
- [VIC-99] M. Vicanek, « *Electron transport processes in reflection electron energy loss spectroscopy (REELS) and X-ray photoelectron spectroscopy (XPS)* », *Surf. Sci.*, **440**, (1999), pp.1.
- [VON-51] J. Von Neumann, « *Various techniques used in connection with random digits.* », *NBS Appl. Math. Series*, **12**, (1951), pp.36.
- [WAN-96] J. P. Wang, C. J. Tung, Y. F. Chen, C. M. Kwei, « *The surface effect on Au 4f X-ray photoelectron spectra* » *Nucl. Instrum. Meth. B*, **108**, (1996), pp.331.

**CHAPITRE III - SIMULATIONS ET
EXPÉRIENCES À BASSE ÉNERGIE :
COMPARAISON DES RÉSULTATS**

CHAPITRE III. Simulations et expériences à basse énergie : Comparaison des résultats

III.1. Introduction

Désormais, nous disposons d'une approche permettant de reproduire les trajectoires d'électrons dans une cible d'aluminium soumis à un bombardement électronique et d'avoir accès aux grandeurs phénoménologiques de son émission électronique. Rappelons que cette approche, décrite dans le chapitre II, a été établie en combinant plusieurs modèles avec néanmoins des modifications cruciales permettant d'améliorer la simulation. L'objectif de cette étude est la mise en œuvre de l'approche établie dans la gamme des basses énergies ($100 \text{ eV} < E_0 < 1 \text{ keV}$) et plus particulièrement dans celle des très basses énergies ($E_0 < \text{quelques dizaines d'eV}$).

À basse énergie, la littérature est relativement abondante en ce qui concerne les données aussi bien expérimentales que résultant de simulations numériques, portant sur les rendements d'émission (total, secondaire vrai, rétrodiffusion) et les spectres en énergie des électrons émis. Cependant, les données sur les distributions angulaires, restent rares dans cette gamme d'énergie. En revanche, à très basse énergie, les données sur l'aluminium sont très rares pour le rendement, voire inexistantes pour les distributions en énergie et en angle des électrons émis. Pour la plupart des grandeurs simulées dans la gamme d'énergie explorée, la confrontation de nos résultats avec ceux de la littérature est tout de même possible.

Sur le plan expérimental le peu de résultats [CIM-06, BRO-69] que l'on peut trouver dans la littérature témoigne de la difficulté à conduire des expériences dépourvues de tout artefact dans le domaine des très basses énergies. En effet, les aspects aussi bien qualitatifs que quantitatifs notamment du rendement d'émission font l'objet d'un débat soutenu et constructif et en particulier son allure et sa valeur quand l'énergie primaire tend vers zéro. C'est dans le but d'apporter une contribution à la compréhension de ce dernier comportement que nous avons entrepris une étude expérimentale qui consiste à mettre en œuvre un appareillage approprié (DEESSE), mis au point au laboratoire (DESP ONERA), pour mesurer les grandeurs caractéristiques de l'émission électronique. L'instrumentation utilisée ainsi que les procédures suivies seront alors décrites avant de confronter les résultats de la simulation à

ceux obtenus expérimentalement. Ces résultats qui rendent compte de façon satisfaisante de la distribution énergétique et du rendement total des électrons émis sont ensuite analysés.

Concernant les distributions angulaires des électrons émis, le manque de données dans la littérature aussi bien à très basse énergie qu'à basse énergie ne permettra pas une confrontation des résultats. On se limitera donc à une analyse du comportement des distributions selon les paramètres ajustables de la simulation.

III.2. Résultats

III.2.1. Simulation

III.2.1.1. Distribution énergétique

III.2.1.1.1. Basse énergie (de 100 eV à 1 keV)

Les distributions énergétiques simulée et expérimentale, des électrons émis par la surface de la cible sont reproduites sur la Figure III-1. La distribution expérimentale est extraite des travaux de Riccardi et co. [RIC-10]. Les allures sont classiques et connues depuis les travaux de Harrower [HAR-56]. Comme on pouvait s'y attendre chaque distribution présente un pic associé aux secondaires vrais (sommet à environ 10 eV), un à 130 eV pour les électrons diffusés élastiquement (ayant subis au moins une collision élastique). En agrandissant la partie du spectre adjacente au pic élastique, on observe non seulement des structures correspondant aux pertes caractéristiques mais également les pics Auger. On distingue plus particulièrement les deux types de plasmons (c.-à-d. volume et surface) et leurs multiples. L'ensemble des pics s'inscrit sur un fond qui correspond aux électrons rétrodiffusés. La comparaison des résultats de la simulation et de l'expérience [RIC-10] est plutôt satisfaisante avec tout de même une largeur à mi-hauteur du pic secondaire expérimental plus large et également un élargissement des pics plasmons. L'élargissement est dû en particulier au fait que le spectre expérimental est convolué par la fonction d'appareil de l'analyseur. Cet élargissement et en particulier celui des pics plasmons (volume ou surface), est en principe lié aux effets Coulombiens et du réseau, aux états de surface, aux défauts et impuretés etc., qui ne sont pas pris en compte dans notre simulation [GAN-79]. D'autre part, la finesse des pics simulés pourrait, en partie, venir du fait que les interactions avec les plasmons de surface ont été simplifiées et les interactions faibles (phonons) ont été négligées. Dans le domaine des électrons secondaires vrais du spectre simulé, on observe des épaulements qui sont en liaison

avec la structure électronique du solide et que nous attribuons aux contributions des désexcitations des plasmons de volume et de surface.

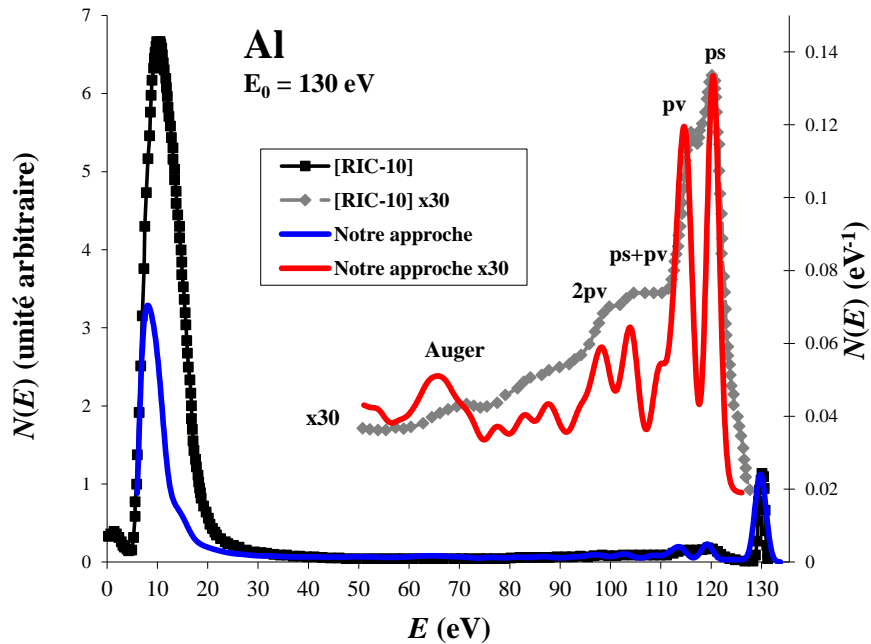


Figure III-1 : Comparaison des distributions énergétiques, simulée (notre approche) et expérimentale [RIC-10], des électrons émis par l'Al à une énergie primaire de 130 eV. Les pics intitulés ps et pv indiquent respectivement les pertes par plasmons de surface et plasmons de volume.

III.2.1.1.1. Distribution des électrons secondaires vrais

Les épaulements observés sur la distribution des électrons secondaires vrais n'étant pas très marqués dans le spectre mesuré par Riccardi et co. [RIC-10], nous avons préféré faire appel à un autre spectre expérimental, notamment celui de Pillon et co. [PIL-76] obtenu à une énergie primaire de 300 eV. La Figure III-2 compare ce spectre au spectre simulé en les normalisant par rapport au maximum de la distribution des secondaires vrais. Deux épaulements à 7 eV et à 11 eV sont présents sur la distribution expérimentale. Des épaulements que l'on retrouve sur la distribution simulée avec toutefois des intensités différentes. L'allure de la distribution des secondaires vrais ne peut s'expliquer qu'en simulant les différentes contributions attribuées aux différentes interactions comme illustré sur la Figure III-3. Il s'agit de la contribution des électrons de conduction ainsi que celles des désexcitations des plasmons de volume et de surface

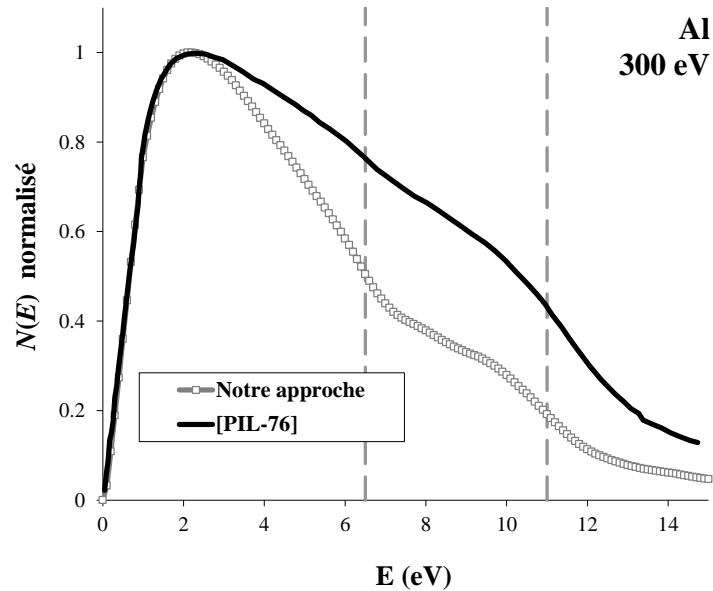


Figure III-2 : Comparaison du pic des secondaires des distributions énergétiques, simulée (notre approche) et expérimentale [PIL-76], des électrons émis par l'Al à une énergie primaire de 300eV. Les traits hachurés verticaux indiquent les épaulements.

La contribution liée aux électrons de conduction est dépourvu d'épaulements, ce qui montre que ces derniers proviennent bel et bien des deux autres contributions.

L'épaulement à 11 eV résulte des électrons émis qui ont été excités suite à une interaction avec un plasmon de volume. Ces électrons ont une énergie comprise entre 15 et 30 eV dans le matériau, car les conditions de création du plasmon (voir Figure II-34 de la section II.3.2.2.2.3) doivent être respectées, et auront par conséquent une énergie comprises entre 0 et 15 eV dans le vide.

La même explication reste valable pour l'épaulement observé à 7 eV dû à l'interaction électron-plasmon de surface. En effet, les électrons excités suite à cette interaction ont une énergie comprise entre 11,6 et 22,2 eV dans le matériau, et auront par conséquent une énergie comprise entre 0 et 7 eV dans le vide.

Le premier épaulement observé sur la contribution des plasmons de volume est la conséquence directe de celui dû à la désexcitation du plasmon de surface, car les électrons ayant interagi avec les plasmons de surfaces ne peuvent pas sortir du matériau.

Comparé à l'expérience (Figure III-2), l'intensité de l'épaulement lié aux plasmons de volume semble être sous-estimée. Ceci est probablement lié à une surestimation de la probabilité d'excitation du plasmon de surface dans le domaine d'énergie étudié qui provoque un fort ralentissement des électrons excités par les plasmons de volume.

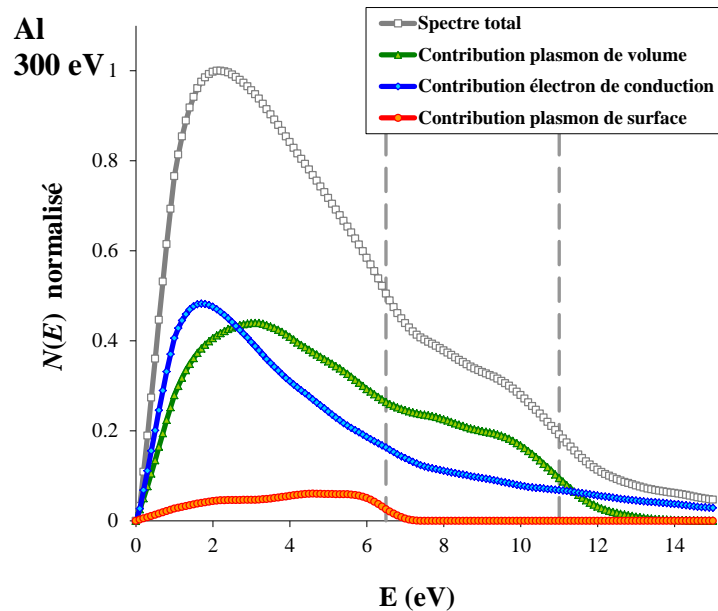


Figure III-3 : Contributions des différentes interactions à la distribution des électrons secondaires vrais dans le cas de l'Al à une énergie primaire de 300 eV. Plasmons de volume (Δ vert) ; électrons de conduction excités (\diamond bleu) ; plasmon de surface (\square orange). Les traits hachurés verticaux indiquent les épaulements.

Dans le paragraphe qui suit, nous présentons la procédure suivie pour déterminer le paramètre A (voir section II.3.2.2.3.1) impliqué dans l'expression de la probabilité d'interaction et qui permet d'obtenir un ajustement optimal des spectres simulés aux spectres expérimentaux.

III.2.1.1.1.2. Spectre des rétrodiffusés inélastiques et le paramètre A

Pour simuler les spectres, le choix de la valeur initiale du paramètre A , qui intervient dans l'expression (II-73) (section II.3.2.2.3.1) du libre parcours, a été effectué en se fondant sur les travaux de Raether [RAE-65] qui donne une forme simplifiée de la probabilité d'excitation d'un plasmon de surface. La procédure consiste à déterminer par itération le paramètre A qui donne le meilleur accord entre les spectres simulés et les spectres REELS expérimentaux obtenus à basse énergie par Tougaard et co. [TOU-87]. Les spectres simulés pour différentes énergies primaires et à incidence normale qui découlent de cette procédure sont comparés aux spectres expérimentaux sur la Figure III-4. Précisons qu'indépendamment de l'énergie d'incidence, le meilleur accord a été obtenu avec la même valeur du paramètre A . Comme on peut s'y attendre, on constate une diminution de l'intensité du pic lié à une perte par plasmon de surface par rapport à celui lié à une perte par plasmon de volume lorsque l'énergie primaire augmente. Une bonne correspondance entre les pics simulés et les pics

mesurés liés à des pertes plasmons multiples (1 volume et 1 surface, 2 volumes, 2 volumes et 1 surface, ...) est également observé.

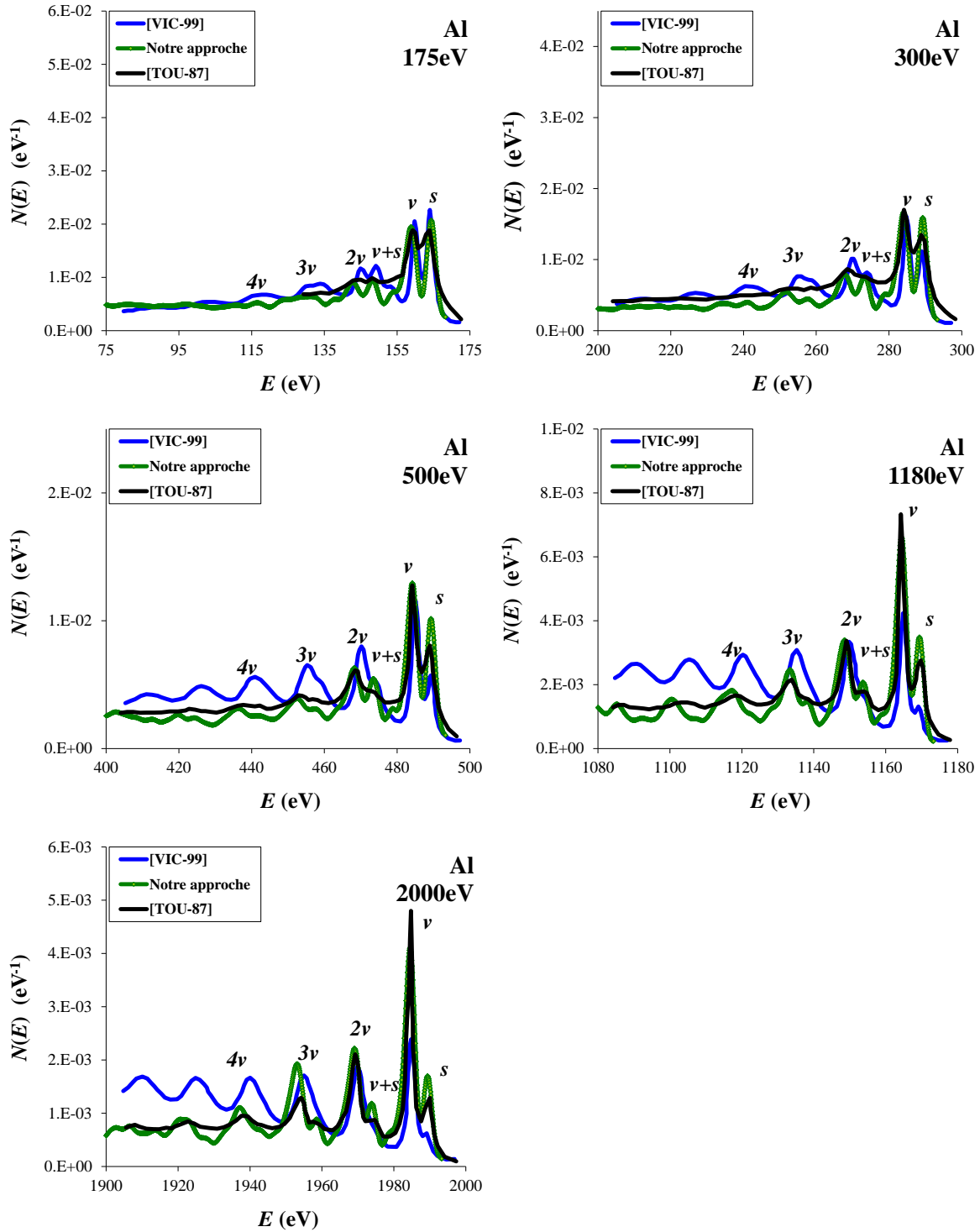


Figure III-4 : Pics des rétrodiffusés inélastiques obtenus pour différentes énergies primaires. Expérience : Tougaard et co. [TOU-87] (trait noir), Simulation : notre approche (trait vert et \diamond vert) ; Vicanek [VIC-99] (trait bleu). Les pics liés à un plasmon de surface et à un de volume sont respectivement indiqués s et v .

À titre de comparaison, les spectres simulés par Vicanek [VIC-99] sont aussi indiqués sur la Figure III-4. On constate que seuls les pics liés à une perte plasmon unique (volume ou surface) concordent avec les nôtres. Le décalage, entre nos résultats et ceux de Vicanek, observé pour les pics des pertes multiples est probablement dû au fait que ce dernier utilise un modèle avec une constante diélectrique modifiée pour tenir compte de l'interaction avec le plasmon de surface.

III.2.1.1.2. Très basse énergie ($E_0 < 30$ eV)

La distribution en énergie des électrons émis aux très basses énergies (inférieures à quelques dizaines d'eV) est en général très difficile à déterminer tant théoriquement qu'expérimentalement et, par conséquent, mal connue. Néanmoins, en traitant le cas de l'aluminium, il a été possible de montrer que cette distribution est le résultat de deux contributions, celle des électrons secondaires, et celle des électrons rétrodiffusés. En effet, en simulant le spectre énergétique des électrons émis à différentes énergies d'incidence allant de 3 à 25 eV et à incidence normale (Figure III-5), on observe que chaque spectre présente un pic étroit dû aux électrons rétrodiffusés élastiquement centré sur l'énergie primaire et un autre pic plus large qui serait le résultat des contributions des électrons secondaires et des électrons rétrodiffusés inélastiquement. Le poids relatif de chaque contribution est fortement influencé par l'énergie des électrons incidents. En effet, l'intensité du pic associé aux électrons rétrodiffusés augmente quand l'énergie diminue et devient prépondérante quand cette énergie est voisine de l'énergie de la marche de potentiel de surface. La population des électrons rétrodiffusés inélastiquement se voit, dans ce cas, renforcée par celle des électrons réfléchis élastiquement par cette marche. Le pic obtenu à 5 eV est constitué en très grande majorité d'électrons rétrodiffusés inélastiques et de très peu d'électrons secondaires (voir Figure III-6). La Figure III-5 montre également que la position du pic des secondaires vrais se déplace légèrement vers les basses énergies quand l'énergie primaire augmente. Ce dernier comportement a été également constaté mais pour de hautes énergies primaires par Bindi et co. [BIN-80] dans leur étude de l'émission électronique de l'aluminium polycristallin par une méthode analytique basée sur la résolution de l'équation de transport de Boltzmann. Les mesures de Palmberg [PAL-67] et de Roptin [ROP-75], concernant le germanium, indiquent également une telle tendance. Le pic étant le résultat de la génération des électrons secondaires et de leur atténuation sur le trajet vers la surface, ainsi que de l'effet de l'interface

métal/vide, la position du pic des secondaires dépend alors non seulement de la surface du matériau [SEI-83] mais également de l'énergie des incidents qui conditionne la profondeur où les électrons secondaires prennent naissance [DIN-01]. La Figure III-5 montre aussi que la courbe de distribution énergétique se resserre (c.-à-d. la largeur à mi-hauteur diminue) quand l'énergie primaire croît et tend à devenir stationnaire vers 30 eV.

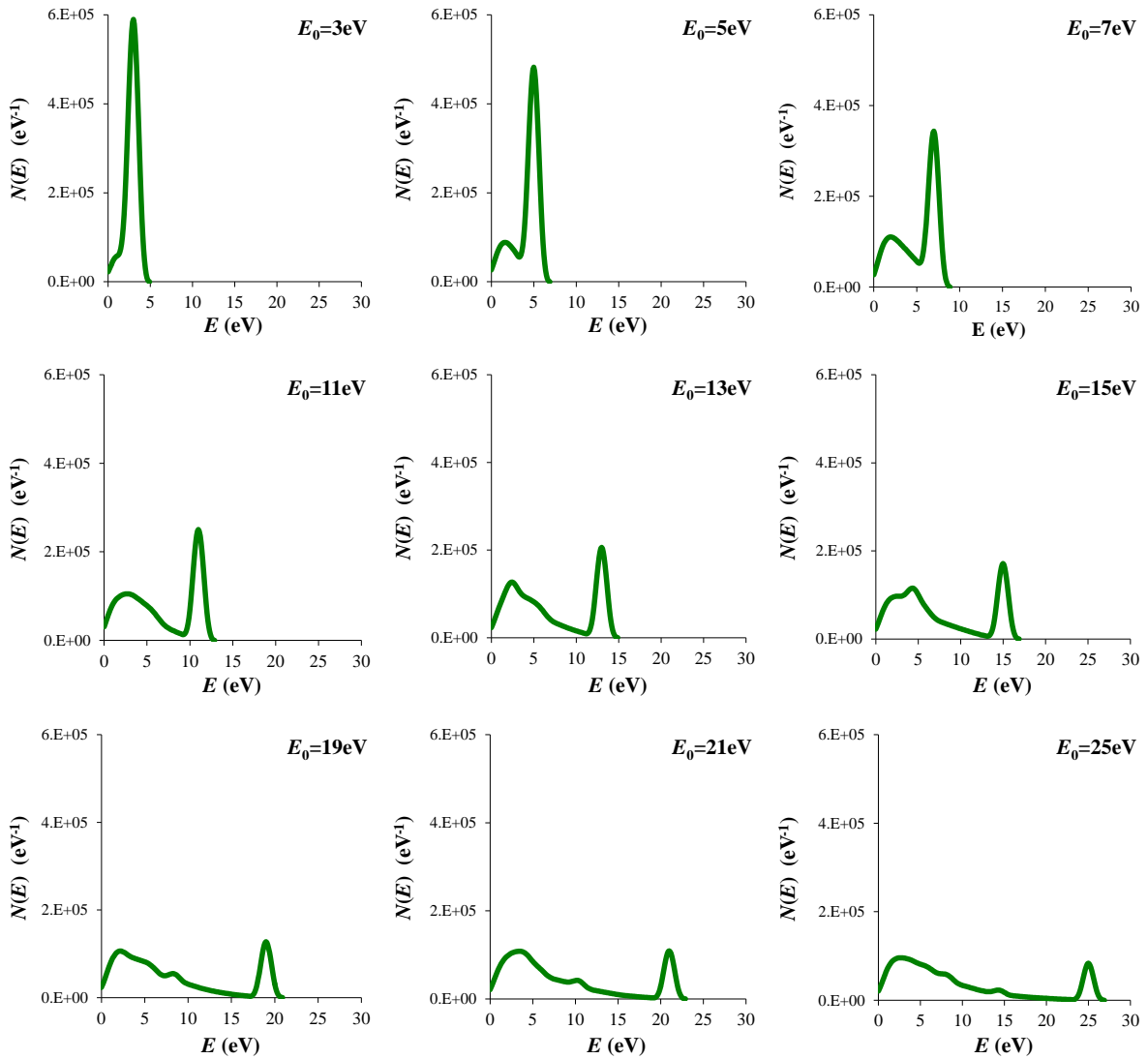


Figure III-5 : Spectres en énergie des électrons émis par l'aluminium pour différentes énergies incidentes.

En observant l'évolution des spectres avec l'énergie primaire, on constate qu'à partir d'une énergie seuil il apparaît, sur la distribution des secondaires et des rétrodiffusés inélastiques, un premier épaulement suivi ensuite d'un second au fur et à mesure que l'énergie primaire augmente. Pour illustrer ces constatations nous avons représenté, sur la Figure III-7, les spectres obtenus à 15 eV et à 25 eV. En considérant le pic élastique comme origine des pertes,

le premier épaulement est tout simplement dû au pic de perte par plasmons de surface et le second à celui de la perte par plasmons de volume. Leurs énergies respectives sont 10,6 eV et de 15 à 19 eV.

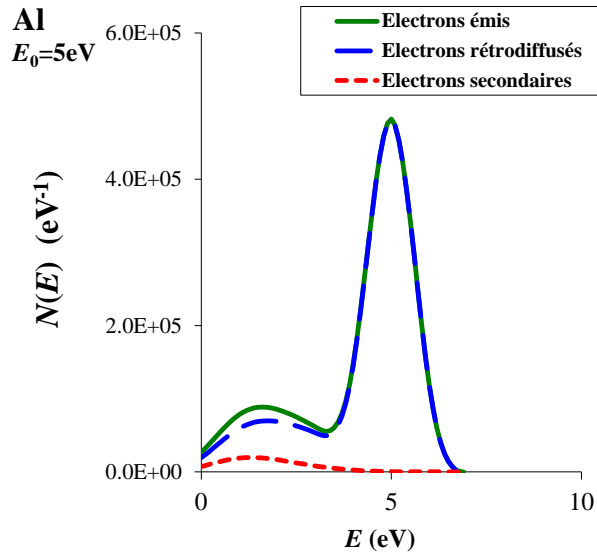


Figure III-6 : Spectre en énergie des électrons émis par l'aluminium à une énergie incidente de 5 eV

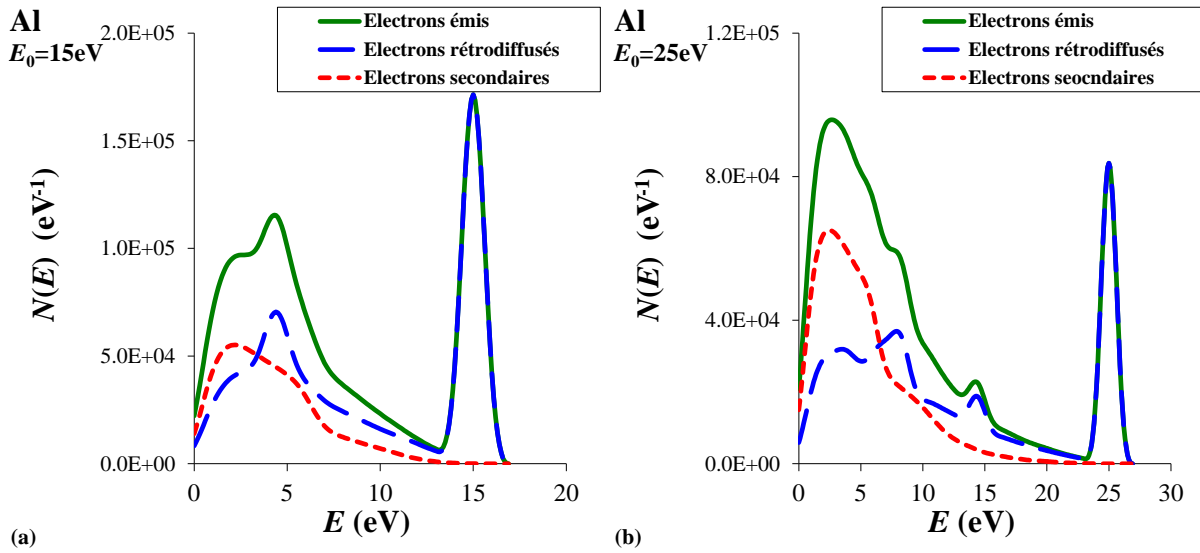


Figure III-7 : Spectres en énergie des électrons émis par l'aluminium aux énergies : (a) 15 eV ; (b) 25 eV.

III.2.1.2. Distribution angulaire

L'absence de données expérimentales dans la littérature aussi bien à très basse énergie qu'à basse énergie n'a pas permis de valider les résultats simulés de la distribution angulaire des électrons émis. On se limitera donc à une analyse du comportement des distributions selon les paramètres ajustables de la simulation. Par soucis de simplification, seules trois énergies des domaines des basses et très basses énergies ont été explorées : 10, 50 et 100 eV.

Pour pouvoir expliquer les comportements observés, il est nécessaire de représenter séparément les distributions associées aux différentes populations d'électrons émis à savoir celles des électrons secondaires et des rétrodiffusés participant à la formation de la distribution des électrons émis au total. Pour pouvoir interpréter certains résultats, notamment la distorsion des lobes d'émission, nous nous attarderons sur les électrons rétrodiffusés et plus particulièrement les électrons rétrodiffusés élastiques.

III.2.1.2.1. Cas des électrons émis

Les distributions angulaires des électrons émis (secondaires et rétrodiffusés) que nous avons obtenues pour trois angles d'incidence, par rapport à la normale à la surface de la cible, et pour trois énergies primaires sont données en représentation polaire sur la Figure III-8. À titre de comparaison la distribution lambertienne¹⁹ est également représentée. La comparaison des distributions est effectuée en normalisant chaque distribution par rapport à son maximum. Indépendamment de l'angle d'incidence, nous observons une faible influence de l'énergie d'incidence sur la forme générale du lobe d'émission des électrons émis. En ce qui concerne l'évolution en fonction de l'angle d'incidence, indépendamment de l'énergie, la distorsion des lobes n'est pas très importante par rapport à une distribution lambertienne. Cependant, à forte incidence (70°), le lobe d'émission des électrons émis est très proche de cette dernière.

¹⁹ Une distribution lambertienne est définie par une loi en cosinus, c'est une distribution uniforme de l'angle d'émission.

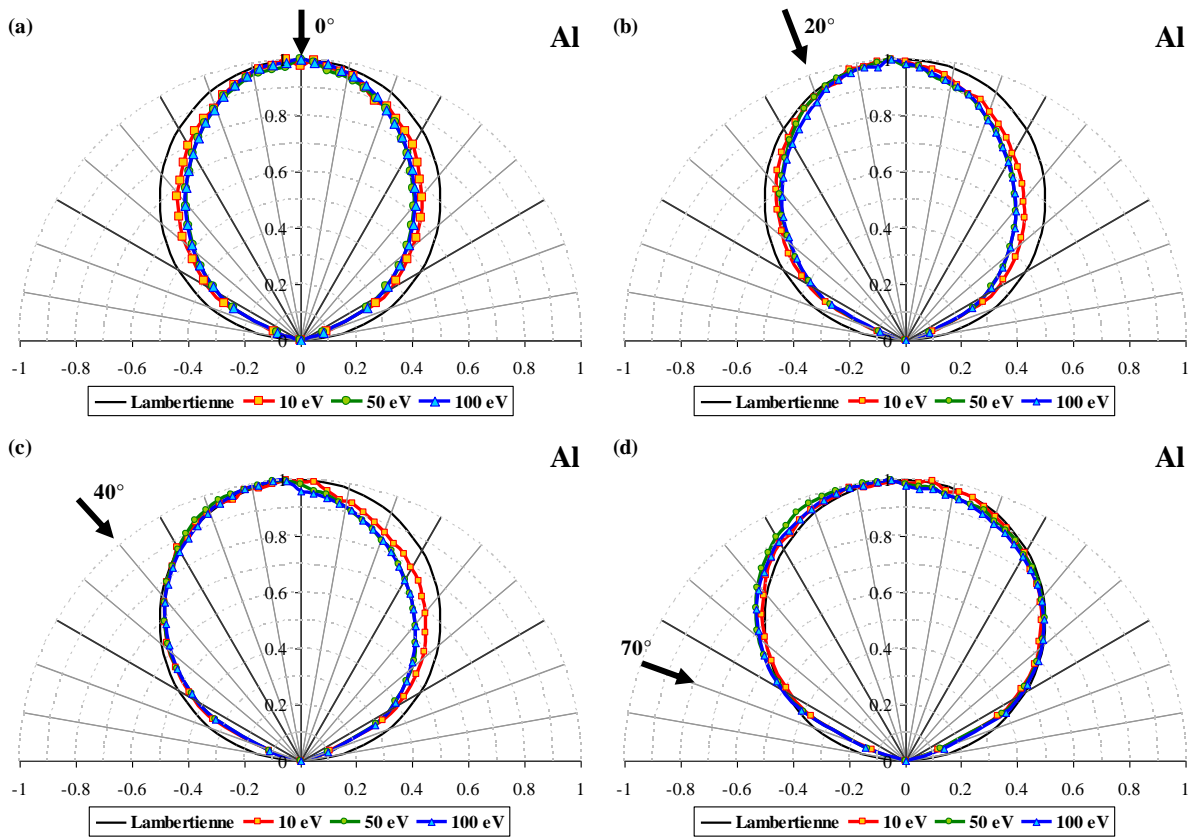


Figure III-8 : Représentation polaire de la distribution angulaire des électrons émis pour différentes énergies primaire (10, 50 et 100 eV) et pour différents angles d'incidence par rapport à la normale à la surface (0°, 20°, 40° et 70°).

III.2.1.2.2. Cas des électrons secondaires

Les résultats des simulations pour différentes énergies et différents angles d'incidence sont représentés sur la Figure III-9. Indépendamment de l'énergie primaire, on constate que l'effet de l'angle d'incidence sur le lobe d'émission des électrons secondaires est négligeable et indépendamment de l'angle d'incidence, l'effet de l'énergie primaire est également négligeable. En effet, à basse et à très basse énergie la profondeur de pénétration des électrons incidents est très faible et l'émission secondaire se produit à la surface (voir section I.3.1.2). Les électrons secondaires quittent alors l'échantillon sans atténuation et leur profondeur d'échappement reste insensible à l'angle d'incidence. Les lobes d'émission gardent finalement une forme très proche d'une lambertienne car les électrons secondaires, une fois générés dans le matériau, ont pour la plupart d'entre eux des angles d'incidence distribués uniformément (isotropie) en arrivant à la surface pour s'échapper dans le vide. Ceci s'explique en faisant appel aux considérations mentionnées dans la section I.3.3. En effet à basse et à très basse énergie l'émission angulaire dépend de la probabilité de transmission

des électrons secondaires à l'interface matériau/vide faisant intervenir la loi de réfraction (expression (I-63)). La réfraction des électrons secondaires dépend alors de leur distribution spectrale et de la nature de l'échantillon considéré et de son état de surface (via le travail de sortie). Les effets de réfraction ne se produisent que pour des électrons secondaires ayant un angle d'incidence interne inférieur à l'angle critique pour l'émission externe (voir expression (I-53) de la section I.2.4.2). Si ce n'est pas le cas, les électrons secondaires seront réfléchis vers l'arrière. Le résultat est que l'émission angulaire ne peut strictement suivre une distribution de Lambert en $\cos \alpha$. Cependant pour une incidence rasante, l'obtention d'une distribution lambertienne indépendamment de l'énergie supposerait l'absence de phénomènes de réflexion à l'interface.

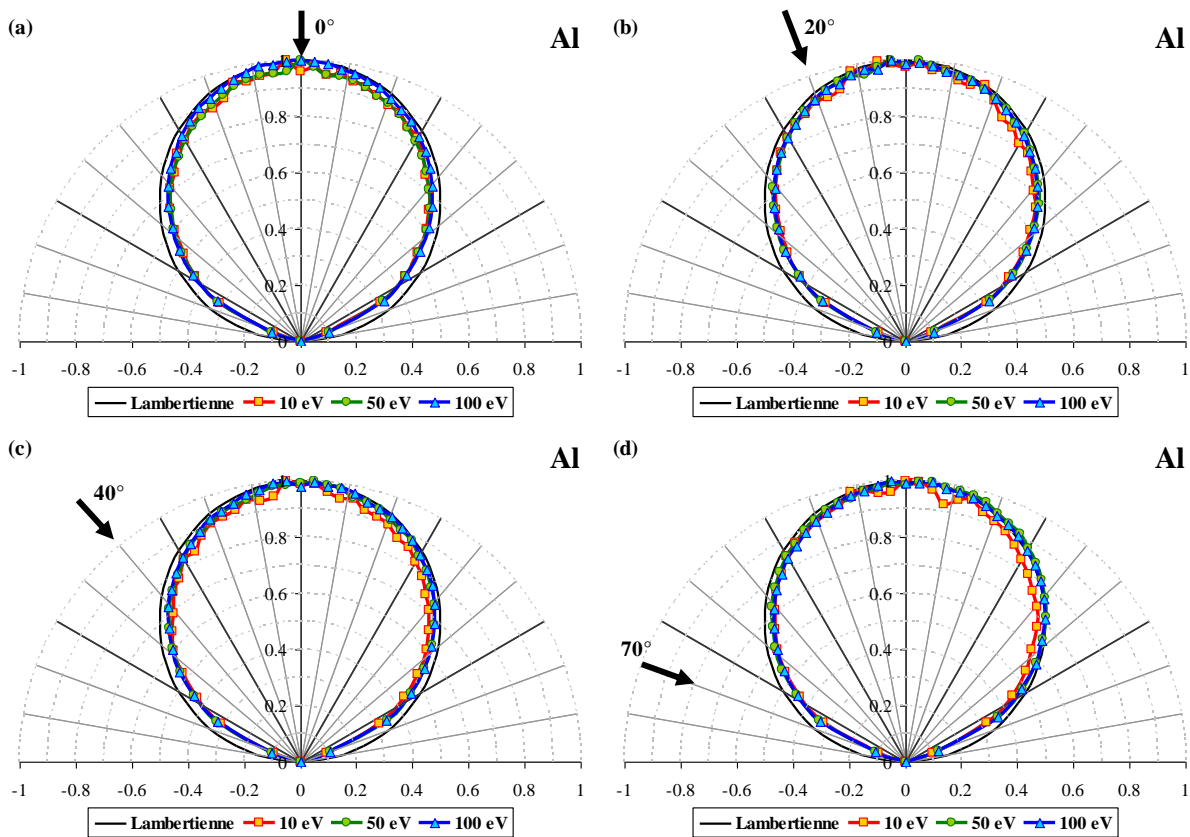


Figure III-9 : Représentation polaire de la distribution angulaire des électrons secondaires pour différentes énergies primaires (10, 50 et 100 eV) et pour différents angles d'incidence par rapport à la normale à la surface (0°, 20°, 40° et 70°)

III.2.1.2.3. Cas des électrons rétrodiffusés

Contrairement au cas des électrons secondaires, la distribution angulaire des électrons rétrodiffusés est sensible à la fois à l'énergie et à l'angle d'incidence comme l'illustre la Figure III-10. Excepté aux forts angles d'incidence (c.-à-d. 70°), les lobes obtenus à 50 et 100 eV, bien que distordus, sont strictement identiques. Pour les très basses énergies (c.-à-d. $E_0 = 10$ eV) nous observons un comportement différent, le lobe d'émission tend à s'approcher d'une distribution lambertienne au fur et à mesure que de l'angle d'incidence augmente. Pour pouvoir comprendre l'influence de l'énergie et de l'angle d'incidence, il est utile de représenter les distributions angulaires des électrons rétrodiffusés inélastiquement et élastiquement.

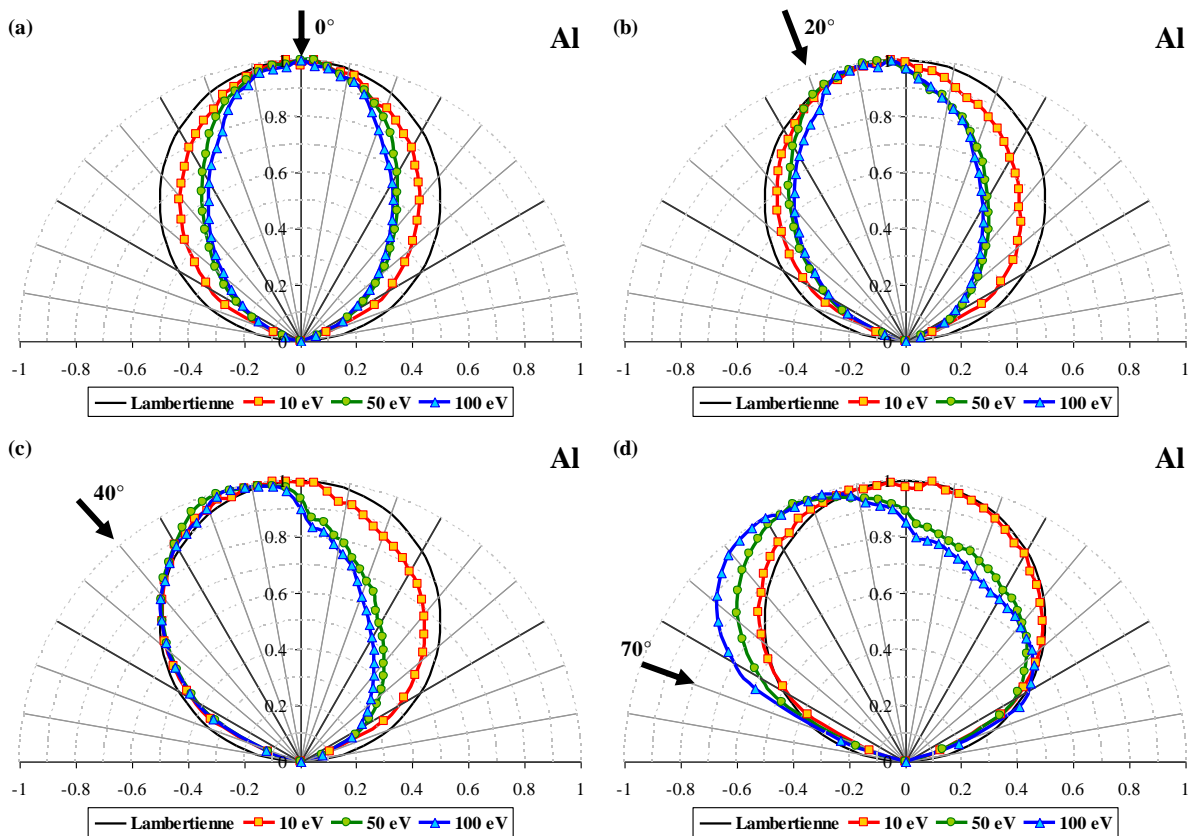


Figure III-10 : Représentation polaire de la distribution angulaire des électrons rétrodiffusés pour différentes énergies primaires (10, 50 et 100 eV) et pour différents angles d'incidence par rapport à la normale à la surface (0° , 20° , 40° et 70°)

III.2.1.2.3.1. Cas des électrons rétrodiffusés inélastiques

Les lobes d'émission des électrons rétrodiffusés inélastiques sont représentés sur la Figure III-11. Pour les énergies primaires 50 et 100 eV, les lobes sont de plus en plus déformés quand l'angle d'incidence augmente. La déformation est moins marquée que pour l'ensemble des électrons rétrodiffusés. À l'énergie de 10 eV, les lobes d'émissions sont proches d'une lambertienne quel que soit l'angle d'incidence. À cette énergie, les électrons rétrodiffusés proviennent d'une profondeur relativement faible, donc de la surface du matériau, comme les électrons secondaires (voir Figure III-12), c'est la raison pour laquelle le lobe d'émission est proche d'une lambertienne.

Pour les autres énergies, 50 et 100 eV, les électrons rétrodiffusés inélastiques, proviennent de profondeurs relativement plus élevée et, à cause des réflexions à l'interface, l'isotropie sera perturbée.

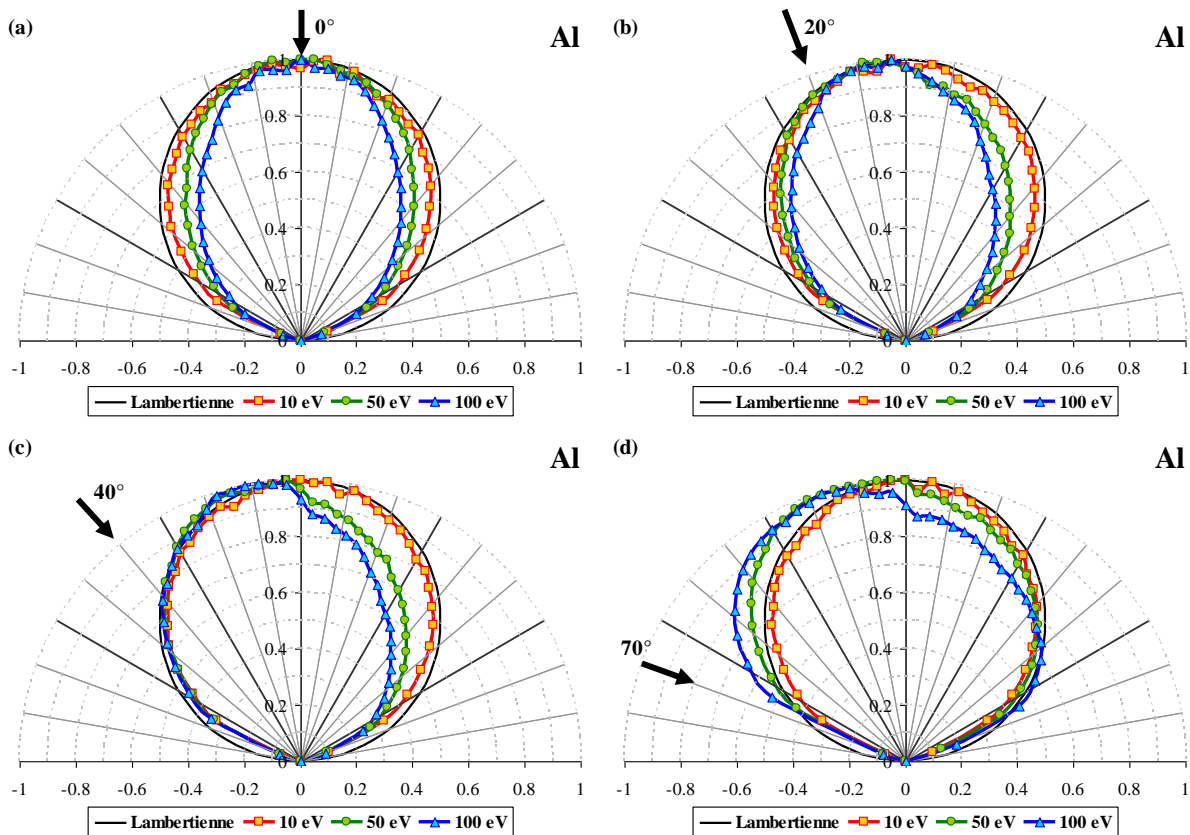


Figure III-11 : Représentation polaire de la distribution angulaire des électrons rétrodiffusés inélastiques pour différentes énergies primaires (10, 50 et 100 eV) et pour différents angles d'incidence par rapport à la normale à la surface (0°, 20°, 40° et 70°).

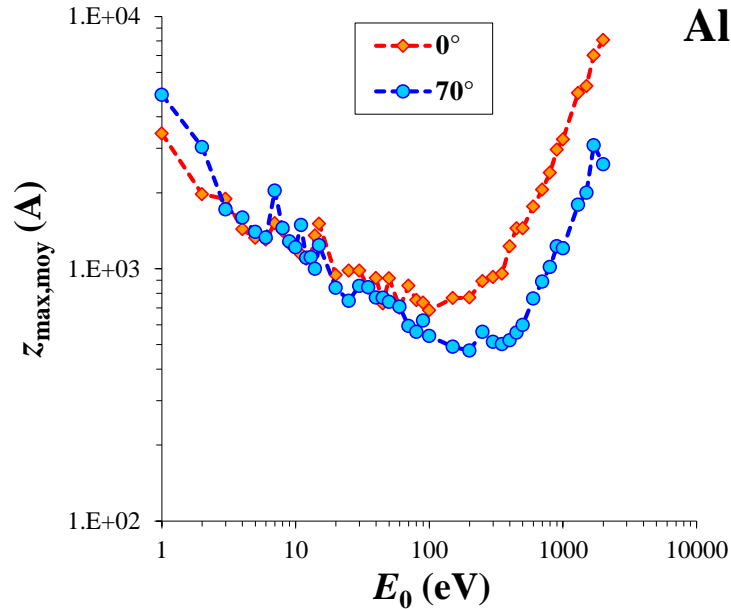


Figure III-12 : Profondeur moyenne d'échappement des électrons rétrodiffusés en fonction de l'énergie incidente à incidence normale et rasante (70°).

III.2.1.2.3.2. Cas des électrons rétrodiffusés élastiques

Les lobes d'émission des électrons rétrodiffusés élastiques sont représentés sur la Figure III-13. Quelle que soit l'énergie, la distorsion du lobe d'émission est de plus en plus accentuée quand l'angle d'incidence augmente. Indépendamment de l'angle d'incidence, les lobes obtenus à 50 et 100 eV sont relativement identiques. Notons que pour l'angle d'incidence de 70° et aux énergies 50 et 100 eV, on observe deux lobes : un grand lobe orienté dans la direction des électrons incidents et un lobe plus petit dans une direction spéculaire. Les lobes d'émissions à 10 eV se démarquent des autres énergies, le lobe est plus large. Contrairement aux rétrodiffusés inélastiques, on observe une variation de la forme du lobe en fonction de l'angle d'incidence. Pour un angle d'incidence de 70° , le lobe est proche d'une lambertienne, cependant, la distribution n'est pas tout à fait symétrique.

Pour expliquer l'origine des formes très particulières des lobes, obtenus notamment à 70° et aux énergies de 50 et 100 eV, la distribution angulaire des électrons ayant subi une seule interaction élastique puis traversant la marche de potentiel de surface a été calculée. Ce calcul a été effectué à l'aide des sections efficaces différentielles utilisées dans la simulation pour l'interaction élastique (cf. section II.3.1.3). Pour le passage de surface, nous n'avons pas considéré la probabilité quantique de réflexion, mais seulement les conditions de passage classiques. Les lobes d'émission des rétrodiffusés élastiques simulés et les distributions

calculées sont comparés sur la Figure III-14 dans le cas de deux énergies, 10 et 100 eV et deux angles d'incidence, 0 et 70°.

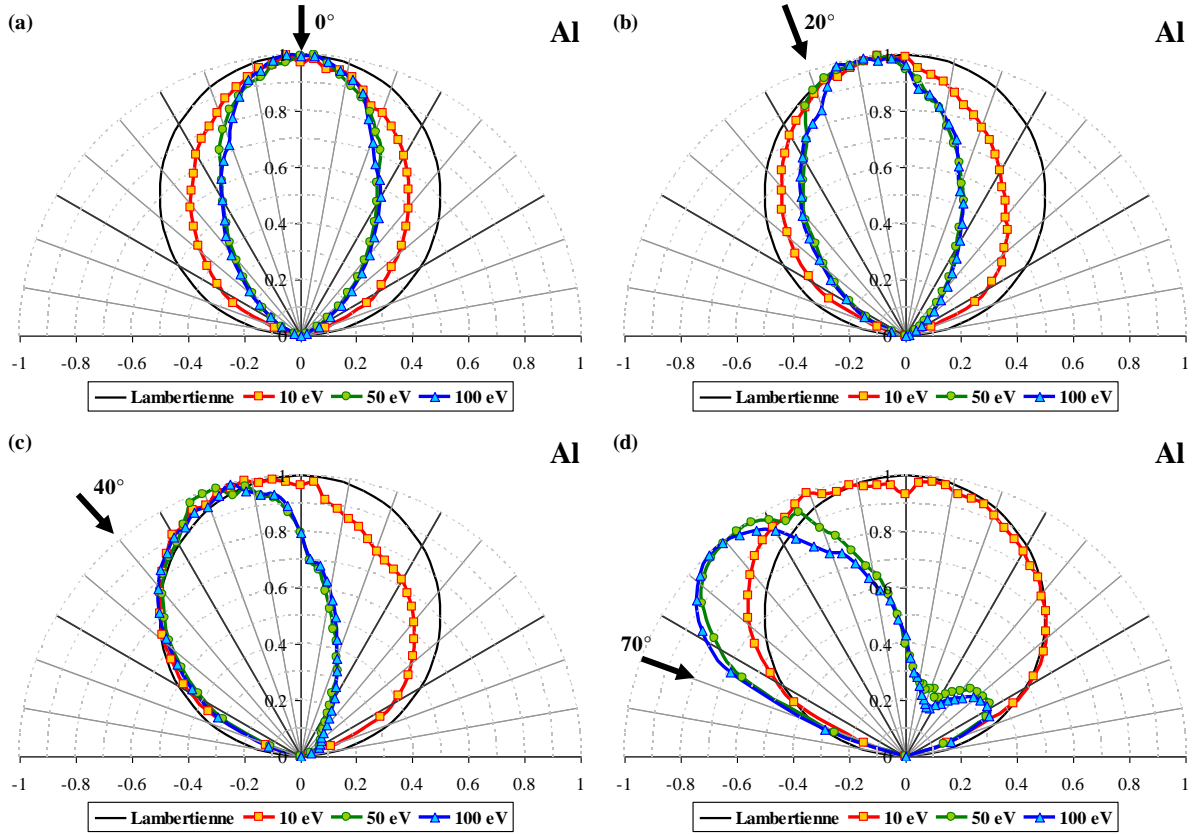


Figure III-13 : Représentation polaire de la distribution angulaire des électrons rétrodiffusés élastiques pour différentes énergies primaires (10, 50 et 100 eV) et pour différents angles d'incidence par rapport à la normale à la surface (0°, 20°, 40° et 70°).

À incidence normale, le lobe d'émission à 10 eV (Figure III-14(a)) est plus large que la distribution calculée alors qu'à 100 eV (Figure III-14(c)). Il est très proche de la distribution calculée. Dans le premier cas, les électrons rétrodiffusés élastiques subissent plus d'interactions élastiques qu'à 100 eV avant d'être émis et sont donc plus déviés, alors que dans le second, ils semblent subir très peu d'interactions avant d'être émis.

À incidence oblique (c.-à-d. 70°), la distribution angulaire des électrons rétrodiffusés élastiques quand $E_0 = 100$ eV (Figure III-14(d)), présente une forme très proche de la distribution calculée. Cette dernière est calculée pour une interaction élastique alors que la distribution simulée est constituée d'électrons ayant interagi une ou plusieurs fois. Cependant la ressemblance des formes semble indiquer que le nombre d'interactions avant émission est faible. Pour une énergie incidente de 10 eV, (Figure III-14(b)), la forme de distribution angulaire simulée est différente de la forme très particulière de la distribution calculée pour

une interaction élastique. Les électrons rétrodiffusés élastiques à 10 eV semblent subir de nombreuses déflexions dans le matériau.

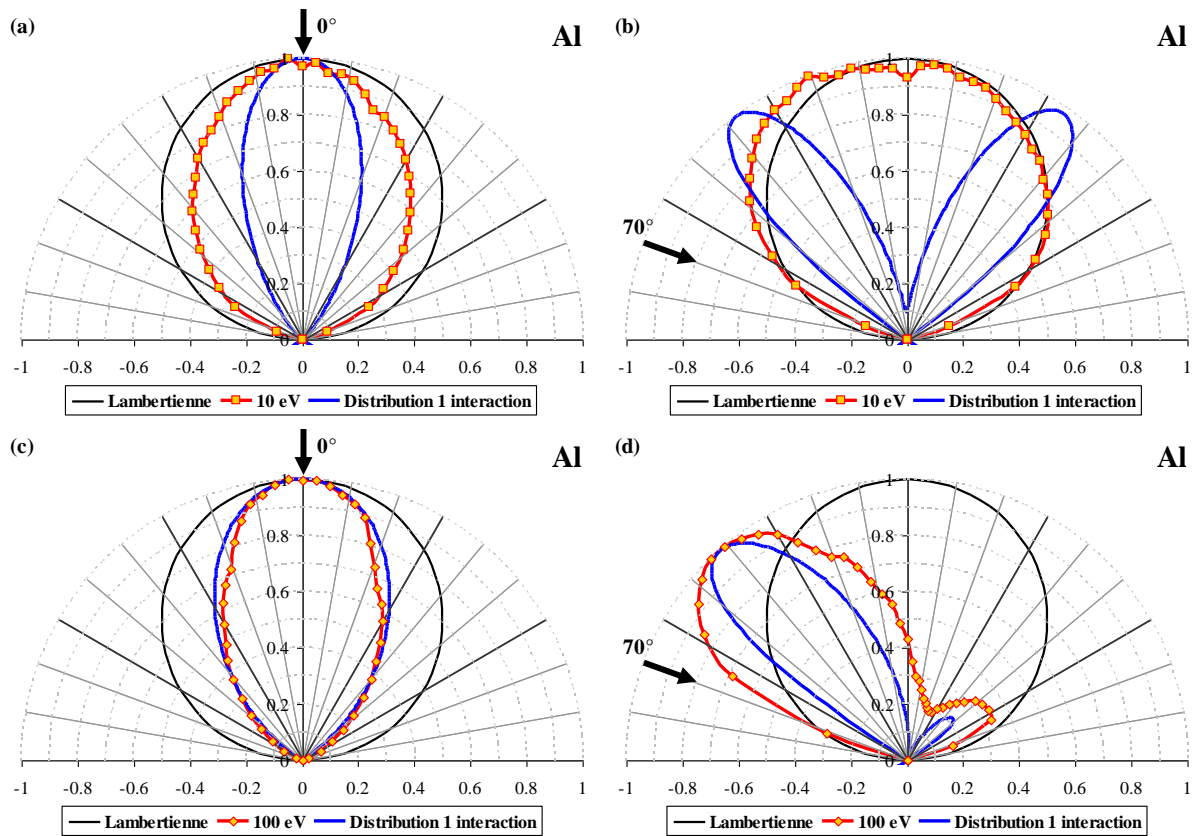


Figure III-14 : Comparaison de la distribution angulaire simulé avec la distribution angulaire théorique après une interaction élastique : (a) 10 eV et 0° ; (b) 10 eV et 70° ; (c) 100 eV et 0° ; (d) 100 eV et 70°.

Pour expliquer qualitativement l'allure des lobes d'émission des électrons rétrodiffusés élastiques nous faisons appel à deux paramètres. Le pourcentage des électrons rétrodiffusés élastiques qui n'ont interagi qu'une fois dans la cible avant d'être émis et le nombre moyen d'interactions qu'ont subies les électrons rétrodiffusés élastiques. Ces deux paramètres sont respectivement représentés en fonction de l'énergie primaire pour les deux angles d'incidence 0 et 70° sur les Figure III-15(a) et (b).

Nous constatons que le paramètre quantitatif est presque indépendant de l'angle d'incidence, excepté dans le domaine d'énergie allant de 30 à 500 eV ou sa valeur baisse légèrement à mesure que l'on tend vers une incidence rasante. En revanche, quel que soit l'angle d'incidence le pourcentage est très sensible à l'énergie. Il commence à être significatif à partir de quelques eV (c.-à-d. 3 % à 5 eV), augmente fortement pour atteindre un maximum de l'ordre de 50% entre la trentaine et la centaine d'eV et ensuite décroît lentement. Quant au

nombre moyen d'interactions, il décroît rapidement et ensuite se stabilise à partir d'une trentaine d'eV.

Ainsi, à 100 eV, la moitié des électrons rétrodiffusés élastiques n'ont interagi qu'une seule fois et n'ont subi en moyenne que 2 interactions avant d'être émis. Cela réduit alors la possibilité d'avoir un lobe d'émission très large ou qui tendrait vers une lambertienne.

Tandis que pour $E_0 = 10$ eV, nos calculs indiquent qu'un électron rétrodiffusé élastique a subi en moyenne 6 interactions et qu'environ 16% de ces électrons n'ont interagi qu'une fois avant d'être émis. Nous obtenons par conséquent un élargissement important du lobe d'émission par rapport au cas d'une émission après une seule interaction élastique.

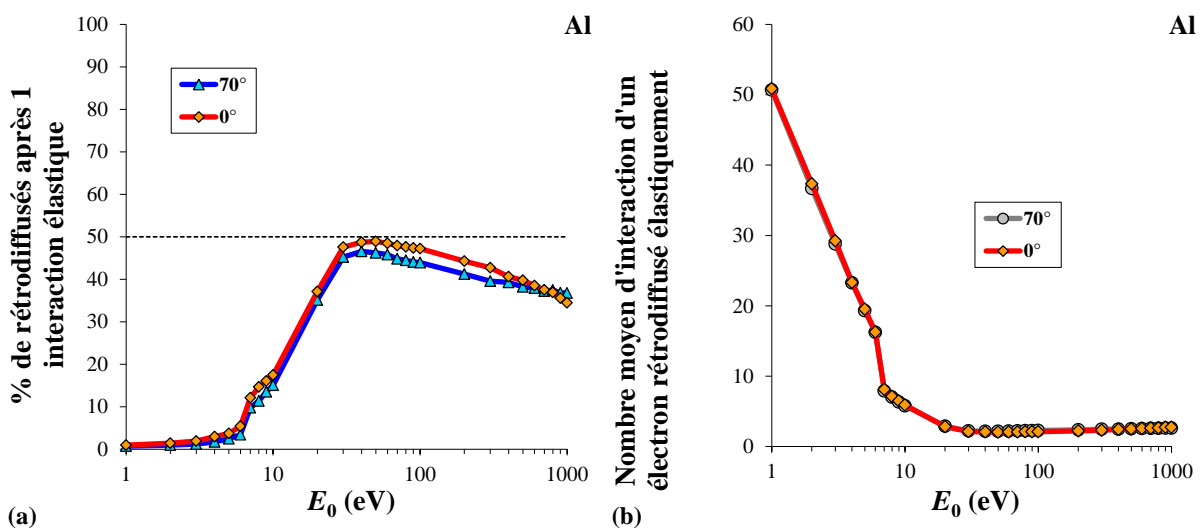


Figure III-15 : (a) Pourcentage d'électrons rétrodiffusés après une seule interaction élastique ; (b) Nombre moyen d'interactions d'un électron rétrodiffusé élastiquement dans le matériau.

III.2.1.3. Rendement des électrons émis

D'un point de vue expérimental, la limite supérieure du domaine des électrons secondaires « vrais » est conventionnellement fixée à 50 eV. En effet, bien que certains secondaires peuvent sortir de l'échantillon avec une énergie plus grande et certains rétrodiffusés peuvent sortir avec une énergie plus faible que de 50 eV leur nombre est en revanche relativement faible et le seuil de 50 eV est donc un seuil raisonnablement correct pour distinguer les deux types d'électrons (secondaires et rétrodiffusés) quittant l'échantillon. Ce critère de différenciation de ces deux populations d'électrons a été alors utilisé pour déterminer les rendements associés à basse énergie. En revanche, à très basse énergie, ce

critère n'a plus de raison d'être étant donné que les énergies d'incidence sont inférieures à la limite conventionnelle de 50 eV. Les différents rendements dans ce dernier domaine d'énergie sont calculés en comptabilisant les différentes sortes d'électrons générés (secondaires ou rétrodiffusés) et identifiés auparavant par le programme. Indépendamment de la nature de l'électron (primaire ou généré), l'identification, le long de la trajectoire parcourue, s'effectue en considérant cet électron comme un objet affecté d'un numéro unique et donc discernable.

Ainsi nous pouvons distinguer, parmi tous les électrons, les électrons rétrodiffusés qui ne sont autres que les électrons primaires qui rebrousse chemin après avoir pénétré dans le matériau. Les autres électrons, triés selon le type d'interaction inélastique qui leur a donnée naissance, sont les électrons secondaires. Rappelons que parmi ces électrons on distingue ceux qui ont été excités par une interaction avec un plasmon de volume, avec un plasmon de surface, avec un électron de conduction, avec un électron de cœur ou par effet Auger.

La présentation des résultats des simulations, aussi bien dans le domaine des basses énergies (de la centaine au millier d'eV) que dans le domaine des très basses énergies ($E_0 < 30$ eV), se fera en explicitant les différentes contributions au rendement. La confrontation de ces résultats se fait avec les données de la littérature notamment celles issues de simulations ([KUH-99], [MAO-08]) ou de mesures ([BRO-69]).

Dans le cas des très basses énergies, pour éviter les problèmes liés d'une part aux critères de définition des populations d'électrons et d'autre part au manque de données expérimentales, seuls les rendements totaux simulé et expérimental seront comparés.

Dans cette partie, l'accent est également mis sur le comportement du rendement, qui ne fait pas actuellement consensus, à savoir sa tendance vers zéro quand l'énergie primaire tend vers zéro.

III.2.1.3.1. Basse énergie (de 100 eV à 1 keV)

III.2.1.3.1.1. Rendement à incidence normale

Dans le domaine d'énergie, étudié ici, le rendement des électrons secondaires vrais et le rendement de rétrodiffusion sont respectivement définis comme le rapport des nombres d'électrons émis avec une énergie $E < 50$ eV et $E > 50$ eV et du nombre d'électrons incidents. Ils peuvent également être déterminés par intégration du spectre d'énergie dans la région concernée après normalisation par le courant du faisceau incident. Avant de présenter les

résultats obtenus concernant ces deux grandeurs, nous allons expliciter les différentes contributions qui sont à leur origine.

III.2.1.3.1.1.1. Électrons Rétrodiffusés

Comme cela a été mentionné précédemment (cf. section III.2.1.3), il est aisé de trier et d'identifier les électrons qui sont émis par la cible lors de la simulation. Ainsi, on distingue parmi tous les électrons rétrodiffusés, ceux qui le sont élastiquement de ceux qui le sont inélastiquement. Rappelons que les premiers sont les électrons primaires qui n'ont pas subi de pertes d'énergie lors de leur pénétration dans la cible d'aluminium alors que les seconds sont ceux ayant subi ces pertes. Les rendements associés à ces deux populations d'électrons rétrodiffusés ainsi que le rendement total résultant sont représentés en fonction de l'énergie primaire sur la Figure III-16. On constate que les allures des courbes obtenues sont antagonistes. La rétrodiffusion inélastique augmente rapidement pour atteindre un maximum et ensuite décroît très lentement quand cette énergie augmente alors que la rétrodiffusion élastique subit une décroissance monotone. Ces comportements sont directement reliés au fait que, plus l'énergie de l'électron primaire augmente, plus sa pénétration dans le matériau est importante et plus sa probabilité d'être ralenti au cours de son trajet vers la surface augmente. Le rendement de rétrodiffusion élastique a été comparé à l'un des rares résultats expérimentaux trouvé dans la littérature, ceux de Gruzza [GRU-87]. L'accord est globalement satisfaisant (Figure III-16).

Finalement, l'allure du rendement de rétrodiffusion total est imposée par celle du coefficient de rétrodiffusion inélastique car la contribution de la population des électrons rétrodiffusés inélastiquement est prédominante. Une allure caractéristique des éléments légers alors que pour les éléments lourds la rétrodiffusion augmente avec l'énergie avant de se stabiliser à plusieurs keV (cf. les travaux d'Assa'd et El Gomati [ASS-98]).

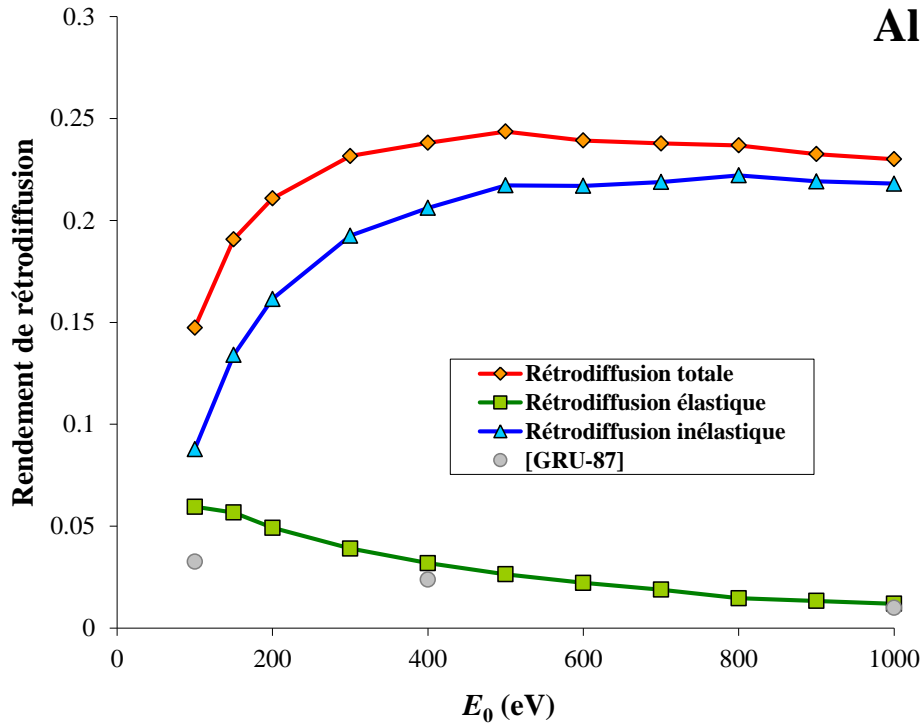


Figure III-16 : Rendements de rétrodiffusion (total, élastique et inélastique) simulés en fonction de l'énergie. Le rendement élastique a été comparé aux résultats expérimentaux de Gruzza [GRU-87].

III.2.1.3.1.1.2. Électrons Secondaires

Nous avons vu (cf. section III.2.1.3) que la population des électrons secondaires vrais résulte des électrons qui proviennent de la désexcitation des plasmons de volume ou de surface, de ceux provenant de l'excitation des électrons de conduction ou de cœur et de ceux issus de l'effet Auger. Le rendement d'émission secondaire vraie ainsi que les différentes contributions associées sont représentées sur Figure III-17. On constate que la contribution des électrons secondaires issus de la désexcitation des plasmons de surface reste faible et ne dépasse guère 5% et de surcroît diminue avec l'énergie d'incidence. La part des électrons secondaires issus de l'excitation des électrons de cœur et Auger reste très faible en dessous de la centaine d'eV, puis augmente pour rester ensuite relativement stable à plusieurs centaines d'eV.

Les contributions des électrons secondaires issues de la désexcitation des plasmons de volume et de l'excitation des électrons de conduction sont strictement identiques et les allures des courbes associées sont très proches et ont un maximum à 300 eV environ.

Pour l'ensemble de ces contributions le même comportement a été également observé par Dubus et co. [DUB-93] et les valeurs obtenues sont en parfait accord avec les nôtres. Dans

leurs travaux sur les contributions de l'excitation des plasmons, Chung et Everhart [CHU-77] trouvent une plus forte contribution de l'excitation des plasmons de volumes au détriment de l'excitation des électrons de conduction, et une plus faible contribution des plasmons de surface. Ce comportement est lié à leur démarche de calcul qui ne considère que la première interaction inélastique des électrons primaires dans le matériau. Ainsi les électrons excités sont générés très près de la surface et ne subissent aucune interaction avant d'être émis. En revanche, dans nos simulations, nous considérons une trajectoire complète, avec des électrons qui sont générés en profondeur dans le matériau. Ces électrons subissent des ralentissements avant d'arriver à la surface. Finalement, l'écart entre les résultats de Chung et Everhart et les nôtres est surtout dû à la manière dont le traitement de l'émission électronique a été conduit, en d'autres termes dans le premier cas il s'agit d'un calcul alors que dans le second cas il s'agit de simulations.

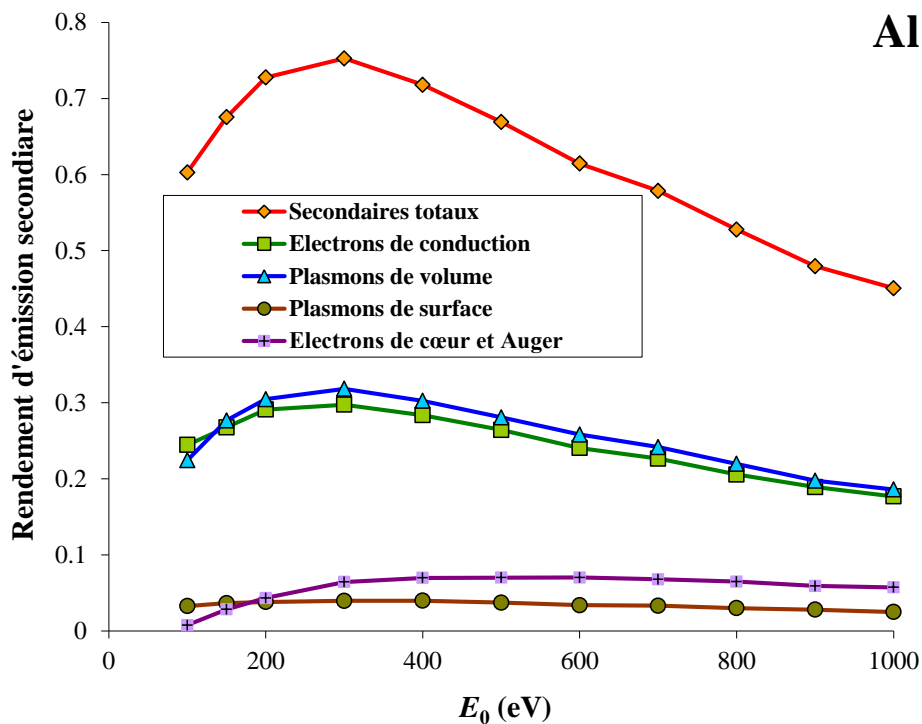


Figure III-17 : Rendements d'émission secondaire simulés en fonction de l'énergie.

III.2.1.3.1.1.3. Comparaison simulations-expériences

Sur la Figure III-18, nous avons représenté les résultats de nos simulations dans le cas de l'aluminium que nous comparons aux calculs et mesures rapportés par les références [BRO-69, ASS-98, KUH-99, MAO-08]. Globalement, nos simulations sont en bon accord avec les données de la littérature.

Concernant les valeurs du rendement de rétrodiffusion obtenues suivant notre approche, l'accord est très satisfaisant aussi bien avec l'expérience, [BRO-69] et [ASS-98], qu'avec d'autres approches théoriques, [KUH-99] et [MAO-08]. Dans le cas de ces dernières l'accord est dû principalement au fait que le même modèle de diffusion élastique a été utilisé [MOT-65].

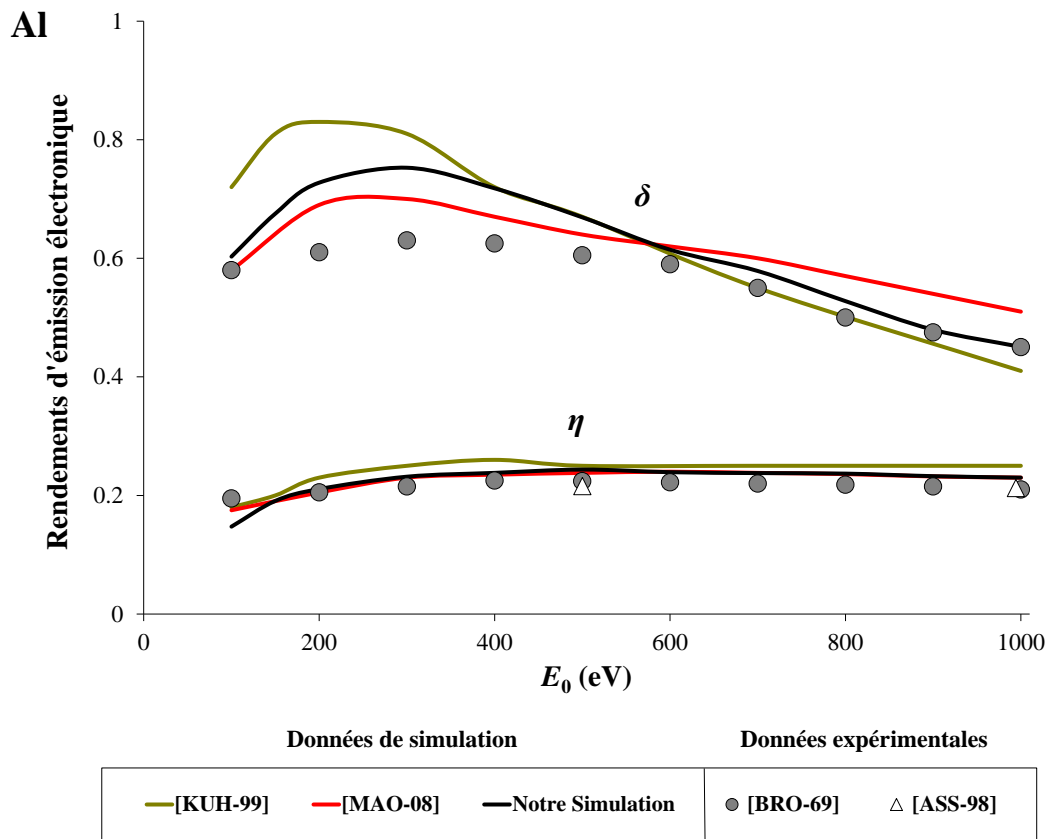


Figure III-18 : Représentation du rendement de rétrodiffusions et d'émission secondaire vraie en fonction de l'énergie primaire. Mesures : Bronstein et Fraiman [BRO-69] (○) et Assa'd et El Gomati [ASS-98] (△). Simulations : Kuhr et Fitting [KUH-99] (trait vert) ; Mao et co. [MAO-08] (trait rouge) ; notre simulation (trait noir).

Dans le cas du rendement d'émission secondaire vraie, δ , qu'il s'agisse des résultats de notre approche ou de ceux des autres approches, l'accord avec l'expérience est relativement correct. Un plus grand écart avec les données expérimentales est cependant, observé dans le domaine d'énergie allant de 200 et 500 eV. Cet écart est encore plus accentué pour les données de Kuhr

et co. [KUH-99] alors que dans le cas des simulations de Mao et co. [MAO-08] il est plus faible mais redevient plus important à partir de 600 eV. Ce dernier comportement est sans aucun doute lié au formalisme adopté pour la modélisation des interactions inélastiques.

La surestimation de nos valeurs ou de celles des autres simulations par rapport à la mesure réside probablement en partie dans le fait que, dans la simulation, seule la désexcitation du plasmon en une paire électron-trou est prise en compte. En effet, Ganachaud et Cailler [GAN-79] ont mentionné dans leurs travaux que la désexcitation du plasmon peut s'effectuer à travers un ou plusieurs électrons du matériau. Ce processus n'est pas pris en compte dans les simulations utilisant le modèle des électrons libres, et la constante diélectrique de Lindhard.

III.2.1.3.1.2. Rendement à incidence oblique

Le rendement total simulé est représentée en fonction de l'énergie pour différents angles d'incidence sur la Figure III-19(a). Les allures de courbes sont identiques à celles mentionnées dans la section I.3.1.2 Les mêmes explications qualitatives concernant ces évolutions en fonction de E_0 et de l'angle Θ_0 peuvent être également reprises ici en comparant la profondeur maximale de pénétration des électrons primaires, R , à la profondeur maximale d'échappement des électrons secondaires, r . En effet, à très basse énergie (très inférieures à l'abscisse du maximum), la profondeur de pénétration des électrons incidents est très faible et l'émission secondaire se produit à la surface (cf. section I.3.1.2). La profondeur d'échappement des électrons secondaires reste alors insensible à l'angle d'incidence (voir Figure III-20) et les électrons secondaires quittent l'échantillon sans atténuation. C'est la raison pour laquelle on obtient des courbes identiques dans ce domaine d'énergie.

Dans le domaine énergétique au-delà du maximum du rendement, l'accroissement de l'angle d'incidence, Θ_0 , a essentiellement pour effet de réduire R et donc d'accroître le nombre de secondaires générés dans l'épaisseur utile r . Le résultat est une dépendance angulaire correspondant approximativement à $\sigma(\Theta_0) \approx \sigma(0)/\cos^p \Theta_0$ (avec p compris entre 1 et 1,5), plus marquée à 300 eV, mais bien plus faible à 50 eV (voir Figure III-19(b)).

L'optimisation du nombre d'électrons secondaires générés se fait dans la partie centrale, correspondant à une énergie primaire égale à l'abscisse du maximum de σ , où leur

atténuation est faible, ce qui explique également l'accroissement de la valeur du maximum et de son abscisse avec l'angle d'incidence Θ_0 .

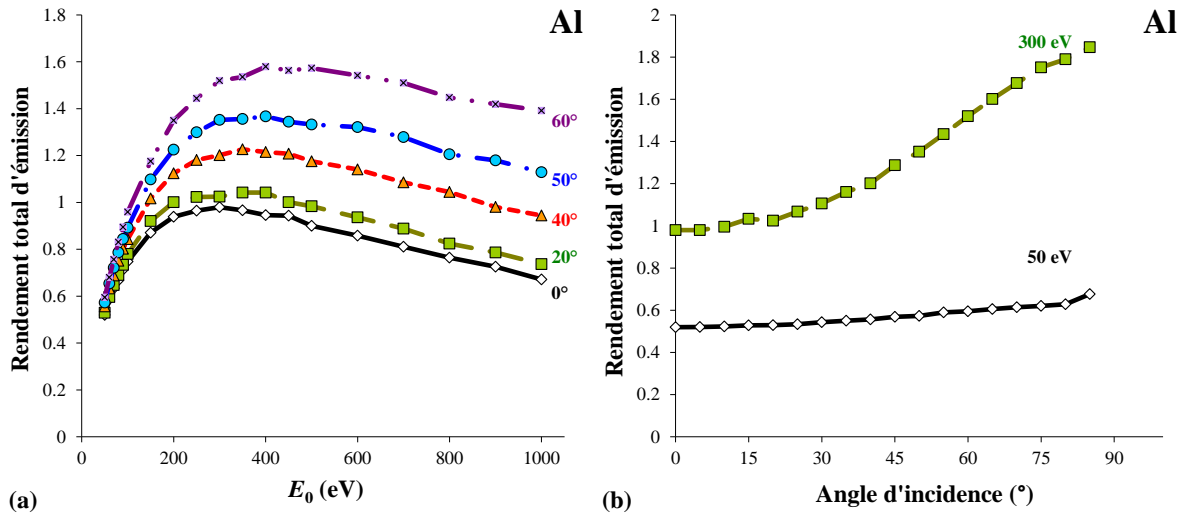


Figure III-19 : Rendement total de l'émission électronique en fonction : (a) de l'énergie pour différents angles d'incidence ; (b) de l'angle d'incidence pour 50 et 300 eV.

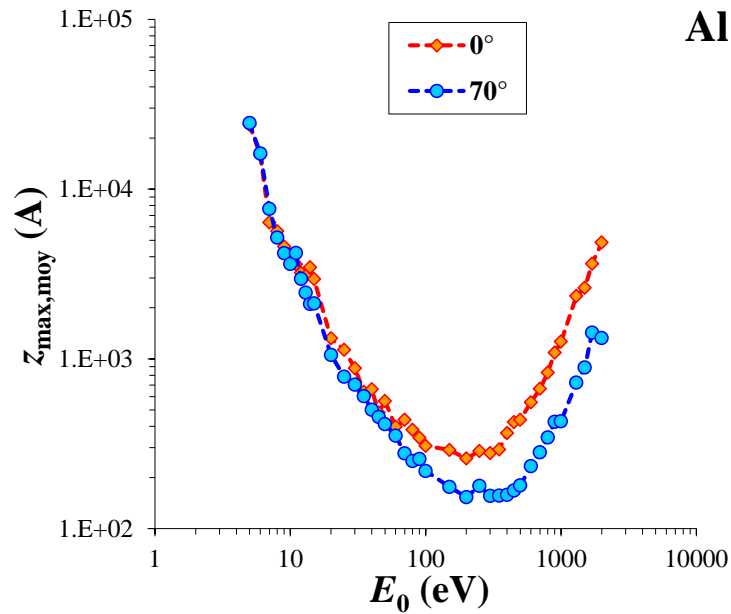


Figure III-20 : Profondeur moyenne d'échappement des électrons secondaires en fonction de l'énergie incidente à incidence normale et rasante (70°).

III.2.1.3.2. Très basse énergie ($E_0 < 30$ eV)

Il est important de rappeler que, dans ce domaine d'énergie, le rendement est également le résultat de plusieurs processus physiques occasionnés lors du cheminement des électrons dans le matériau. Il s'agit principalement des interactions individuelles et collectives qu'il faut traiter séparément pour déterminer le poids de chacune dans la contribution au rendement. Les interactions avec les électrons de cœur ne peuvent pas avoir lieu, bien évidemment, dans ce domaine d'énergie. Après une présentation des résultats de la simulation, leur confrontation se fera avec les seules mesures réalisées dans le domaine des très basses énergies que nous avons rencontrées dans la littérature.

III.2.1.3.2.1. Rendement à incidence normale

III.2.1.3.2.1.1. Description

Le rendement total, σ , de rétrodiffusion, η , d'émission secondaire vraie, δ , et le coefficient de réflexion, R , obtenus à l'aide de notre approche, pour des énergies d'incidence dans l'intervalle [0,5 ; 25] eV, sont représentés sur la Figure III-21. À partir d'1 eV, σ augmente avec l'énergie d'incidence et présente des variations locales vers 6,5 eV et 15 eV. En-dessous de 1 eV, on observe une remontée du rendement. Pour comprendre ce comportement, nous allons expliciter les différentes contributions au rendement total à savoir η , δ et R .

Le coefficient de réflexion R traduit l'effet de la marche de potentiel de surface. Il s'agit de la part d'électrons primaires qui ont été réfléchis par la surface du matériau. La courbe correspondante est déterminée en utilisant la probabilité de réflexion pour la marche de potentiel exponentielle présentée sur la Figure II-38. Ce coefficient de réflexion qui n'est significatif qu'en-dessous de 5 eV, tend à faire augmenter le rendement total d'émission à partir de quelques eV. C'est donc, cette augmentation de R quand E_0 tend vers 0 qui engendrera la remontée du rendement total en-dessous d'1 eV. Cette remontée est totalement dépendante du choix du modèle de la marche de potentiel de surface.

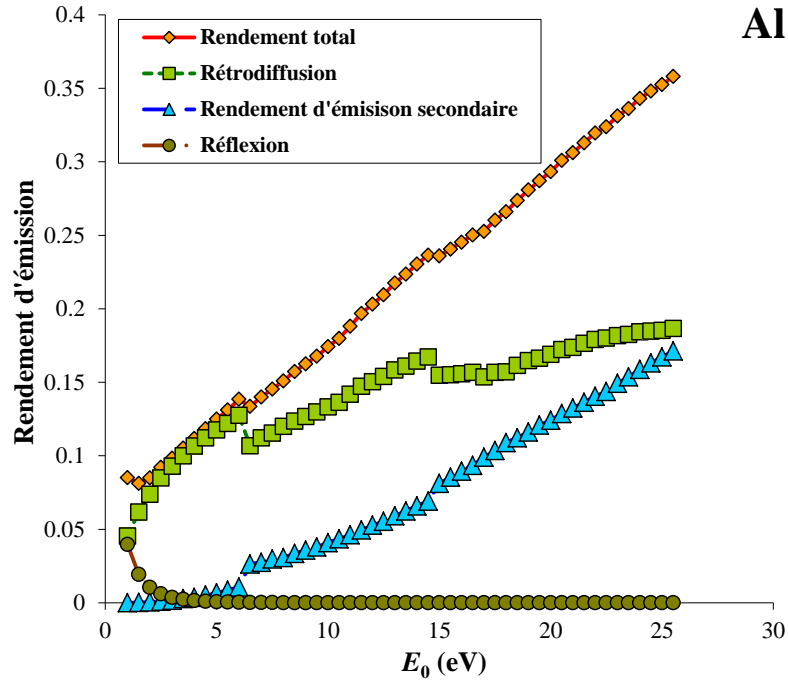


Figure III-21 : Variations des rendements (total, de rétrodiffusion et d'émission secondaire vraie) et du coefficient de réflexion en fonction de l'énergie primaire.

Le rendement d'émission secondaire vraie augmente avec l'énergie d'incidence. Il est quasiment nul vers 1 eV et présente des discontinuités à 6,5 eV et 15 eV. L'interprétation de ces discontinuités n'est possible qu'en analysant les contributions des différentes interactions inélastique représentées sur la Figure III-22. On constate que la contribution de l'excitation des électrons de conduction croît de façon monotone avec l'énergie alors que les autres contributions (désexcitations des plasmons de surface et de volume) présentent de fortes discontinuités. En effet, pour le plasmon de surface, sa contribution reste nulle jusqu'à 6,5 eV, où elle subit un saut abrupt après lequel elle se stabilise pour ensuite augmenter légèrement à partir de la vingtaine d'eV. Un comportement semblable au précédent a été constaté pour le plasmon de volume mais le saut a lieu 15 eV.

Concernant le rendement de rétrodiffusion et ses deux composantes élastique et inélastique, leur évolution en fonction de l'énergie a été représentée sur la Figure III-23.

Ce rendement, en augmentant avec l'énergie, subit une diminution brusque à 6,5 eV et augmente de nouveau jusqu'à 15 eV où, là encore, il subit une brusque diminution, suivi d'un léger plateau pour ensuite augmenter à nouveau. On constate également que le rendement de rétrodiffusion tend vers zéro quand l'énergie d'incidence tend vers zéro.

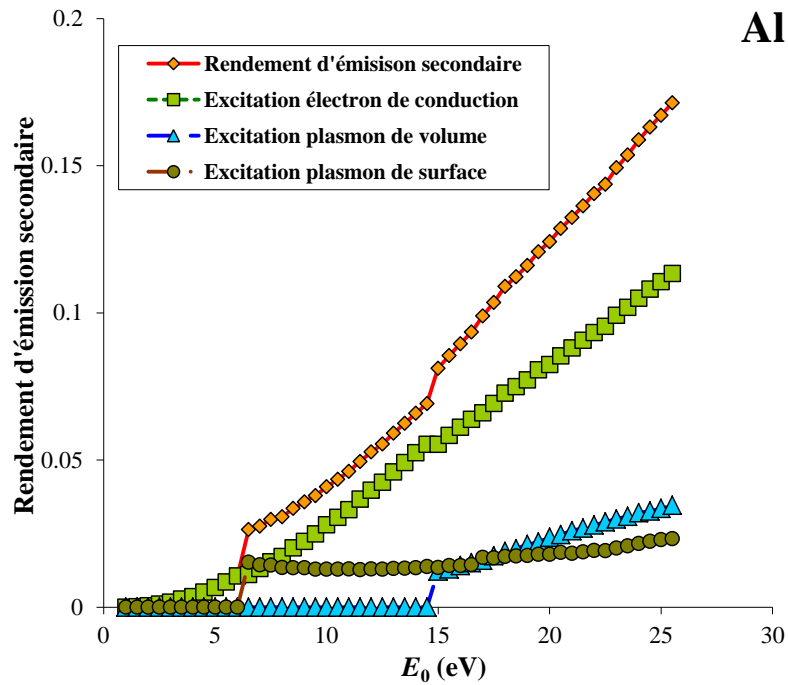


Figure III-22 : Rendements d'émission secondaire simulés en fonction de l'énergie

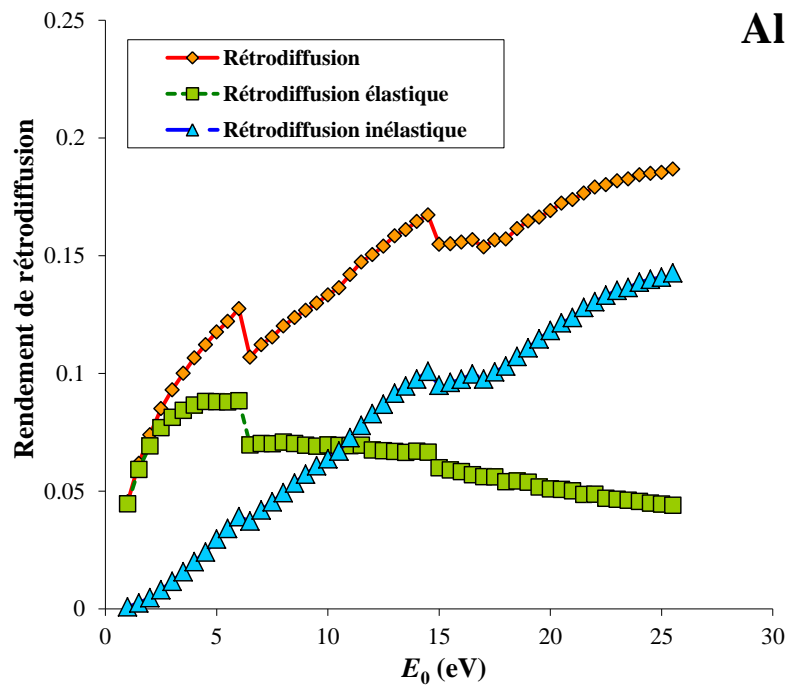


Figure III-23 : Rendements de rétrodiffusion (totale, élastique et inélastique) issus de nos simulations en fonction de l'énergie.

Lorsqu'on observe les contributions élastiques et inélastiques de la rétrodiffusion, nous retrouvons les mêmes discontinuités que précédemment. La première discontinuité à 6,5 eV est très marquée pour le rendement de rétrodiffusions élastique alors qu'elle l'est moins pour

la rétrodiffusion inélastique. Le rendement de rétrodiffusion élastique diminue après cette discontinuité alors que le rendement de rétrodiffusion inélastique augmente. Notons qu'au-delà de la dizaine d'eV la rétrodiffusion inélastique prend le pas sur la diffusion élastique.

À 15 eV les deux rendements présentent une discontinuité. Le rendement de rétrodiffusion élastique diminue brusquement et continue à diminuer avec l'énergie incidente. Le rendement de rétrodiffusion inélastique, quand à lui, diminue brusquement à 15 eV puis présente un plateau de quelques eV pour ensuite augmenter de nouveau.

Pour expliquer l'allure du rendement total, notamment sa tendance vers zéro quand l'énergie incidente tend vers zéro, désormais, l'analyse des courbes du rendement de rétrodiffusion s'impose.

III.2.1.3.2.1.2. Rétrodiffusion au zéro de l'énergie et rôle de la marche de potentiel de surface

Nous avons vu précédemment (Figure III-23) que quand l'énergie d'incidence dans le vide tend vers zéro, les rendements de rétrodiffusion élastique et inélastique tendent également vers zéro. Ce comportement est compréhensible en considérant la Figure III-24 représentant les probabilités de diffusion élastique et inélastique, complémentaires, en fonction de l'énergie des électrons incidents.

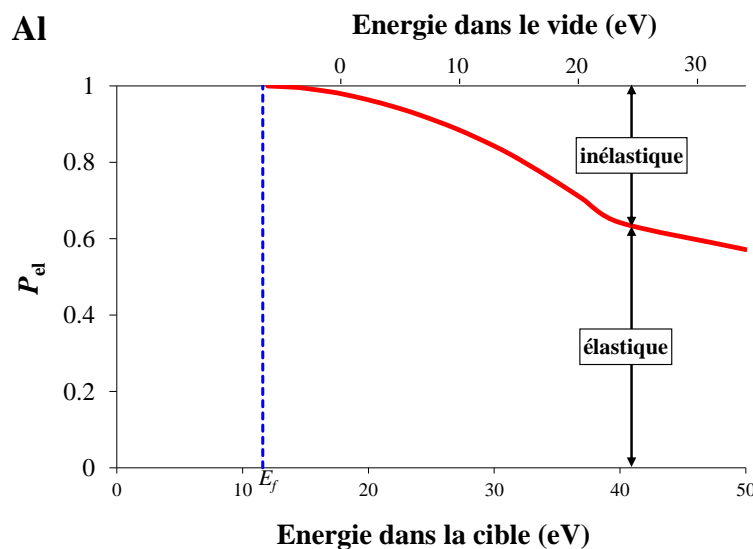


Figure III-24 : Probabilités de diffusion élastique et inélastique en fonction de l'énergie des électrons incidents

Lorsque l'énergie de l'électron est faible, la probabilité pour qu'une interaction soit élastique, P_{el} , est très élevée alors que la probabilité de subir une interaction inélastique est très faible. Les électrons qui ont pénétrés dans le matériau à des énergies proches de zéro vont ainsi subir statistiquement quelques dizaines d'interactions élastiques pour une interaction inélastique. En conséquence, de nombreux électrons subissent des diffusions élastiques à la surface de la cible avant de subir une perte d'énergie, d'où un rendement de rétrodiffusion inélastique qui tend vers zéro.

Puisque les électrons, une fois dans le matériau, ont une forte probabilité d'arriver à la surface sans subir de perte d'énergie, nous pouvons intuitivement penser que le rendement de rétrodiffusion élastique devrait augmenter lorsqu'on tend vers une énergie d'incidence nulle. Cependant, la sortie de l'électron élastique du matériau est contrainte par l'existence d'un angle limite de sortie α_{lim} . Cet angle défini par rapport à la normale à la surface et lié à la marche de potentiel est donné par l'expression (I-53) :

$$\alpha_{lim} = \arcsin\left(\sqrt{\frac{E - U_0}{E}}\right)$$

Cet angle limite devient très faible quand l'énergie E de l'électron est proche de U_0 (voir Figure III-25).

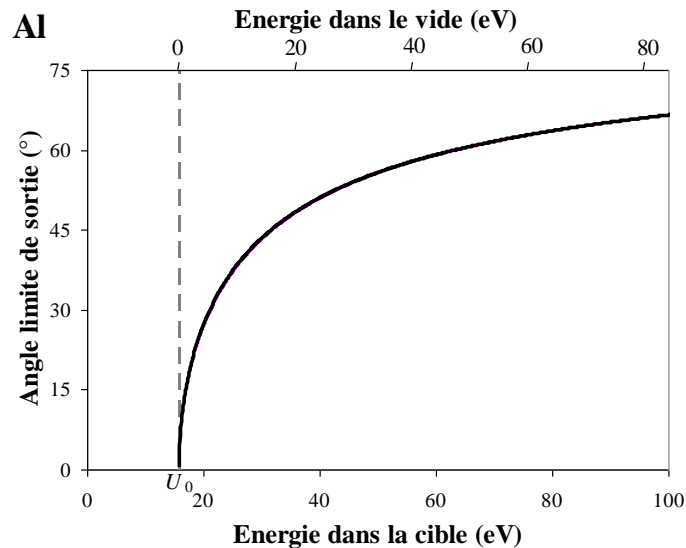


Figure III-25 : Angle limite de sortie par rapport à la normale à la surface en fonction de l'énergie des électrons dans la cible et dans le vide.

À titre d'exemple, un électron d'une énergie E supérieur d'1 eV à U_0 a un angle limite de sortie de $14,1^\circ$ par rapport à la normale à la surface. Le cône d'échappement défini par cet

angle limite est donc très petit pour des électrons de quelques eV. Ces électrons vont être réfléchis de nombreuses fois d'avoir un angle d'attaque inférieur à l'angle limite. Cela provoque l'allongement de leur trajet dans la cible et ils auront donc une plus grande probabilité de subir une interaction inélastique et finir par se piéger dans la cible [GAN-95, NIS-00]. Pour une meilleure compréhension de ces considérations, nous avons calculé la probabilité d'échappement élastique en fonction de la longueur du parcours dans l'aluminium pour des énergies dans le vide allant de 1 à 5 eV. Cette probabilité est représentée sur la Figure III-26.

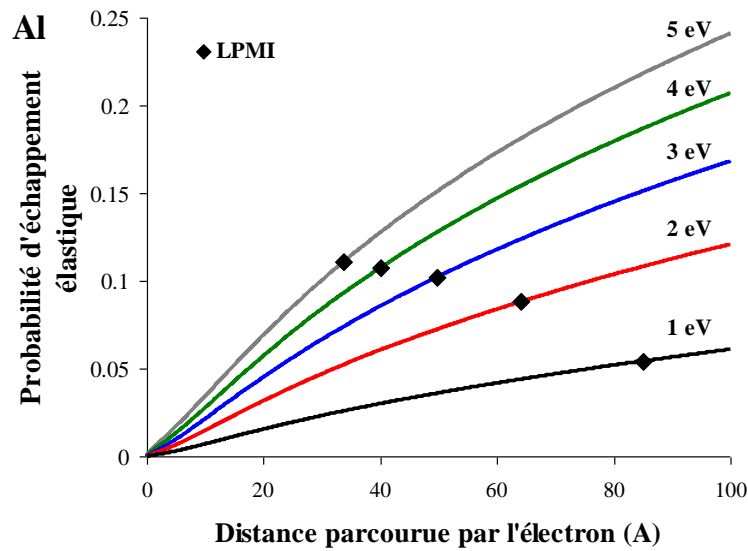


Figure III-26 : Probabilité d'échappement élastique en fonction de la longueur du parcours de l'électron dans la cible pour des énergies primaires dans le vide de 1 à 5 eV. Les symboles (◆) représentent les libres parcours moyens inélastiques (IMFP) calculés pour les mêmes énergies.

Nous voyons que cette probabilité est faible lorsque la longueur du trajet devient comparable au libre parcours moyen inélastique (IMFP), autour de 8%, pour un électron de 2 eV. En d'autres termes pour un électron de très faible énergie, la probabilité de subir une collision inélastique est significative car la longueur de son trajet dans le matériau est grande. Dans cette gamme d'énergie, une seule interaction inélastique peut suffire pour abaisser l'énergie de l'électron à des énergies proches ou en dessous de la marche de potentiel de surface U_0 . Il en résulte une probabilité d'émission encore plus faible et par conséquent un rendement d'émission qui tend à diminuer au fur et à mesure que l'énergie primaire baisse.

III.2.1.3.2.1.3. Discontinuités et rôle des plasmons

Pour essayer de comprendre les discontinuités observées sur la courbe du rendement d'émission secondaire vraie aux énergies 6,5 eV et 15 eV, nous allons discuter les différentes contributions à ce rendement représentées sur la Figure III-22. Pour vérifier que ces discontinuités sont bien liées aux interactions avec les plasmons, les simulations sont mises en œuvre avec et sans ces interactions. Les rendements d'émission secondaire que nous avons obtenus sont représentés sur la Figure III-27. Dans le cas (a) de la simulation, nous n'avons pas considéré les interactions avec les plasmons de volume et de surface. Ce rendement ne présente aucune discontinuité et augmente de manière monotone.

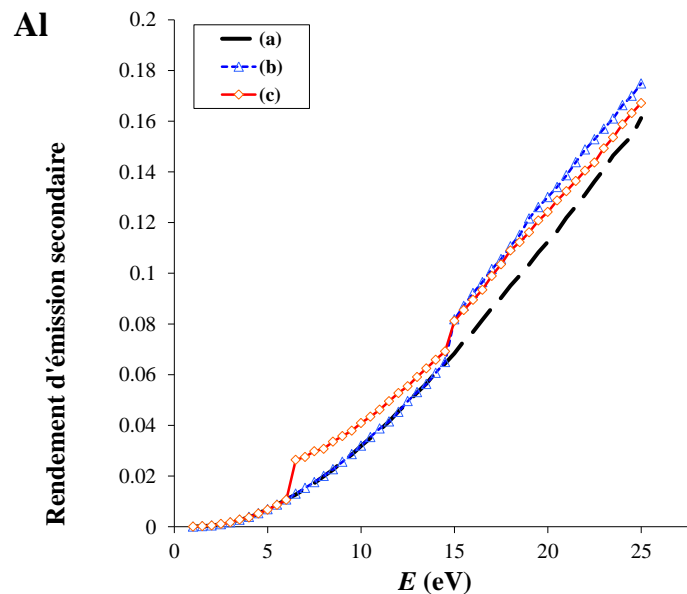


Figure III-27 : Rendement d'émission secondaire simulé en fonction de l'énergie primaire :(a) sans plasmons de volume et de surface ; (b) sans plasmon de surface ; (c) avec les plasmons de volume et de surface.

En revanche l'introduction de l'interaction avec le plasmon de volume dans la simulation (cas (b)) fait apparaître une discontinuité à 15 eV. En effet, des électrons d'une énergie cinétique de 15 eV dans le vide auront une énergie cinétique de 30,85 eV dans la cible d'aluminium, soit une énergie tout juste supérieure à l'énergie seuil d'interaction avec le plasmon de volume soit 30,6 eV (cf. section II.3.2.2.2.2). L'électron incident peut exciter un plasmon de volume qui met en mouvement un électron de la cible qui pourra alors être émis, d'où l'augmentation du rendement d'émission secondaire par rapport au cas (a).

De même, en introduisant l'interaction avec le plasmon de surface (cas **(c)**) en plus des autres interactions, une nouvelle discontinuité apparaît vers 6,5 eV. En effet, des électrons d'une énergie cinétique de 6,5 eV dans le vide auront une énergie cinétique de 22,35 eV dans la cible d'aluminium, soit une énergie tout juste supérieure à l'énergie seuil d'interaction avec le plasmon de surface qui est de 22,2 eV (cf. section II.3.2.2.3.1). Les électrons qui vont interagir avec des plasmons de surface vont mettre en mouvement des électrons de la cible qui pourront alors être émis, d'où l'augmentation du rendement d'émission secondaire par rapport au cas **(a)**. On peut noter qu'au-delà de 15 eV, le rendement d'émission secondaire du cas **(c)** est légèrement inférieur au cas **(b)**. Ceci est lié au fait que des électrons excités par un plasmon de volume ont une énergie suffisante pour interagir avec un plasmon de surface et qu'une petite partie de ces électrons est fortement ralentie par cette interaction et ne peut donc pas s'échapper de la cible.

La même démarche a été également utilisée pour analyser les discontinuités du rendement de rétrodiffusion (voir Figure III-23). Les résultats obtenus par cette démarche sont représentés sur la Figure III-28. Dans le cas **(a)** de simulation, nous avons retiré les interactions avec les plasmons de volume et avec les plasmons de surface. Ce rendement ne présente aucune discontinuité et augmente de manière monotone.

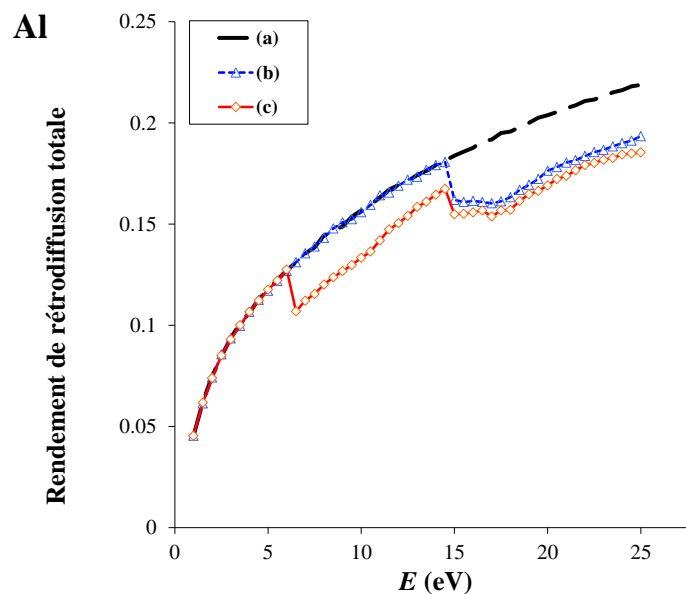


Figure III-28 : Représentation du rendement total de rétrodiffusion simulé en fonction de l'énergie primaire : (a) sans plasmons de volume et de surface ; (b) sans plasmon de surface ; (c) avec les plasmons de volume et de surface.

L'introduction de l'interaction avec le plasmon de volume dans la simulation (cas**(b)**), fait apparaître une discontinuité vers 15 eV. Cela correspond à un électron de 30,85 eV d'énergie cinétique dans la cible qui peut interagir avec un plasmon de volume. L'énergie transférée au cours de cette interaction est comprise entre 15 et 19 eV (cf. section II.3.2.2.5.2). L'électron après l'interaction, aura une énergie cinétique dans la cible comprise entre 11,85 et 15,85 eV et ne peut donc pas franchir la marche de potentiel. Cette perte d'énergie entraîne aussi bien une diminution de la rétrodiffusion élastique qu'inélastique. Le plateau que l'on observe après 15 eV et présent uniquement sur la courbe de rétrodiffusion inélastique correspond à un transfert d'énergie, lors de l'interaction avec le plasmon de volume, sur une bande d'énergie de l'ordre de 4 eV. Les électrons vont être plus ou moins ralentis et seule une part d'entre eux auront assez d'énergie pour sortir du matériau. Par exemple des électrons de 32,85 eV d'énergie cinétique dans la cible (17 eV dans le vide) ont, après interaction avec le plasmon de volume, une énergie cinétique dans la cible comprise entre 13,85 et 17,85 eV, ce qui fait qu'une partie seulement de ces électrons peuvent être émis car leur énergie est supérieure à U_0 .

En introduisant en plus l'interaction avec le plasmon de surface, le cas (c), une nouvelle discontinuité apparaît vers 6,5 eV. L'électron qui a une énergie cinétique de 22,35 eV dans la cible (6,5 eV dans le vide) et qui interagit avec un plasmon de surface dans la cible va transférer 11,6 eV lors de l'interaction (cf. section II.3.2.2.3.1). Cet électron aura alors une énergie de 11,75 eV dans la cible, insuffisante pour passer la marche de potentiel, et ne pourra participer à la rétrodiffusion inélastique. Ainsi on observe une diminution brusque de la rétrodiffusion.

III.2.1.3.2.2. Rendement à incidence oblique

L'évolution du rendement total d'émission en fonction de l'angle d'incidence est représentée sur la Figure III-29(a). Le rendement décroît pour atteindre un minimum et ensuite croît. Les valeurs au zéro de l'énergie ainsi que l'abscisse du minimum augmentent quand l'angle augmente. Le comportement observé pour des énergies de l'ordre de l'eV est directement lié au coefficient de réflexion qui dépend fortement de l'angle d'incidence (Figure III-30). Le coefficient de réflexion, dans le cas d'un angle d'incidence de 60° représente 20% du rendement total d'émission, tandis qu'il ne représente que 12% du rendement total pour un angle d'incidence de 40° et 5% à 20° . Le coefficient de réflexion joue

donc un rôle important dans la variation du rendement en fonction de l'angle d'incidence à quelques eV. La Figure III-29(b) donne le rendement total en fonction de l'angle d'incidence pour les énergies 3 et 15 eV. Pour la première énergie le rendement reste constant et l'effet du coefficient de réflexion ne se manifeste qu'à partir de 40° alors que pour la seconde énergie cet effet est retardé jusqu'à 70°. Cependant nous avons vu qu'à incidence normale, la remontée du rendement en-dessous d'1 eV est essentiellement lié au choix du modèle de la marche de potentiel de surface. Bien que cette remontée soit d'autant plus accentuée que l'angle d'incidence soit grand, une marche plus proche de la réalité (cf. section I.2.4.3) aurait tendance à l'atténuer.

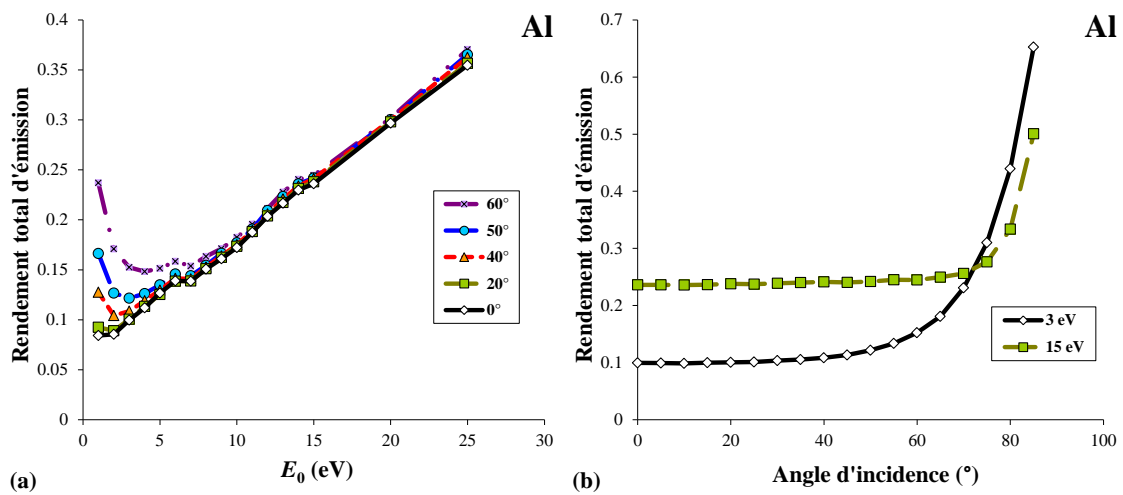


Figure III-29 : Rendements total d'émission simulés à très basse énergie : (a) en fonction de l'énergie d'incidence pour plusieurs angles d'incidence ; (b) en fonction de l'angle d'incidence pour 3 et 15 eV.

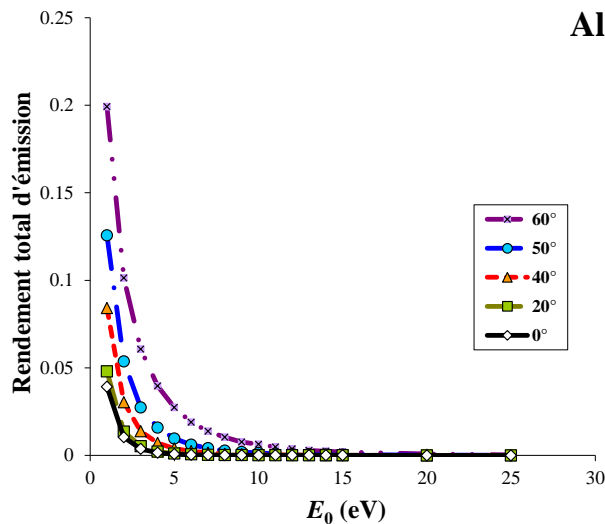


Figure III-30 : Coefficients de réflexion obtenus à très basse énergie pour plusieurs angles d'incidence.

III.2.2. Mesures à très basse énergie

III.2.2.1. Dispositif et procédure

En raison de l'insuffisance, voire l'inexistence des données expérimentales dans le domaine des électrons de très basse énergie, le Département de l'Environnement Spatial (DESP) de l'ONERA a été conduit à mettre au point une instrumentation spécifique DEESSE qui permet en particulier d'acquérir les deux grandeurs caractéristiques de l'émission électronique, à savoir les spectres d'énergie des électrons émis et le rendement total d'émission. Nous allons donner les grandes lignes des méthodes utilisées pour déterminer ces grandeurs ainsi que l'instrumentation associée. Pour en savoir plus, une description complète est consignée dans le travail de Belhaj et co. [BEL-09] et les références incluses.

III.2.2.1.1. Description du dispositif

Après avoir donné le schéma de principe de l'appareil utilisé (voir Figure III-31) et sa photo (Figure III-32), il est utile de rappeler les conditions expérimentales de sa mise en œuvre ainsi que ses performances.

- Le vide est réalisé à l'aide d'un système de pompage cryogénique secondaire muni d'une pompe primaire moléculaire ce qui permet de s'affranchir de toute pollution liée au pompage (huiles par exemple dans le cas d'une pompe à diffusion). Le niveau du vide dans l'enceinte est de l'ordre de 10^{-7} mbar.
- Le canon à électron utilisé est de type Kimball Physics ELG-2. Il fournit un faisceau d'électrons dont l'énergie est variable (de 1 à 2000 eV). Le diamètre de la zone irradiée peut varier du mm à quelques cm.
- L'irradiation peut se faire de façon permanente (mode continu : dc) ou par impulsion (un ou plusieurs pulses) dont la durée peut être ajustée de 1 μ s à quelques ms.
- Le courant primaire, mesuré grâce à une cage de Faraday, est ajustable dans une large gamme de courant allant de 1 nA à 10 μ A.
- Les électrons émis par la cible peuvent être recueillis à l'aide d'un collecteur hémisphérique dont la polarisation est flottante.

- Le potentiel de surface de l'échantillon irradié, quand celui-ci est isolant ou flottant, peut être mesuré dans une gamme de tension de -200 à +200 V par une sonde de Kelvin dont la précision est de l'ordre de 5 mV.
- Le porte échantillon est polarisable dans une gamme de -600 V à + 600 V avec une précision de l'ordre de quelques dizaines de mV.
- L'angle d'incidence des électrons primaires peut être ajusté entre 0° (incidence normale) et 90° (incidence rasante).
- La température du porte échantillon est ajustable de la température ambiante à 750°C.
- Le champ magnétique terrestre peut être compensé activement par un dispositif formé par six bobines magnétiques disposées selon le montage d'Helmholtz.

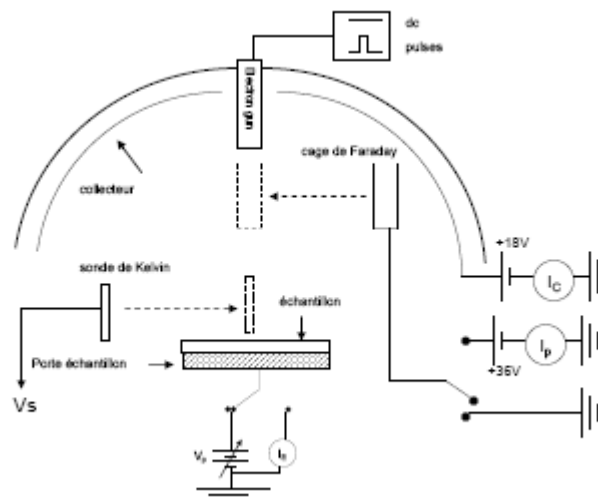


Figure III-31 : Schéma du dispositif expérimental de mesure du rendement et de la distribution électronique

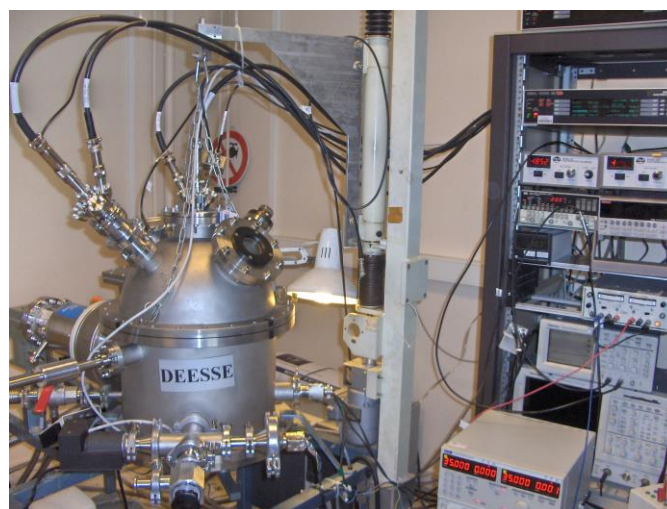


Figure III-32 : Enceinte DEESSE.

Bien que le prototype actuel ne travaille pas sous ultra vide (vide limité à 10^{-7} torr) et ne dispose pas non plus de dispositif de nettoyage des échantillons, la procédure employée pour éviter les problèmes liés à la couche de contamination consiste à utiliser un étuvage approprié et à travailler en mode impulsion.

III.2.2.1.2. Méthode de mesure du rendement d'émission

Pour éviter les problèmes liés entre autres à la contamination (conducteurs) et/ou aux effets d'irradiation et de charge (isolants) les mesures sont réalisées par des impulsions d'électrons courtes.

Lors de la mesure, l'échantillon est généralement mis à la masse. Un collecteur hémisphérique, polarisé positivement, joue à la fois le rôle d'extracteur d'électrons et s'oppose à la rémission des électrons tertiaires du collecteur vers le porte-échantillon. La symétrie cylindrique du potentiel électrique généré par le collecteur autour du faisceau d'électron permet de minimiser la perturbation du faisceau d'énergie aux très basses énergies [WAN-12]. La mesure, automatisée, consiste à calibrer en premier le courant primaire pour chaque énergie à l'aide d'une cage de Faraday. Par la suite, le courant d'échantillon est mesuré pour les mêmes énergies. Dans une dernière étape de vérification, le courant primaire est remesuré pour s'assurer de sa stabilité.

L'intégration des différents courants sur la durée des impulsions donne respectivement les charges Q_0 , Q_S et le rendement σ selon la relation suivante :

$$\sigma_s = \frac{Q_0 - Q_S}{Q_0}$$

III.2.2.1.3. Spectromètre

La distribution énergétique est mesurée à l'aide d'un spectromètre rudimentaire, conçu au DESP dans le cadre d'une RT CNES [BEL-10], dont la coupe schématique et la géométrie sont représentées sur les Figure III-33 a et b. La mesure est basée sur l'utilisation d'un ensemble de trois grilles retardatrices couplées à un collecteur. Cet ensemble est fixé sur un bras de rotation et le collecteur est polarisé à une tension de +36 V. La polarisation des deux

grilles juxtaposées, V_G , est variable permet de filtrer les électrons incidents. La troisième grille mise à la masse a pour but de masquer le champ électrique créé par les polarisations des deux autres grilles.

Le choix d'utiliser un système de filtrage à deux grilles a pour but d'améliorer la résolution du dispositif (au détriment de sa sensibilité). Pour les très faibles signaux, une seule grille retardatrice peut être utilisée.

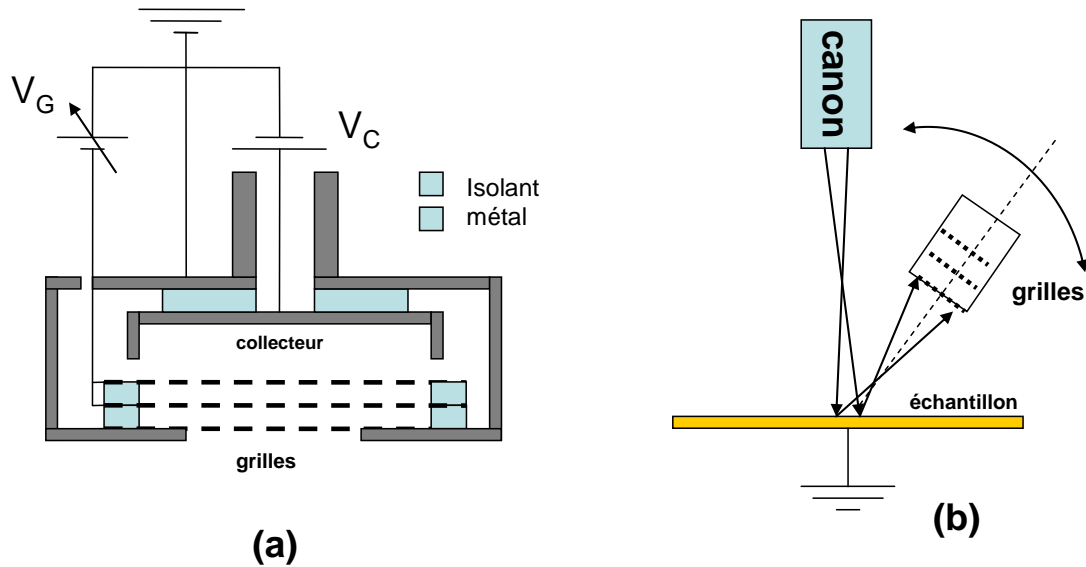


Figure III-33 : Dispositif de filtrage en énergie des électrons émis et de mesure de direction d'émission.

Le signal délivré par le collecteur est proportionnel à :

$$\int_0^{-qV_G} \frac{dN(E)}{dE} \cdot dE$$

La distribution en énergie des électrons émis peut donc être obtenue par dérivation du signal du collecteur. Les grilles utilisées ont une maille de $190 \mu\text{m}$ et une transparence de 68%. La polarisation des grilles du spectromètre peut varier dans la gamme de tension allant de 0 à 130 V. Le signal du collecteur est amplifié par un convertisseur courant/tension à gain variable (de 10^2 V/A à 10^8 V/A) connecté à un oscilloscope.

La mesure du spectre d'énergie est effectuée en mode impulsion dans les mêmes conditions expérimentales que le rendement d'émission électronique. En moyenne, une dizaine d'impulsions par V_G est nécessaire pour obtenir un signal exploitable car la dérivation du signal est extrêmement sensible au bruit.

III.2.2.2. Mesures

III.2.2.2.1. Rendement de quelques métaux

L'évolution du rendement en fonction de l'énergie primaire qui découle de la troisième méthode pour différents matériaux étudiés (Au, Ag, Al, et C) est représentée sur la Figure III-34. Excepté pour le carbone, ce rendement montre une augmentation linéaire au début suivie d'un plateau pour augmenter de nouveau. La largeur du plateau est fonction du matériau. Le comportement particulier de l'aluminium qui présente un minimum est sans doute lié à son aptitude à s'oxyder plus facilement et à la présence par conséquent d'une couche d'oxyde à sa surface. Ce minimum correspondrait probablement à l'énergie d'interaction par plasmons dans le cas de l'alumine qui est de l'ordre de 22,6 eV [SWA-68]. Dans le cas du carbone, le minimum qui se situe à environ 3 eV correspondrait à une énergie de l'électron dans le matériau à 12 eV. Cette valeur loin d'être une interaction avec un plasmon de surface (de l'ordre de 5 eV) ou de volume (de l'ordre 7 eV) correspondrait probablement à un multiple de ces plasmons [THI-95].

La seule réserve qui s'impose ici concerne l'ordre de grandeur des valeurs du rendement qui semble être très surestimé. En effet la courbe de rendement, bien connue, pour les hautes énergies, présente deux énergies particulières pour lesquelles ce rendement est égal à l'unité (voir droite discontinue Figure III-34), la première énergie étant en général aux alentours d'une centaine d'eV, ce rendement devrait être certainement inférieur à l'unité pour des énergies inférieures à cette valeur.

Pour expliquer cette surestimation, nous nous référons aux travaux de Bronstein et Fraiman [BRO-69] ayant réalisé des mesures de rendement sur différents éléments et dans différentes conditions expérimentales. En effet, dans le cas du molybdène, notamment, on constate que le rendement d'émission à basse énergie est très sensible au traitement thermique sous vide (voir Figure III-35). Ce rendement diminue quand on augmente la température et la durée du traitement qui modifie la surface du matériau et son travail de sortie (dégazage, disparition des contaminants, recristallisation ou réduction de la couche d'oxyde etc.). On observe également que certaines oscillations tendent à disparaître après traitement thermique. Ainsi, les valeurs élevées du rendement obtenu dans notre cas sont probablement dues à un abaissement du travail de sortie de nos échantillons car non traités thermiquement. Précisons au passage que dans le cas de l'or par exemple, bien qu'il soit peu sensible à l'adsorption de contaminants à

température ambiante, la chimisorption de l'oxygène pourrait se produire sous l'effet du bombardement électronique.

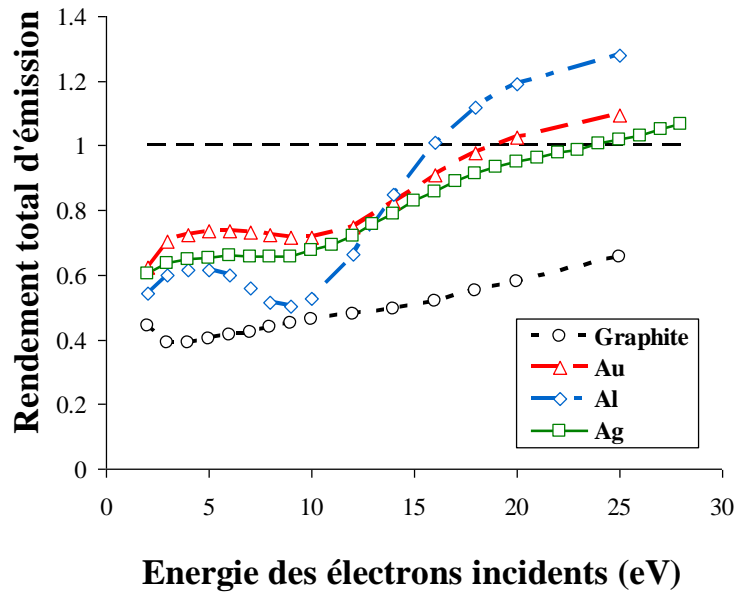


Figure III-34 : Rendement total d'émission électronique mesuré avec le dispositif DEESSE : graphite (○), aluminium (◇), argent (□) et or (△)

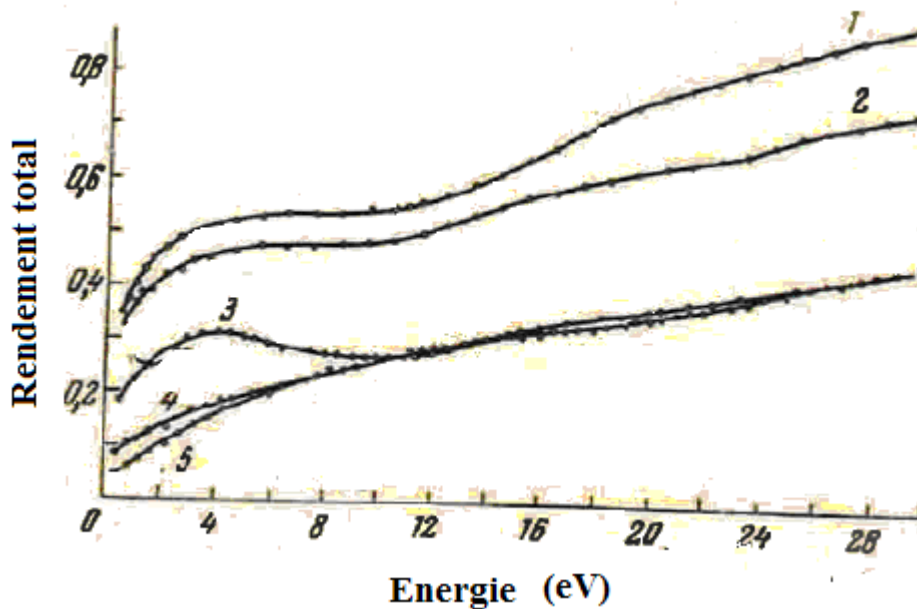


Figure III-35 : Rendement total d'émission électronique du Molybdène. Résultats expérimentaux de Bronstein et Fraiman [BRO-69] dans différentes conditions expérimentales. 1 : non traité ; 2 : 1000°C, 1h ; 3 : 1800°C 1 min ; 4 : 2000°C 4h ; 5 : 2300°C 8h

III.2.2.2.2. Distribution énergétique : mesure sur Au

Les spectres en énergie des électrons émis mesurés pour des énergies incidentes allant de 3 eV à 25 eV sont représentés sur la Figure III-36. Chaque spectre présente un pic centré sur l'énergie d'incidence. L'intensité de ce pic diminue avec l'énergie d'incidence, devenant très faible à 25 eV. À partir de 7 eV, nous observons l'apparition d'un deuxième pic vers des énergies d'émission de 2-3 eV. L'intensité de ce pic augmente avec l'énergie d'incidence pour devenir le pic prédominant vers la vingtaine d'eV d'incidence. Une augmentation de l'intensité accompagnée d'un élargissement du pic.

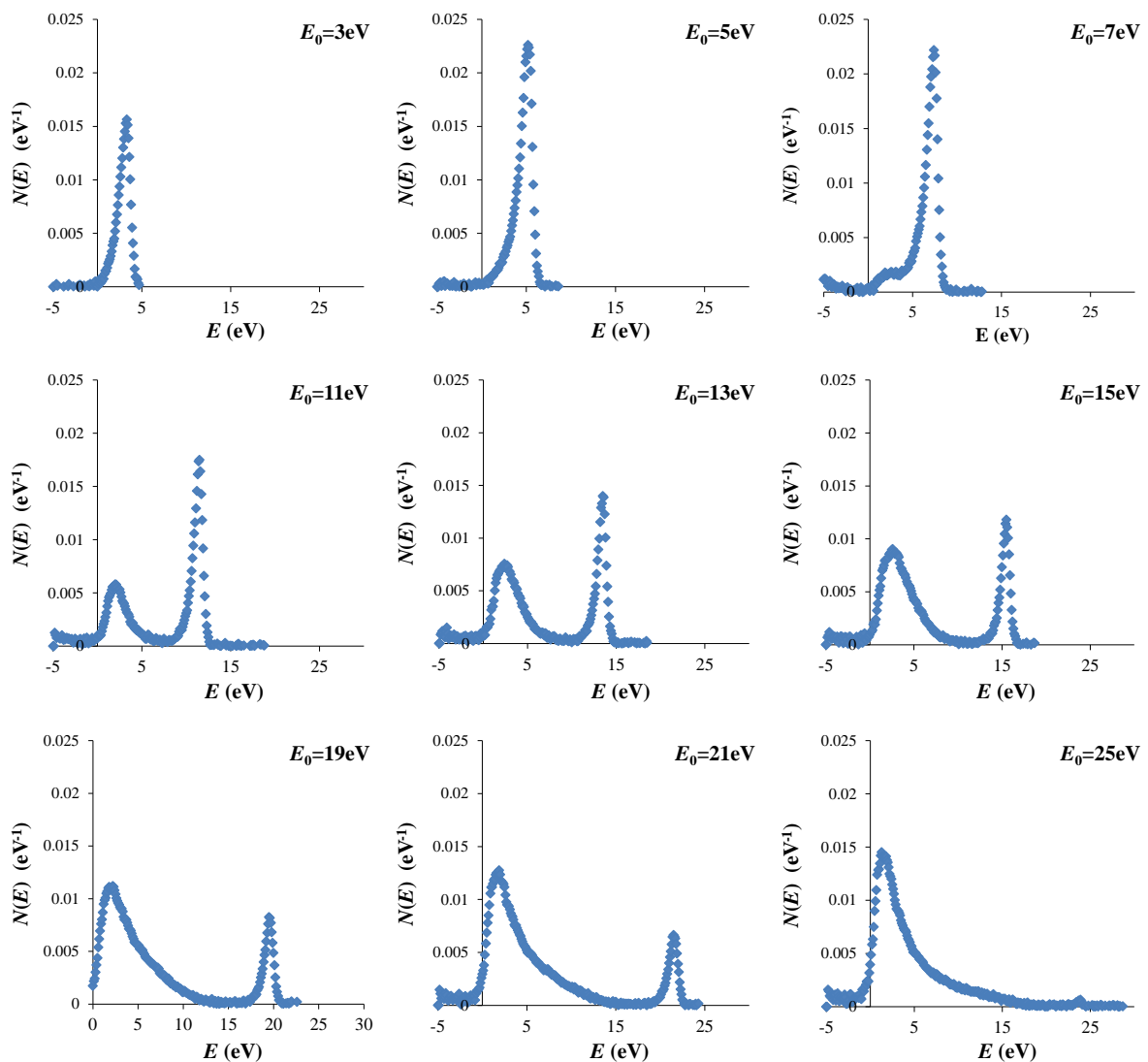


Figure III-36 : Spectres en énergie des électrons émis par l'or pour des énergies incidentes allant de 3 eV à 25 eV

III.3. Comparaison et discussion

III.3.1. Distribution énergétique

Pour un faisceau d'électrons de très basse énergie, nous ne disposons pas de données expérimentales sur la distribution énergétique des électrons émis par une cible d'aluminium. Cependant, avec le dispositif DEESSE et son spectromètre, nous avons pu réaliser des mesures de spectres en énergie pour une cible d'or (cf. Figure III-36). Nous comparerons qualitativement les comportements de ces spectres avec ceux que nous avons calculés pour l'aluminium (cf. Figure III-5), sachant qu'il ne s'agit pas du même métal.

Globalement, aussi bien au niveau simulation que mesure, nous retrouvons un comportement comparable du pic des électrons rétrodiffusés avec une diminution du pic quand l'énergie d'incidence augmente. Dans le cas de l'Al, la proportion des électrons rétrodiffusés élastiques par rapport aux électrons émis est de 71% à 5eV, de 37% à 11 eV, de 12% à 25 eV (voir Figure III-37) et en extrapolant elle ne représente plus que 4% à 300 eV. Rappelons qu'avec les spectres mesurés de l'or, le pourcentage d'électrons rétrodiffusés élastiques décroît avec l'énergie d'incidence, il atteint des valeurs de l'ordre de 70% à 5 eV et 50% à 11 eV (voir Figure III-38).

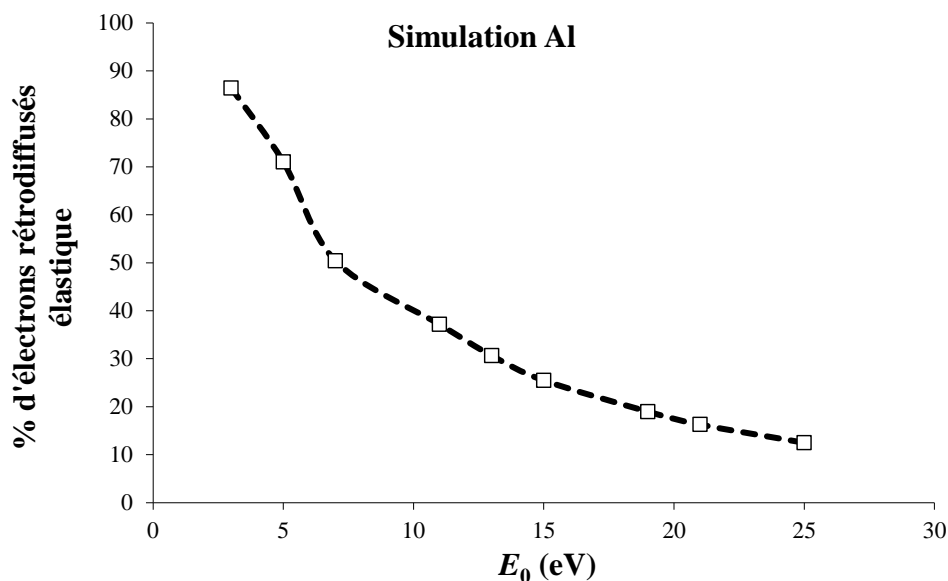


Figure III-37 : Pourcentage des électrons rétrodiffusés élastiques parmi les électrons émis, calculé à partir de spectres simulés pour l'Al.

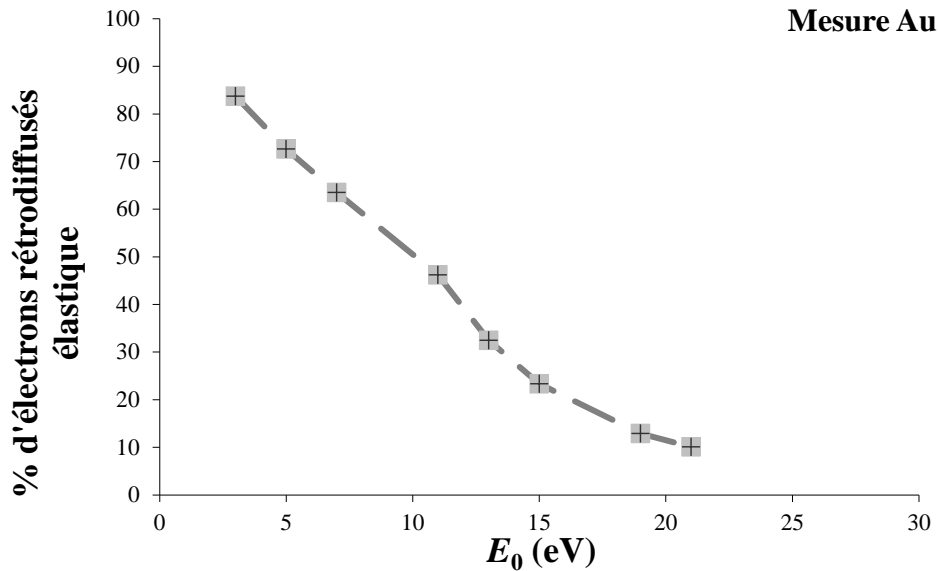


Figure III-38 : Pourcentage des électrons rétrodiffusés élastiques parmi les électrons émis, calculé à partir des spectres mesurés pour l' Au avec DEESSE.

Concernant les pics associés aux électrons rétrodiffusés inélastiques (pics pertes plasmon), ils sont bien mis en évidence sur les spectres simulés. Ils sont inexistant sur les spectres expérimentaux principalement à cause de la mauvaise résolution énergétique du spectromètre rudimentaire construit.

Concernant le pic des secondaires, indépendamment du matériau (Al ou Au), nous constatons un élargissement et une intensité qui augmente quand l'énergie d'incidence augmente.

III.3.2. Rendement

Au stade actuel de nos expériences et des résultats acquis, il est difficile de comparer ces résultats avec ceux des simulations Monte-Carlo. Ces derniers n'ont donc pas pu être validés que grâce aux seuls résultats expérimentaux, effectués sur l'aluminium dans le domaine énergétique étudié, trouvés dans la littérature [BRO-69]. Ce dernier travail, bien que très ancien, est très rigoureux car des conditions expérimentales qui conviennent à cette problématique (vide, traitement des échantillons, etc.) ont été scrupuleusement observées.

III.3.2.1.1. Description

Sur la Figure III-39 nous avons comparé le rendement total d'émission obtenu à l'aide de nos simulations avec celui mesuré par Bronstein et Fraiman [BRO-69]. L'accord est très satisfaisant et on constate des comportements similaires entre mesures et simulations. En effet, on observe des variations locales (oscillation avec parfois un plateau) et un rendement qui tend vers zéro lorsque l'énergie incidente tend vers zéro. Cependant les plateaux ont des débuts décalés en énergie et sont bien plus marqués et larges sur la courbe expérimentale.

Dans le cas du rendement mesuré, nous observons deux plateaux qui démarrent à 5 et 10 eV alors que pour le rendement simulé ils démarrent vers 6,5 eV et 15 eV. La première oscillation présente un décalage de 1,5 eV et la deuxième oscillation présente un décalage de 5 eV. Rappelons que ces oscillations sont respectivement liées aux pertes d'énergie par plasmons de surface et de volume (cf. section III.2.1.3.2.1.3). En dessous de 1 eV, l'allure des deux courbes change légèrement, pendant que le rendement simulé augmente, le rendement expérimental diminue.

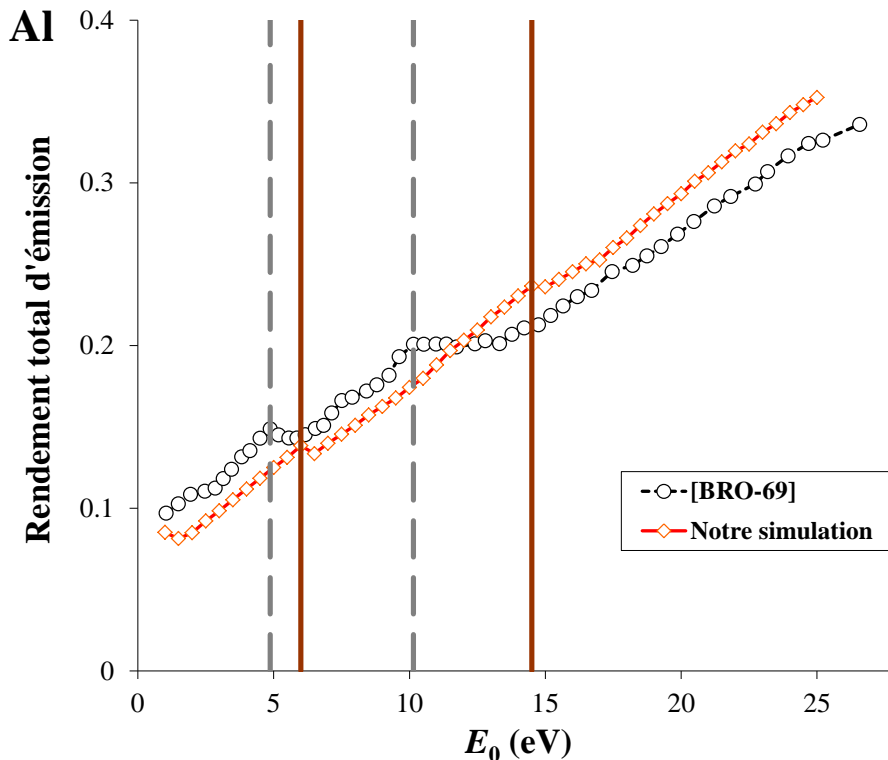


Figure III-39 : Rendement total d'émission σ en fonction de l'énergie des électrons incidents : Résultats de la simulation (\diamond) ; Résultats expérimentalement (\circ) d'après [BRO-69]. Les traits verticaux hachurés et pleins indiquent respectivement la position du début des plateaux pour l'expérience et la simulation.

III.3.2.1.2. Discussion

III.3.2.1.2.1. Décalage entre mesure et simulation de la première oscillation

D'un point de vue théorique, ce décalage peut trouver en partie son explication dans le choix du modèle associé à la marche de potentiel. En effet, le modèle utilisé dans nos simulations n'est pas tout à fait conforme à la réalité. D'un point de vue expérimental, le décalage est dû au fait que les mesures impliquent la différence entre le travail de sortie de l'échantillon et du collecteur qui n'est pas prise en compte dans les simulations faute d'absence de données à ce sujet dans les publications de Bronstein et Fraiman [BRO-69].

L'absence de plateau dans la simulation est liée à l'approximation adoptée sur le transfert d'énergie lors de l'interaction avec le plasmon de surface. En effet, nous avons supposé que le transfert d'énergie $\hbar\omega_s$ est constant. En réalité, la fréquence du plasmon de surface est définie par une relation de dispersion $\omega_s(q)$, [FEI-73]. Notre valeur de 10,6 eV de $\hbar\omega_s$ est celle correspondant à $\omega_s(0)$. Sans cette approximation, les électrons qui interagissent avec un plasmon de surface seraient statistiquement plus ralentis et les électrons excités par le plasmon de surface auraient plus d'énergie. Il y aurait alors une compétition entre la diminution de la rétrodiffusion et l'augmentation de l'émission secondaire qui pourrait aboutir à un plateau comme celui que nous obtenons à 15 eV pour l'interaction avec le plasmon de volume qui lui prend en compte la relation de dispersion de la fréquence du plasmon.

III.3.2.1.2.2. Décalage entre mesure et simulation de la seconde oscillation

Pour réduire le désaccord, lié à la position de la deuxième irrégularité et à son étendue, entre les résultats des simulations et ceux obtenus expérimentalement, on pourrait agir sur le seuil d'énergie d'excitation du plasmon de volume $E_{seuil,v}$. En effet ce seuil d'énergie d'interaction, calculé à l'aide de l'expression $E_{seuil,v} = E_F + \hbar\omega_p(q_c)$, pourrait être surestimé à cause de l'utilisation du vecteur d'onde de coupure q_c (c.-à-d. limite supérieure de l'existence des plasmons de volume) donné par Andersson [AND-72] et Ganachaud et Cailler [GAN-79] (cf. section II.3.2.2.2) et de la relation de dispersion classique donnée par l'expression (I-33) dans la section I.2.3.2.1.2.

Ce constat a été étayé en calculant le seuil d'excitation du plasmon de volume à l'aide de l'expression $E_F + \hbar\omega_p(q_{\min})$, où q_{\min} est le vecteur d'onde minimum d'existence du plasmon de volume. Ce vecteur d'onde de transfert minimum correspond à l'énergie la plus faible

possible de l'électron autorisant l'excitation d'un plasmon de volume. Dans le modèle de Chung et Everhart [CHU-77] le vecteur d'onde q du plasmon de volume excité par un électron est défini par :

$$q^2 \cong k_0^2 \cdot (\theta_E^2 + \theta^2). \quad (\text{III-1})$$

où θ est l'angle de diffusion de l'électron incident et $\theta_E = \hbar\omega_p / 2E_0$ avec E_0 l'énergie de l'électron incident avant interaction. Cette expression conduit à un seuil q_{\min} lorsque $\theta = 0$. Cependant, cette expression reste valable tant que l'énergie transférée est faible par rapport à l'énergie des électrons incidents. Pour des énergies d'incidence inférieures à quelques dizaines d'eV, cette hypothèse n'est plus valide et le vecteur d'onde q est alors donné par l'expression suivante (cf.) :

$$q^2 = 2 \cdot k_0^2 \cdot \left(1 - \theta_E - \sqrt{1 - 2\theta_E} \cdot \cos \theta\right). \quad (\text{III-2})$$

La combinaison des expressions (I-33) et (III-2) permet de calculer alors $\hbar\omega_p(q_{\min})$ en posant $\theta = 0$. Pour évaluer le poids de l'approximation, le résultat de ce calcul, est comparé sur la Figure III-40 au calcul utilisant l'expression (III-2).

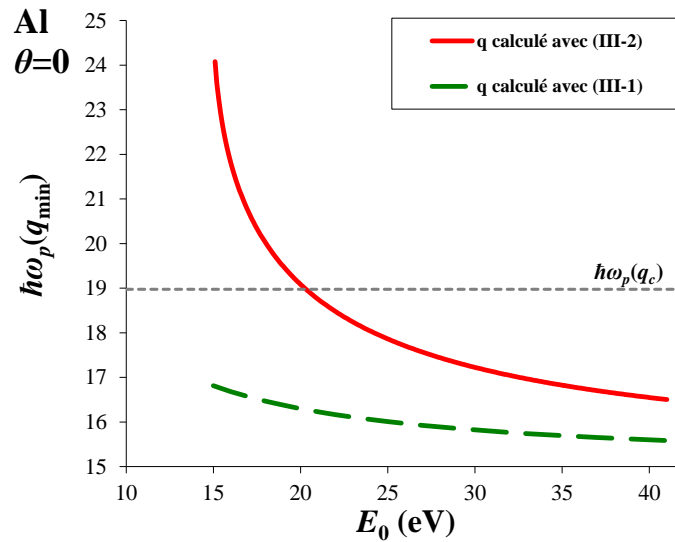


Figure III-40 : Energie minimum du plasmon de volume en fonction de l'énergie de l'électron incident.
 Trait plein : calcul utilisant l'expression (III-2) ; trait hachuré : calcul utilisant l'expression (III-1) ;
 trait horizontal en pointillé : énergie maximale du plasmon.

Selon le principe de Pauli, l'électron incident doit rester en dehors de la mer de Fermi après l'interaction. Autrement dit, l'énergie de l'électron incident après interaction, E_1 , doit respecter l'inégalité $E_1 \geq E_f$. Puisque nous avons pour l'interaction électron-plasmon de volume la relation de conservation de l'énergie $E_0 = E_1 + \hbar\omega(q)$, la perte dynamique ne peut donc pas dépasser q_{lim} tel que :

$$E_{seuil,v} = \hbar\omega_v(q_{lim}) + E_f. \quad (\text{III-4})$$

Cela nous conduit à une valeur pour $E_{seuil,v}$ de 28,9 eV, soit une énergie cinétique de 13,05 eV dans le vide. L'irrégularité de notre rendement présenterait alors un écart de 3 eV avec celle du rendement mesuré. Un autre élément est à considérer pour le calcul de cette énergie seuil. Nous avons utilisé la relation de dispersion **(I-33)** pour le calcul de l'énergie du plasmon $\hbar\omega(q_{min})$. Il s'agit d'une approximation de la relation de dispersion donnée par Pines [PIN-64] :

$$\omega_p^2(q) = \omega_p^2(0) + \frac{\hbar^2}{m^2} \cdot \left(\frac{q^4}{4} + \frac{3 \cdot q^2 \cdot q_c^2}{5} \right). \quad (\text{III-5})$$

avec $\omega_p(0)$ la fréquence propre d'oscillation du plasma et q la quantité de mouvement transférée. Si nous utilisons l'expression **(III-2)** pour exprimer q , nous pouvons calculer $\hbar\omega(q_{min})$ en posant $\theta = 0$. Le résultat de ce calcul, est représenté sur la Figure III-41. Une nouvelle énergie seuil, $E_{seuil,v}$, peut être déterminée en utilisant **(III-4)**. Nous obtenons alors une énergie seuil d'interaction de 27,5 eV, soit une énergie cinétique dans le vide de 11,65 eV. Ce qui donnerait un décalage de 1,65 eV entre l'irrégularité du rendement mesuré et celui lié au plasmon de volume dans notre approche. Un décalage similaire à celui que nous observons avec la première irrégularité où l'écart peut trouver son explication dans des différences des travaux de sortie.

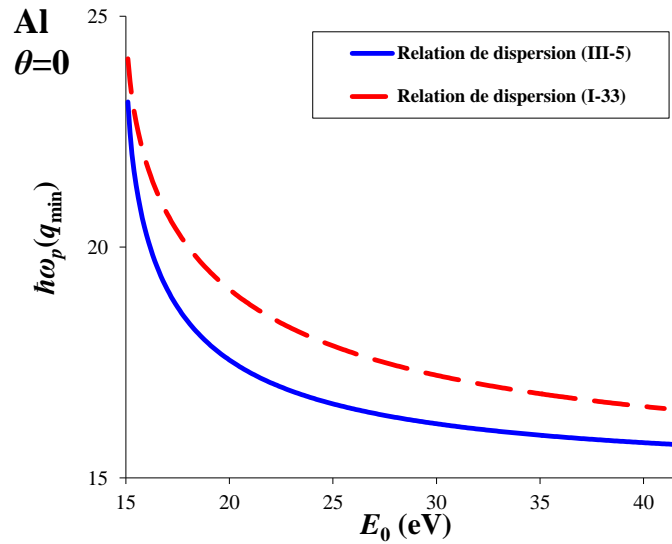


Figure III-41 : Energie minimum du plasmon de volume en fonction de l'énergie de l'électron incident calculée avec l'expression (III-5) en trait plein et calculée avec l'expression (I-33) en trait hachuré

III.3.2.1.2.3. Remonté du rendement en-dessous d'1 eV

Les deux rendements simulé et mesuré, de la Figure III-39, décroissent (c.-à-d. tendent vers zéro) quand E_0 tend vers zéro jusqu'à 1 eV. Les raisons de cette décroissance du rendement ont été données dans la section III.2.1.3.2.1.2. En-dessous d'1 eV, le rendement mesuré tend toujours vers zéro, alors que le rendement simulé remonte. Cette remontée est engendrée par le coefficient de réflexion dont l'allure est représentée sur la Figure III-21.

La Figure II-38(a) montre que dans la gamme des énergies inférieures à d'1 eV la différence entre les valeurs du coefficient de réflexion obtenues avec le modèle que nous avons sélectionné et celles obtenues avec le modèle le plus proche de la réalité (c.-à-d. marche image) serait significative. En effet, avec le modèle de marche image, le coefficient de réflexion serait de l'ordre de 0,007 alors qu'avec la marche exponentielle il est de l'ordre de 0,04. Rappelons que la valeur 0,007 est déduite d'un calcul laborieux utilisant la méthode de propagation matricielle [LEV-03] non encore implémenté dans notre programme.

Bibliographie du chapitre

- [AND-72] S. Andersson, « *Plasmon thresholds in the secondary electron yield – I. Experiment* », Solid State Commun., **11**, (1972), pp.1401.
S. Andersson, B.I. Lundqvist, G. Srinivasan, E. Wikbord, « *Plasmon thresholds in the secondary electron yield – II. Dispersion laws* », Solid State Commun., **11**, (1972), pp.1405.
- [ASS-98] A.M.D. Assa'd, M.M. El Gomati, « *Backscattering coefficients for low energy electrons* », Scanning Microscopy, **18**, (1998), pp.185.
- [BEL-09] M. Belhaj, T. Tondou, V. Inguibert, J.-P. Chardon, « *A Kelvin probe based method for measuring the electron emission yield of insulators and insulated conductors subjected to electron irradiation* », J. Phys. D: Appl. Phys., **42**, (2009), pp.105309.
M. Belhaj, T. Tondou, V. Inguibert, « *Experimental investigation of the effect of the internal Space charge accumulation on the electron emission yield of insulators submitted to e-irradiation* », J. Phys. D: Appl. Phys., **42**, (2009), pp.145303.
- [BEL-10] M. Belhaj, T. Tondou, V. Inguibert, J.-C. Matéo-Vélez, « *Mesure d'émission électronique secondaire pour les composants RF et la prédiction de la charge des satellites* », Rapport Onera, RF 2/17226 DESP, (2010).
- [BIN-80] R. Bindi, H. Lanteri, P. Rostaing, « *A new approach and resolution method of the boltzmann equation applied to secondary electron emission, by reflection from polycrystalline aluminium* », J.Phys. D: App. Phys., **13**, (2000), pp. 267.
- [BRO-69] I.M. Bronshtein, B.S. Fraiman, « *Secondary electron emission* » (En russe), Ed. Nauka, Moscow, (1969).
- [CHU-77] M.S. Chung, T.E. Everhart, « *Role of plasmon decay in secondary electron emission in the nearly-free-electron metals. Application to Aluminium* », Phys. Rev., **10**, (1977), pp.4699.
- [CIM-06] R. Cimino, « *Surface related properties as an essential ingredient to e-cloud simulations* », Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, **561**, (2006), pp. 272.
- [DIN-01] Z.J. Ding, X.D. Tang, « *Monte Carlo study of secondary electron emission* », J. Appl. Phys., **89**, (2001), pp.718-726.
- [DUB-93] A. Dubus, J.C. Dehaes, J.P. Ganachaud, A. Hafni, M. Cailler, « *Monte Carlo evaluation of the influence of the interaction cross sections on the secondary-electron-emission yields from polycrystalline aluminum targets* », Phys. Rev. B, **47**, (1993), pp.11056.
- [FEI-73] P.J. Feibelman, « *Sensitivity of Surface-Plasmon Dispersion and Damping to Potential Barrier Shape* », Phys. Rev. Lett., **30**, (1973), pp.975.
- [GAN-79] J.P. Ganachaud, M. Cailler, « *A Monte Carlo simulation of secondary electron emission of normal metals. I. The model* », Surf. Sci, **83**, (1979), pp.498.
J.P. Ganachaud, M. Cailler, « *A Monte Carlo simulation of secondary electron emission of normal metals. II. Results for aluminium* », Surf. Sci, **83**, (1979), pp.519.
- [GAN-95] J.P. Ganachaud, A. Mokrani, « *Theoretical study of the secondary electron emission of insulating targets* », Surf. Sci., **334**, (1995), pp.329.

- [GRU-87] B. Gruzz, « *Contribution à l'analyse quantitative des spectroscopies électroniques* », Thèse 1987 Université Blaise-Pascal Clermont-Ferrand II.
- [HAG-05] H.A.E. Hagelin-Weaver, J.F. Weaver, G.B. Hoflund, G.N. Salaita, « *Electron energy loss spectroscopic investigation of polycrystalline Au, Pd and a Pd-Au alloy* », *J. of. Alloys and Compound*, **393**, (2005), pp.93.
- [HAR-56] G.A. Harrower, « *Energy Spectra of Secondary Electrons from Mo and W for Low Primary Energies* », *Phys. Rev.*, **104**, (1956), pp.52.
- [KUH-99] J.Ch. Kuhr, H.J. Fitting, « *Monte Carlo of electron emission from solids* », *J. Electr. Spect. And Rel. Phenom.*, **105**, (1999), pp.257.
J.Ch. Kuhr, H.J. Fitting, « *Monte Carlo of low energy electron scattering in solids* », *Phys. Stat. Sol. (a)*, **172**, (1999), pp.433.
- [LEV-03] A.F.J. Levi, « *Applied Quantum Mechanics* », Cambridge University Press, (2003), pp.168.
- [MAO-08] S.F. Mao, Y.G. Li, R.G. Zeng, Z.J. Ding, « *Electron inelastic scattering and secondary electron emission calculated without the single pole approximation* », *J. Appl. Phys.*, **104**, (2008), pp.114907.
- [MOT-65] N.F Mott, Q.S.W Massey, « *The theory of atomic collisions* », Oxford University press, London, (1965).
- [NIS-00] K. Nishimura, J. Kawata and K. Ohya, « *Comparative study of secondary electron emission from solids under positron and electron impacts* », *Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Res. B*, **164-165**, (2000), pp.903.
- [PAL-67] P.W. Palmberg, « *Secondary emission studies on Ge and Na-covered Ge* », *J. Appl. Phys.*, **38**, (1967), pp.2137.
- [PIL-76] J. Pillon, J.P Ganachaud, M. Cailler, « *secondary electron emission from aluminium* », *Surf. Sci.*, **59**, (1976), 741.
- [PIN-64] D. Pines, « *Elementary Excitations in Solids* », Benjamin, New York, (1964).
- [RIC-10] P. Riccardi, M Pisatta, A. Cupolillo, M. Comisso, A. Sindonna, R.A. Baragiola, C.A. Dukes, « *Secondary electron emission spectra from clean and cesiated Al surfaces : the role of plasmon decay and data analysis for applications* », *J. Phys. Condens. Matter*, **22**, (2010), pp.305004.
- [ROP-75] D. Roptin , « *Étude expérimentale de l'émission électronique secondaire de l'aluminium et de l'argent* », Thèse de Docteur-Ingénieur, Université de Nantes, France, (1975).
- [SEI-83] H. Seiler, « *Secondary electron emission in the scanning electron microscope* », *J. Appl. Phys.*, **54**, (1983), pp.R1.
- [SWA-68] N. Swanson, « *Characteristic Energy-Loss Spectra and-Im(I/e) for Amorphous and Polycrystalline Al₂O₃* », *Phys. Rev.*, **165**, (1968), pp.1067-1070.
- [THI-95] P.A. Thiry, R. Caudano, J.J. Pireaux, « *Spectrométries de pertes d'énergie des électrons dans les solides* », *Tech. Ing.*, (1995), PE 2 635-1.

- [TOU-87] S. Tougaard et I. Chorkendorff, « *Differential inelastic electron scattering cross sections from experimental reflection electron-energy-loss spectra: Application to background removal in electron spectroscopy* », *Phys. Rev. B*, **22**, (1987), pp. 6573.
- [VIC-99] M. Vicanek, « *Electron transport processes in reflection electron energy loss spectroscopy (REELS) and X-ray photoelectron spectroscopy (XPS)* », *Surf. Sci.*, **440**, (1999), pp.1.
- [WAN-12] J. Wang, P. Wang, M. Belhaj, J.-C. Matéo-Vélez, « *Modeling Facility Effects on Secondary Electron Emission Experiment* », *IEEE Transactions on Plasma Science*, **40**, (2012), pp.2773.

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

Conclusion générale et perspectives

L'objectif de cette thèse était de contribuer à améliorer la compréhension du phénomène d'émission électronique (EE) des métaux sous bombardement électronique à très basse énergie (inférieure à quelques dizaines d'eV). Il s'agissait de mettre au point un programme de simulation de type Monte-Carlo des trajectoires d'électrons dans les métaux permettant de déterminer les caractéristiques fondamentales de l'EE.

Pour atteindre cet objectif, nous avons d'abord défini le phénomène d'émission secondaire et expliqué son origine. Par l'intermédiaire d'une recherche bibliographique dense, nous avons synthétisé les travaux les plus importants sur les modélisations des processus physiques impliqués dans l'EE, à savoir l'interaction avec un noyau du matériau, l'interaction avec un électron du matériau (faiblement ou fortement lié), les processus de désexcitation de type non-radiatif des noyaux (Auger et Coster-Kronig), l'excitation puis désexcitation d'un plasmon (de volume ou de surface), l'interaction avec un phonon et enfin l'interaction avec la marche de potentiel à la surface du matériau. Puis nous avons rappelé les comportements généraux des aspects phénoménologiques de l'EE que sont le rendement d'émission, la distribution énergétique et la distribution angulaire des électrons émis.

Une seconde étape pour atteindre notre but a été de développer la simulation en elle-même. Après avoir synthétisé les différentes formes de simulations Monte-Carlo, nous avons choisi de procéder à une simulation Monte-Carlo de type diffusion simple par cascades électroniques qui est à ce jour la simulation la plus complète et performante pour la simulation de l'EE. Cette approche permet un traitement exhaustif des processus physiques régissant le transport de l'électron dans un solide. Le traitement des métaux a été abordé par le biais des métaux à électrons libres, plus précisément l'aluminium. Nous avons alors sélectionné les modèles d'interaction les plus adaptés à notre domaine d'énergie d'étude : des quelques eV à plusieurs centaines d'eV. Pour le traitement de l'interaction élastique avec le noyau, nous avons adopté la meilleure base de données existant à l'heure actuelle et qui est obtenue avec le logiciel ELSEPA. Le traitement de l'interaction avec les électrons fortement liés, ou électrons de cœur, a été effectué avec le modèle classique de Gryzinski. Pour le traitement de l'interaction avec les électrons faiblement liés (c.-à-d. électrons de conduction), nous avons opté pour l'utilisation de deux modèles sur des intervalles d'énergie complémentaires. Le modèle de

Ritchie et Ashley a été utilisé, pour la première fois dans une simulation Monte-Carlo, pour décrire l'interaction à très basse énergie (en-dessous que quelques dizaines d'eV), tandis que la modélisation de Chung et Everhart a été utilisée pour des énergies supérieures (de quelques dizaines d'eV à quelques centaines d'eV). Nous avons effectué ce choix afin d'obtenir le traitement le plus rigoureux possible à très basse énergie de l'interaction. Pour l'interaction avec un plasmon de volume, nous avons adopté pour la modélisation de Chung et Everhart, que nous avons modifié pour prendre en compte l'atténuation de ce processus à la surface, ou effet *Begrenzung*. Dans le cas du traitement de l'interaction avec le plasmon de surface, nous avons développé notre propre modèle qui prend en compte l'excitation du plasmon de surface à la fois à la surface, mais aussi dans le volume avec une atténuation exponentielle du processus en fonction de la profondeur dans le matériau. L'interaction avec la marche de potentiel de surface a été traitée de manière originale en prenant en compte non pas une marche de potentiel abrupte comme il est d'usage dans les simulations de l'EE, mais une marche de potentiel exponentiel qui est une modélisation plus proche de la réalité.

L'étape préliminaire de ce travail a consisté à tester notre approche en simulant les deux caractéristiques du matériau, à savoir le libre parcours moyen inélastique et le pouvoir d'arrêt, et en les confrontant aux données expérimentales, ou obtenues avec d'autres simulations. L'accord observé a été très satisfaisant.

Les résultats de cette thèse concernent les trois grandeurs phénoménologiques de l'EE que sont les distributions énergétiques, les distributions angulaires des électrons émis et les rendements d'émission. La distribution énergétique des électrons émis simulée a été confronté aux spectres énergétiques expérimentaux à basse énergie (quelques centaines d'eV) trouvés dans la littérature. Ses caractéristiques principales représentées par les divers pics (rétrodiffusés élastiques, rétrodiffusés inélastiques, secondaires) ont été reproduites. Les épaulements sur la distribution des électrons secondaires vrais qui sont synonymes des interactions avec les plasmons ont été clairement identifiés. À très basse énergie, les distributions énergétiques simulées ont montré une prédominance de la rétrodiffusion, notamment élastique, à quelques eV, mais l'absence de données expérimentales sur l'aluminium nous a empêchés de faire une comparaison directe. Cependant, des spectres énergétiques de l'or acquis à l'aide du dispositif DEESSEE pour des énergies incidentes allant de 3 à 25 eV ont tout de même permis la comparaison qualitative avec nos simulations. Le même comportement vis-à-vis de la variation de l'énergie primaire a été alors observé, en particulier l'évolution de l'intensité du pic des électrons rétrodiffusés élastiques.

Pour ce qui est des distributions angulaires des électrons émis, la faible quantité de données dans la littérature à basse énergie et l'absence totale de données à très basse énergie empêche toute comparaison. Cependant, nous observons que la distribution angulaire des électrons secondaires ne présente pas de dépendance vis-à-vis de l'énergie ou de l'angle d'incidence, et qu'elle est proche de la forme d'une distribution lambertienne. Les distributions angulaires des électrons rétrodiffusés sont bien plus sensibles à la fois à l'énergie et à l'angle d'incidence. L'étude des distributions des électrons rétrodiffusés élastiques montre que la forme est corrélée au nombre d'interactions qu'ils ont subies, plus le nombre d'interaction est important et plus la distribution angulaire tend vers une lambertienne.

Les rendements d'émission que nous obtenons à basse énergie montrent un très bon accord avec les données expérimentales issues de la littérature. À très basse énergie, nous avons pour la première fois retrouvée par la simulation les oscillations qui avaient été observées par Bronstein et Fraiman sur de nombreux métaux, y compris l'aluminium, [BRO-69], sur les mesures de DEESSE. La position de ces oscillations présente cependant des décalages avec les données mesurées, notamment la deuxième oscillation. Nos simulations, montrent que ce sont des oscillations dues à l'émergence de l'interaction avec le plasmon de surface et avec le plasmon de volume. Le décalage avec les mesures a été expliqué d'une part par des approximations effectuées dans la modélisation de ces interactions et d'autre part par une éventuelle différence entre les travaux de sortie utilisés dans notre approche et dans les travaux de Bronstein et Fraiman. La présence de ces oscillations dans nos simulations constitue un des résultats les plus remarquables de cette étude et a fait l'objet d'une publication (cf. Annexe C). Ces oscillations peuvent apporter des informations sur la physique des interactions mais aussi sur le changement éventuel de la composition chimique de la surface de la cible. De plus, la comparaison entre le rendement simulé et celui mesuré par Bronstein et Fraiman a montré un accord très satisfaisant tant au niveau des valeurs du rendement que sur sa décroissance vers zéro lorsque l'énergie d'incidence tend vers zéro. Ce dernier comportement a été expliqué par une forte diminution de la probabilité d'échappement élastique des électrons à des énergies en-dessous de quelques eV.

L'approche que nous avons mise au point permet de simuler l'émission électronique à basse et à très basse énergie dans le cas d'un métal à électrons libres notamment l'aluminium. Bien que les données expérimentales dans ce domaine d'énergie soient rares, sa validation a été tout de même possible. Les expériences préliminaires conduites sur le dispositif DEESSE sont prometteuses et méritent d'être approfondies. L'étude d'autres matériaux comme l'argent qui

présente un intérêt technologique pour les guides d'onde radiofréquence par exemple, constituera la prochaine étape de ce travail. Cependant, la simulation dans le cas d'un matériau comme l'argent est plus complexe car sa population d'électrons faiblement liés est plus importante qu'un métal à électrons libres. En effet, dans un atome de métal noble, il y a dix électrons d pour un électron s-p, par conséquent, on s'attend à ce que la participation des électrons d à l'émission électronique secondaire soit prédominante.

Pour une perte d'énergie donnée, la probabilité pour qu'un électron secondaire soit émis à partir d'un état d'énergie E s'exprime en fonction des densités d'états initiale et finale [KUH-99]. Pour les métaux nobles comme l'or ou l'argent la densité d'états diffère considérablement de celle des métaux à électrons libres comme l'illustre la Figure 1 dans le cas de l'argent. Pour le choix de la densité d'états des ouvrages spécialisés dans le calcul de ces densités peuvent être consultés [CRA-61, LAN-81, KIT-76, EHR-62, EHR-63]. La Figure 2 montre clairement qu'avec des pertes d'énergie $\hbar\omega \geq 4$ eV, le grand nombre d'électrons $4d^{10}$ dans l'argent devient accessible à l'excitation des secondaires alors que pour les faibles pertes seuls les états $5s^1$ sont accessibles pour générer des électrons secondaires. Cette différence est à prendre en compte dans la modélisation des interactions.

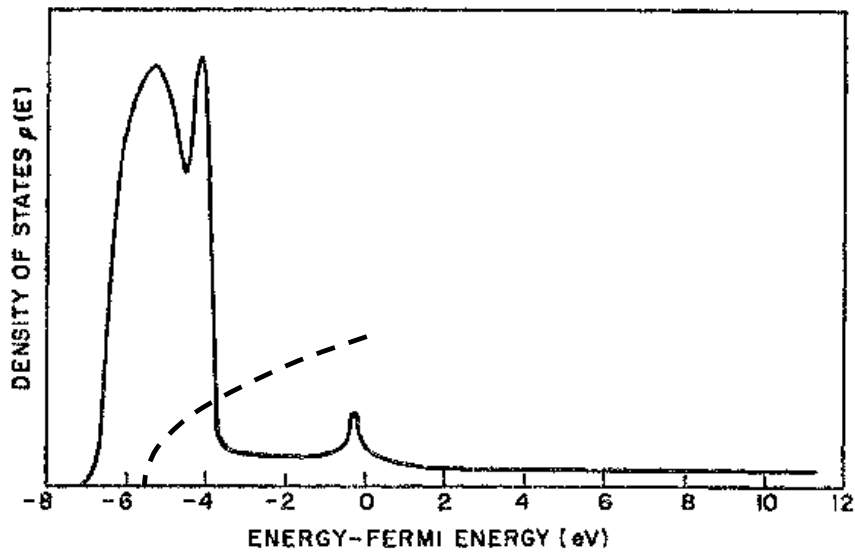


Figure 1 : Densité d'états de l'Ag obtenue par Berglung et Spicer [BER-64] en trait continu, calculé pour le cas d'un gaz d'électrons libres en trait discontinu. Le zéro d'énergie est pris au niveau de Fermi.

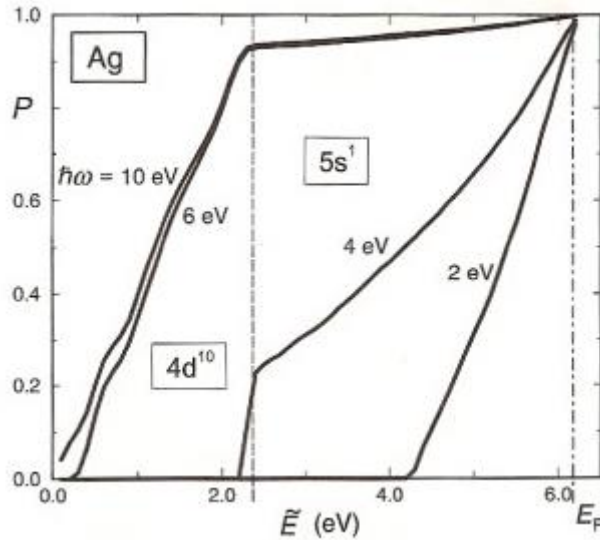


Figure 2 : Probabilité d'excitation des électrons secondaires pour différentes pertes d'énergie $h\omega$ d'après [KUH-99].

En ce qui concerne le formalisme associé à l'interaction électron-noyau, il reste inchangé, les données utilisées dans le programme de simulation de l'aluminium couvrent de très nombreux éléments dont l'argent. Le traitement de la marche de potentiel reste valable pour n'importe quel élément, le seul paramètre à changer est la valeur de la marche de potentiel de surface. Cependant, un modèle de marche plus proche de la réalité est à prendre en considération. Il s'agira notamment du modèle de la marche de potentiel image qui nécessite un traitement mathématique relativement complexe à réaliser (méthode de propagation matricielle [LEV-03]). Le formalisme utilisé pour l'interaction électron-électron fortement lié n'est pas non plus affectée. Il suffit de connaître les énergies de liaisons des électrons de cœur, ainsi que des rendements d'émission Auger, Coster-Kronig et de fluorescence X pour l'élément à étudier. Ces données sont accessibles grâce aux tableaux de données que nous avons utilisés pour l'aluminium.

Le principal changement se situe alors au niveau de la modélisation des interactions avec les électrons faiblement liés et avec les plasmons (volume et surface). En effet, les nombreuses approximations adoptées pour traiter ces interactions dans le cas de l'aluminium ne sont plus valables pour l'argent. Un formalisme basé sur les pertes optiques comme celle de Penn [PEN-86], que nous avons présenté dans la section I.2.3.1.2.3, est plus appropriée. En effet, dans cette approche, on ne cherche pas à modéliser directement la fonction diélectrique $\epsilon(\mathbf{q}, \omega)$, on exploite des données expérimentales sur la fonction perte optique $\epsilon(0, \omega)$ pour l'obtenir. Ainsi nous avons d'après Penn l'expression de la fonction perte d'énergie suivante :

$$\text{Im}\left[-\frac{1}{\varepsilon(q, \omega)}\right] = \int_0^\infty \text{Im}\left[-\frac{1}{\varepsilon_L(q, \omega)}\right] \cdot \frac{2}{\pi \cdot \omega} \text{Im}\left[-\frac{1}{\varepsilon(0, \omega)}\right] \cdot d\omega, \quad \text{(III-6)}$$

où $\varepsilon_L(\mathbf{q}, \omega)$ est la fonction diélectrique de Lindhard que nous avons présenté dans la section I.2.3.1.2.2.2. La contribution de l'interaction individuelle $\text{Im}[-1/\varepsilon(q, \omega)]_e$ est obtenue à partir de l'expression (III-6) par l'intégration sur le domaine I et I' représenté sur la Figure I-12. La contribution de l'interaction collective $\text{Im}[-1/\varepsilon(q, \omega)]_p$ est obtenue à partir de l'expression (III-6) par l'intégration sur la ligne plasmon telle que présentée dans la section I.2.3.2.1.3 et représentée sur la Figure I-15. Notons tout de même que l'approche simple que nous avons utilisée pour traiter le plasmon de surface dans le cas de l'aluminium peut être transposée à l'argent. Des travaux comme ceux de Ding et co. [DIN-02] sur l'excitation du plasmon de surface de l'Ag sont à considérer pour parvenir à un bon paramétrage de notre modèle d'interaction électron-plasmon de surface.

Bibliographie de la conclusion générale et perspectives

- [BER-64] C.N. Berglund, W.E. Spicer, « *Photoemission Studies of Copper and Silver: Experiment* », Phys. Rev., **136**, (1964), pp.A-1144.
- [BRO-69] I.M. Bronshtein, B.S. Fraiman, « *Secondary electron emission* » (en russe), Ed. Nauka, Moscow, (1969).
- [CRA-61] A.P. Cracknell, « *Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwis ...* », in K.H. Hellwege (Ed), Neue Serie, **13**, Springer-Verlag, Berlin, (1961).
- [DIN-02] Z.J. Ding, H.M. Li, Q.R. Pu, Z.M. Zhang, « *Reflection energy loss of surface plasmon excitation of Ag: Monte Carlo Study* », Phys. Rev. B, **66**, (2002), pp.085411-1.
- [EHR-62] H. Ehrenreich, H.R. Philipp, « *Optical properties of Ag and Cu* », Phys. Rev., **182**, (1962), pp.1622.
- [EHR-63] H. Ehrenreich, H. R. Philipp, D. J. Olechna, « *Optical properties and Fermi surface of Nickel* », Phys. Rev., **131**, (1963), pp. 2469.
- [KIT-76] C. Kittel, « *Introduction to solid state physics* », John Wiley and Sons, New-York (1976).
- [KUH-99] J.Ch. Kuhr, H.J. Fitting, « *Monte Carlo of electron emission from solids* », J. Electr. Spect. And Rel. Phenom., **105**, (1999), pp.257.
J.Ch. Kuhr, H.J. Fitting, « *Monte Carlo of low energy electron scattering in solids* », Phys. Stat. Sol. (a), **172**, (1999), pp.433.
- [LAN-81] Landolt-Börnstein, « *Metals : Phonon and electron states, Fermi surfaces* » Vol.III/ 13c, (1981).
- [LEV-03] A.F.J. Levi, « *Applied Quantum Mechanics* », Cambridge University Press, (2003), pp.168.
- [PEN-86] D.R. Penn, « *Electron mean-free-path calculations using a model dielectric function* », Phys. Rev. B, **35**, (1986), pp.482.

ANNEXES

Annexes

Annexe A. : Détermination du libre parcours par échantillonnage direct

Le libre parcours moyen, λ , a été défini dans la section I.2.1.2 à partir de la probabilité $P(x)$ pour qu'un électron du faisceau subisse une interaction entre x et $x + dx$ définie par l'expression suivante :

$$P(x) = \sigma \cdot n \cdot \exp(-\sigma \cdot N \cdot x). \quad (\text{A-1})$$

Avec σ et N qui sont respectivement la section efficace d'interaction et le nombre de centres diffuseurs par unité de volume. Cette expression est intégrable et inversible, nous pouvons échantillonner directement le libre parcours, l , à partir de la probabilité $P(x)$ telle que décrite dans la section II.2.1.2.1 :

$$\frac{\int_0^l P(x) \cdot dx}{\int_0^\infty P(x) \cdot dx} = R. \quad (\text{A-2})$$

Où R est uniformément réparti dans l'intervalle $]0,1]$. D'où en combinant (A-1) et (A-2) :

$$\frac{\int_0^l \exp(-\sigma \cdot N \cdot x) \cdot dx}{\int_0^\infty \exp(-\sigma \cdot N \cdot x) \cdot dx} = R. \quad (\text{A-3})$$

Puisque $\int \exp(-\sigma \cdot N \cdot x) \cdot dx = -\exp(-\sigma \cdot N \cdot x)/(\sigma \cdot N)$, l'expression (A-3) devient :

$$\exp(-\sigma \cdot N \cdot l) = 1 - R. \quad (\text{A-4})$$

Vu que R est uniformément distribué entre 0 et 1, R et $1-R$ sont équivalents. L'inversion l'expression (A-4) donne :

$$l = -\frac{1}{\sigma \cdot N} \cdot \log(R). \quad (\text{A-5})$$

Or $\lambda = 1/(\sigma \cdot N)$, l'expression d'échantillonnage du libre parcours l est alors donnée par l'expression suivante :

$$l = -\lambda \cdot \log(R). \quad (\text{A-6})$$

Annexe B. : Interpolation linéaire

Pour traiter l'interaction élastique, nous utilisons une base de données issue du logiciel ELSEPA. Ces bases se présentent sous la forme de tableaux de valeurs à simple ou double entrée. Le caractère discret des valeurs tabulées nous oblige à effectuer des interpolations afin d'obtenir les données nécessaires au traitement de l'interaction élastique au cours de la simulation.

La Figure B-1 illustre la procédure suivie pour effectuer l'interpolation. Deux interpolations différentes ont été effectuées pour déterminer la section efficace nécessaire au calcul du libre parcours moyen et de l'angle polaire de déviation θ que subit l'électron incident.

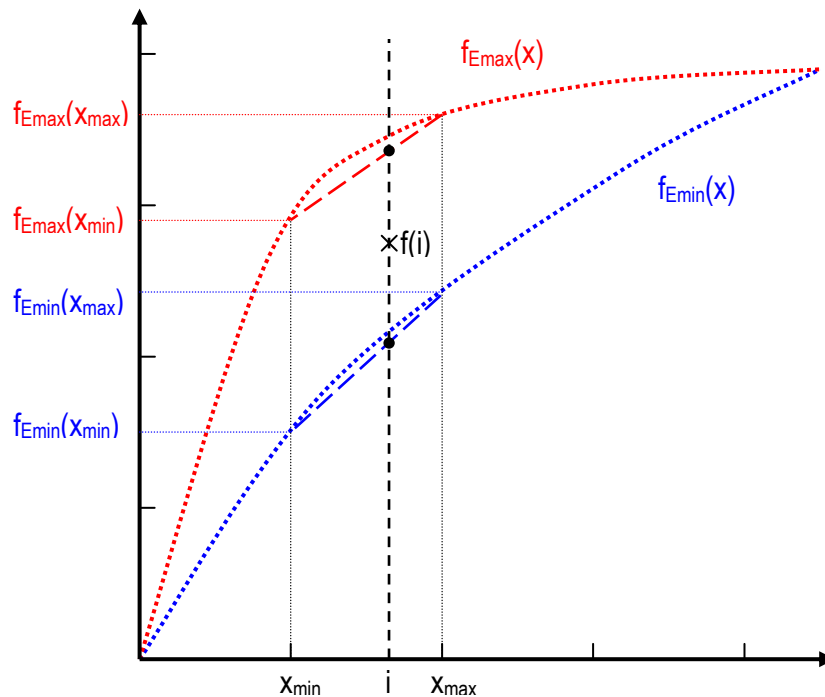


Figure B-1 : Interpolation linéaire d'une valeur $f(i)$ pour $x_{\min} < i < x_{\max}$

La section efficace σ de l'interaction est obtenue à partir d'un tableau qui donne la valeur de σ en fonction de l'énergie de l'électron incident. Ainsi pour une énergie donnée, E_0 , de l'électron incident on a :

$$\sigma(E_0) = \sigma(E_{\min}) + \frac{(E_0 - E_{\min}) \cdot (\sigma(E_{\max}) - \sigma(E_{\min}))}{E_{\max} - E_{\min}}. \quad (\text{B-1})$$

où E_{\min} et E_{\max} sont les énergies du tableau qui encadrent E_0 et $\sigma(E_{\min})$ et $\sigma(E_{\max})$ les valeurs des sections efficaces correspondantes.

L'angle polaire de déviation θ est obtenu à partir d'un tableau à double entrée qui donne l'angle polaire de déviation en fonction de l'énergie de l'électron incident et d'un nombre aléatoire équidistribué entre 0 et 1. Ainsi pour une énergie E_0 donnée et un nombre R équidistribué entre 0 et 1, l'angle polaire θ est obtenu à partir de l'expression suivante :

$$\theta = \theta_{E_{\min}} + \frac{(E_0 - E_{\min}) \cdot (\theta_{E_{\max}} - \theta_{E_{\min}})}{E_{\max} - E_{\min}}. \quad (\text{B-2})$$

Avec :

$$\theta_{E_{\min}} = \theta_{E_{\min}}(R_{\min}) + \frac{(R - R_{\min}) \cdot (\theta_{E_{\min}}(R_{\max}) - \theta_{E_{\min}}(R_{\min}))}{R_{\max} - R_{\min}}, \quad (\text{B-3})$$

et

$$\theta_{E_{\max}} = \theta_{E_{\max}}(R_{\min}) + \frac{(R - R_{\min}) \cdot (\theta_{E_{\max}}(R_{\max}) - \theta_{E_{\max}}(R_{\min}))}{R_{\max} - R_{\min}}, \quad (\text{B-4})$$

où R_{\min} et R_{\max} les valeurs du tableau encadrant R .

Annexe C. : Publication

Cette communication scientifique a été publiée le 21 février 2013 dans le numéro 12 du volume 46 du Journal of Physics D: Applied Physics.

The study of electron emission from aluminium in the very low primary energy range using Monte Carlo simulations

J Roupie^{1,3}, O Jbara², T Tondu¹, M Belhaj¹ and J Puech³

¹Onera - The French Aerospace Lab, 2 avenue Edouard Belin, 31055 Toulouse Cedex 4, France

²LISM: Laboratoire d'Ingénierie et Sciences des Matériaux, UFR Sciences Exactes et Naturelles B.P 1039, 51687 Reims Cedex 2, France

³CNES, 18 avenue Edouard Belin, 31401 Toulouse Cedex 9, France

E-mail: julien.roupie@onera.fr, Mohamed.Belhaj@onera.fr and omar.jbara@univ-reims.fr

Received 9 August 2012, in final form 7 January 2013.

Published 21 February 2013.

Abstract. The total electron emission yield (TEEY), at very low energy is investigated with a Monte Carlo (MC) technique and compared to experimental results. The important points of a MC tool for the simulation of electron emission are presented. The tool is based on a combination of properly selected models taking into account plasmon excitations at the surface and the effect of the crossing surface barrier potential. The reflectivity is calculated as a function of the primary energy using an analytical expression found in the literature. By comparing MC results to the measurements, a good correspondence between obtained curve shapes is observed. Irregularities in measured and simulated yields are identified and explained by considering plasmon excitations. This comparison allows, among other things, to remove the ambiguity on the variation of the yield obeying the change in reflectivity as a function of primary energy. Indeed, some results reported in literature claims that the TEEY coefficient approaches unity when the primary electron energy tends to zero. This occurs due to nearly total electron reflection from the surface, for electron energy less than an electron volt. In this paper, we summarize comprehensive studies rendering this claim inaccurate. Aluminium, a free-electron-like metal, will be considered here as a representative illustration.

1. Introduction

The study of secondary electron emission phenomenon (SEE) and electron backscattering under very low energy electron impact and the knowledge of the total electron emission yield (TEEY), defined as the ratio of the number of the emitted electron to that of the incident electrons, are of great importance in many branches of fundamental and applied science. The SEE phenomenon is widely employed in the scanning electron microscope imaging and particle detection in electron multiplier devices. Much attention has been also paid to this phenomenon in plasmas physics, space technologies and particle-accelerators. Indeed, low-energy SE and backscattered electrons (BE) issued from the walls of accelerator vacuum chambers may dramatically affect their performance [1]. For the plasma-wall interaction in a fusion reactor, SE emitted from the surface of the vessel containing the plasma governs the plasma stability to an important degree [2]. In the field of space technologies, we can mention the case of multipactor phenomena that may occur in Radio-Frequency (RF) components of satellites [3] and hall thrusters that require the use of materials that have low electron emission yields [4]. Progress in the fields addressed above is conditioned by an improved understanding of the electron emission mechanism, in the very low energy range. Unfortunately, electron emission is still far from being quantitatively understood, and experimental data for the TEEY are scarce and moreover exhibit a large scatter. The lack of quantitative understanding concerning electron emission in this range is partly due to the experimental difficulty associated with the investigation of very low energies. Indeed, the difficulty is due to the extreme sensitivity of electron trajectories to any electromagnetic disturbance (stray electric field or biasing effect). From the theoretical point of view, modelling secondary electron emission at few eV irradiations is complicated by the fact that electron-solids interaction laws used usually at high energy are of limited validity.

Our aim is to model, at low energy (< 25 eV), secondary electron emission (SEE) and backscattering from solid surfaces using MC technique, as done in the work of Palov [5] where the similar approach for the potential barrier was used. In this work, the same behavior of the TEEY as electron energy tends to 0 has been obtained. We start by describing the approach taken to implement our MC simulation tool and then we introduce a quantitative comparison between experimental yields obtained on aluminium [6] and corresponding simulations based on this tool. We show that the TEEY does not approach unity while the primary electron energy goes to zero and observe a particular behaviour for the TEEY that results in the presence of irregularities in its evolution as a function of primary beam energy. These irregularities are likely attributed to the occurrence of plasmon losses and thereafter their decay.

2. Monte Carlo Calculations

This study concentrates on MC modelling interaction of electrons at energies below 25 eV with solid surface. Main ideas of the MC simulation are briefly outlined here and we only describe the

extensions. The table 1 lists the different interactions processed and the associated models. Energy threshold for certain interactions is also listed.

The simulation assumes an isotropic, homogeneous medium where the path and energy loss of each electron are followed. The MC procedure we follow is a standard one. It's a simple diffusion procedure by electronic cascade, in which random numbers are used to determine the type of interaction, distance travelled between interactions, energy loss in an interaction, new direction (scattering angle) of the electron after interaction, and energy and direction vector of the created secondary electrons. The interaction selection is based on sampling of the interaction probability through mean free path of each interaction obtained with their total cross section. Interaction characteristics (scattering angle, energy transfer) are obtained by sampling of the differential cross section of the considered interaction. Energy and wave vector conservation are also respected for all interactions. After their creation the secondary electrons are usually treated as scattered primary electrons. The moved electrons undergo similar collision events, thus initiating the electron cascade process. The cascade process continues until electrons pass through the surface, or until the energies of all electrons fall below the surface potential barrier $U_0 = E_F + \Phi$ with E_F the Fermi energy and Φ the work function of the metal. From a point of view of interaction, the excited electrons travel towards the solid surface in the same way, as primary electrons. The schematic flow chart of the algorithm is given in figure 1.

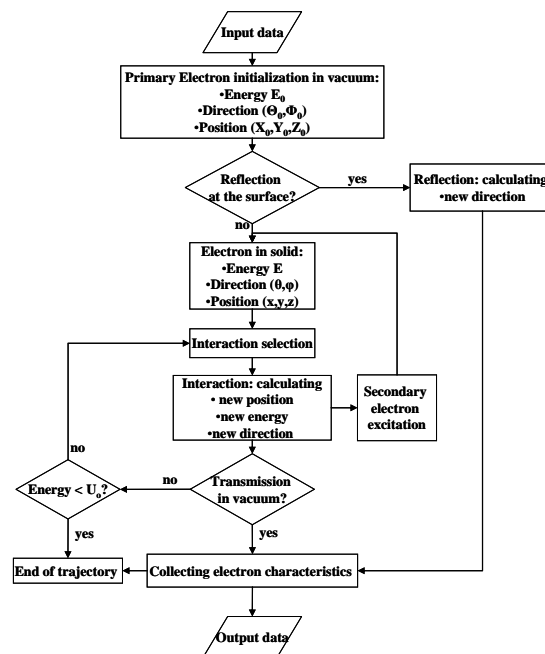


Figure 1. Schematic flow chart of the algorithm for MC program.

Three basic types of physical processes are considered: elastic scattering, inelastic scattering and boundary crossing responsible for interactions near interfaces between two materials. Our approach is

mainly build on existing descriptions of the processes involved that can be found in the literature, but we have added some modifications as well. These changes are to choose the most appropriate models and to use the best databases in the literature. Extend of the MC type simulation tool down to very low energies requires the determination of cross-sections very carefully. For instance, elastic scattering are calculated by using the recently developed code ELSEPA (Elastic Scattering of Electrons and Positrons by Atoms) for kinetic energies of the projectile from 10 eV to 50 eV in the solid [7]. The numerical algorithms implemented in this code allow relativistic partial-wave calculations to be performed for projectiles with kinetic energies up to ~ 5 MeV and for a variety of interaction potentials [7]. For low and intermediate energies, from about tens eV up to a few hundred keV, the code can perform partial-wave calculations for a semi empirical optical-model potential, with an imaginary absorptive part, that yields results in close agreement with available experimental data for electron elastic scattering in gases. This optical-model potential is given by [7]:

$$V(r) = V_{st}(r) + V_{ex}(r) + V_{cp}(r) - iW_{abs}(r) \quad (1)$$

where $V_{st}(r)$ is the electrostatic interaction potential, $V_{ex}(r)$ is the exchange potential (used only for electron scattering), $V_{cp}(r)$ is the correlation–polarization potential (needed only for slow projectiles, with E less than about 10 keV), and $W_{abs}(r)$ is the magnitude of the imaginary absorption potential. Notice that, owing to the assumed spherical symmetry of the atomic charge distribution, the potential (1) and all its components are also spherical. Then, elastic-scattering properties can be calculated by using conventional partial-wave methods.

For inelastic scattering, each interaction is treated separately. We employ the Chung and Everhart formalism [8] to the calculation of the differential mean free path for interaction with volume plasmon and hence, of the mean free path and the stopping power. In this model secondary electrons result from the decay of volume plasmons in one electron-hole pair. There are different works (Bocan [9] and references there in) that have suggested and studied possible plasmon decay mechanisms. They found that the most important ones were the excitation of a Bloch electron (which undergoes an interband transition) and the excitation of a pair of free interacting electrons. There is also the possibility of a third mechanism by which the plasmon transferred its energy to a single electron and a phonon (phonon-assisted electron excitation). However, Werner et al. [10-11], that investigates the relationship between plasmon decay and emission of secondary electrons using coincidence method, demonstrates that plasmons excited by electron energy losses decay predominantly via creation of single-electron hole pairs that act as a source for SE spectrum. Indeed in their work, the energy balance and the sharp distribution of coincidence electron spectra suggest that the plasmon excited by the primary electron decays in a single-electron-hole pair. Other processes that involve more than one electron or a phonon should be less favourable, besides, they should lead to a continuous distribution that is not observed in the spectra. The incident electron excites a bulk plasmon of energy $\hbar\omega_v(k)$, with \mathbf{k} the wave-vector of transfer. Through the volume plasmon decay, the excited electron receives all the

bulk plasmon energy. Excited electron energy after interaction is then $E_i + \hbar\omega_v(k)$ where E_i is its initial energy in the conduction band. Following Ganachaud and Cailler work [12], the energy threshold for the bulk plasmon interaction is defined as $E_T^{pv} = E_F + \hbar\omega_v(k_c)$, where $\omega_v(k_c)$ is the highest frequency for volume plasmon production and k_c the cut-off wave-vector for this plasmon.

The formalism of Ashley and Richie [13] was applied for interaction with electrons. In the studied energy range, only conduction electrons are concerned. The electron-electron interaction excites one electron, the final energy of which is $E_i + \Delta E$, where ΔE is the energy transferred to the electron of the solid. E_i is the initial energy of this electron, drawn in the density of states of free electrons in the conduction band. Concerning the surface plasmon decay, the same procedure as for the bulk plasmon decay was used.

Owing to the fact that the surface collective excitations could only take place in a surface domain of a given extension (named in this paper effective surface region) and near the surface the bulk plasmon creation rate vanishes, the Chung and Everhart model [14], considering a constant cross section of plasmon volume interaction with material depth, must be improved. A simplistic model describing depth dependent losses [15,16] of surface collective excitations is then proposed (see figure 2). The coupling between surface and volume modes that are orthogonal [17,18], is taken into account. This leads to the reduction in the probability of occurrence of bulk plasmons, known as Begrenzungs effect [19]. Ambiguities concerning this effect and also the thickness of the effective surface region were raised by several authors and more particularly by Pauly and Tougaard in their work [20]. In the present work, to account for the Begrenzung effect, the depth dependence have been introduced in the cross section of the interaction with volume plasmon, as in Wang et al. work [21], as follow: $\sigma_{pv}(z) = \sigma_{pv} \cdot [1 - \exp(-z/z_0)]$ with z the depth in the target, z_0 the thickness of the effective surface region and σ_{pv} the cross section of the interaction with volume plasmon obtained with Chung and Everhart model [8]. Regarding the surface plasmon interaction our simplistic model is based on three assumptions: (a) the interaction is neglected at the surface vicinity from the vacuum side; (b) the interaction probability decay as a function of depth in the target can be approximated by an exponential law with a characteristic depth z_0 ; (c) the interaction probability per unit of time at a given depth is not energy dependant. This implies the following relation:

$$\frac{dp}{dt} = \frac{A}{\sqrt{E}} \cdot \exp\left(-\frac{z}{z_0}\right) \quad (2)$$

Then we deduce the probability of surface plasmon losses:

$$P = 1 - \exp\left(\frac{A}{\sqrt{E}} \cdot \frac{z_0}{\cos\alpha} \cdot e^{z/z_0} \cdot \left(1 - \exp\left(-\frac{L \cdot \cos\alpha}{z_0}\right)\right)\right) \quad (3)$$

A is a constant, E the electron energy and α the electron angle relative to the surface normal. z is the electron depth in the target, and L is a decay length. Expression (3) is used to determine the statistic

free path before interaction with surface plasmon in MC simulation. The effective surface region z_0 is described by the expression $z_0 = v/2\omega_s$ as proposed by Vicanek [22]. A is an adjustable parameter that is determined using REELS (Reflection Energy-Loss Spectroscopy) experiments [23,24]. The goal is to find the parameter value that most closely matches the experimental data. The same expression as in volume plasmon model is used for the energy threshold for surface plasmon excitation at $E_T^{PS} = E_F + \hbar\omega_s$.

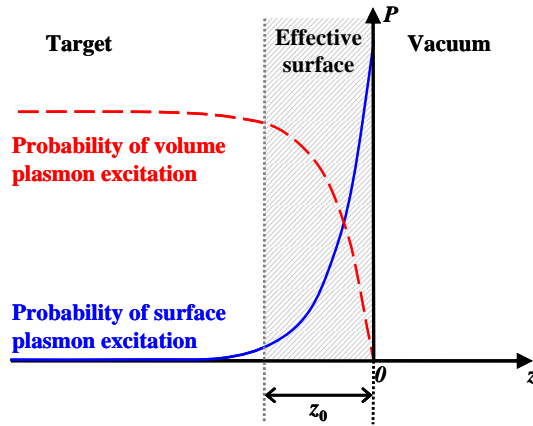


Figure 2. Excitation probability as function of depth of volume plasmon (dashed line) and surface plasmon (full line). The shaded area represents the effective surface.

One of the main other modifications we carried out for the existing models concerns the boundary crossing of the surface to describe what happens when an electron reaches a boundary between a material and vacuum. Indeed, instead of using the simplest model of a square barrier as in some other MC simulations [25,26], we adopt a modified image barrier models [27,28]. In this model the constant electronic potential U_0 in the interior of the metal is defined as the sum of the kinetic energy at the Fermi level E_F and the work function Φ of the material: $U_0 = E_F + \Phi$. Of particular interest for the present work was the MacColl calculation [29] of the surface-barrier reflectivity for a one dimensional potential of exponential form with a constant value U_0 as a height barrier. This potential has an analytic solution such as [30]:

$$R = \frac{\sinh^2 \pi a(\chi - k)}{\sinh^2 \pi a(\chi + k)}, \quad (4)$$

with $\chi = \sqrt{\frac{2m(E + U_0)}{\hbar^2}}$, $k = \sqrt{\frac{2mE}{\hbar^2}}$ and E the incident electron energy. At very low energy (<10 eV), the use of an image barrier model induces a decrease of the reflectivity compared with the generally used square barrier model as shown in figure 3 for $U_0 = 10$ eV. In the insert, exponential barrier is compared to square one. Two cases must be considered depending on whether the incident

electron is in a vacuum or in the material. Outside the material, the electron reflection will be more pronounced when the energy of incident electron is small compared to the barrier potential energy. Inside the material, when the electron is not transmitted, it is assumed to be either absorbed or specularly reflected especially when an electron approaches a surface at a very low grazing angle. To overcome the surface barrier and escape, the basic condition $E \cdot \cos^2\theta \geq U_0$ must be fulfilled by the electron, where θ is its flight angle with respect to the surface normal.

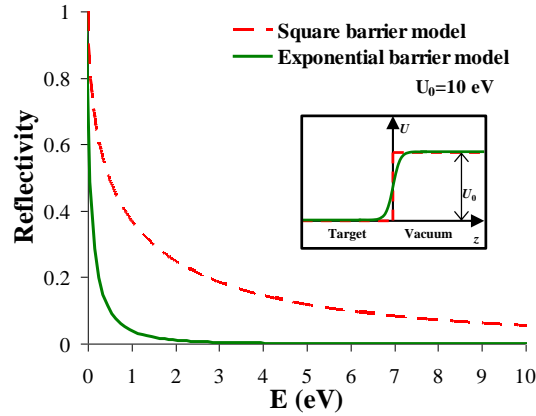


Figure 3. Comparison of reflectivity calculated with a square barrier model (dashed line) and an exponential barrier model (solid line) for a surface potential $U_0=10$ eV. Insert: representation of square an exponential potential.

Table 1. Summary of main assumptions in the MC program (reference are given in the text).

Interaction	Model	Energy threshold
Elastic	Mott – ELSEPA data [7]	*
Conduction electrons	Ritchie and Ashley [13]	*
Volume plasmon	Chung and Everhart [8]	$E_F + \hbar\omega_v(k_c)$
Surface plasmon	Simplistic	$E_F + \hbar\omega_s$
Surface	Quantum reflection: Image barrier [29]	U_0

* Elastic interaction and interaction with conduction electrons have energy thresholds; they are lower than U_0 , so they are not used in the MC program.

3. Results and discussion

3.1. Energy distribution:

After generation, straggling to surface and emission into the vacuum emitted electrons appear with an energy distribution presented in figure 4, 5 and 6. Distribution are calculated for three primary energies (5, 15, 25 eV). It is clear that as the primary energy gets lower, the ratio

between reflected and secondary electrons increases, until reflection becomes dominant for primary energies below about 15 eV. The positions of the structures which appear in the true secondary peak of Al (figure 5 and 6) are related to primary electrons interaction with plasmons. These structures are present only in backscattered electrons population and have the typical threshold of surface or bulk plasmon losses of respectively 10 and 15 eV.

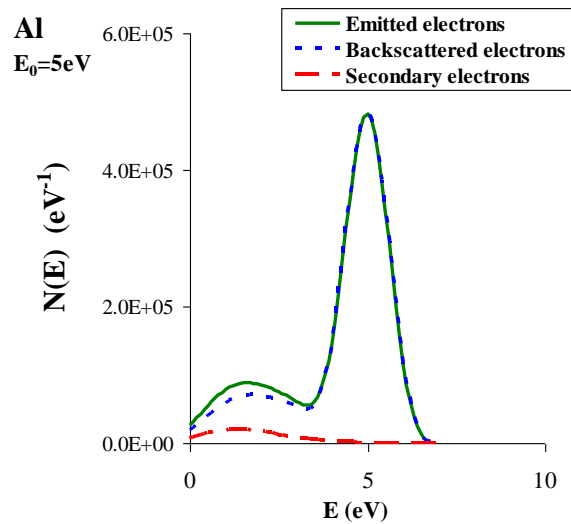


Figure 4. Energy distribution of emitted electrons at 5 eV of primary energy

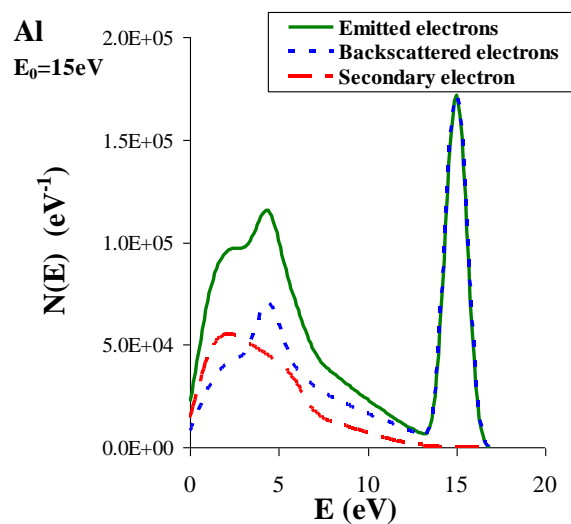


Figure 5. Energy distribution of emitted electrons at 15 eV of primary energy

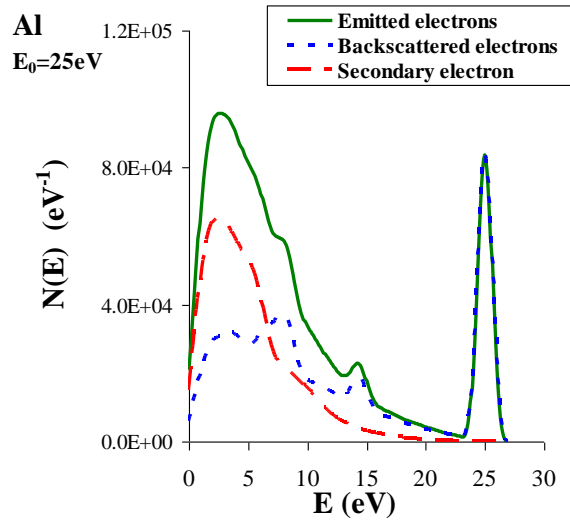


Figure 6. Energy distribution of emitted electrons at 25 eV of primary energy

3.2. Total electron emission yield

In the investigated energy range, conventional definitions for electron emission characteristics (secondary electron yield (SEY) and backscattering electron yield (BEY)) lost their meaning for experimental data. Therefore, comparisons between simulated and measured results are made using the so called TEEY. This total electron emission yield is obtained by integration of the energy distribution, normalized by the incident beam current, for the respective energy regions when dealing with experiments while we proceed simply by counting the electrons when the MC simulations are developed. Two energy references we will use for discussing our finds are those corresponding to the vacuum level and the bottom of the conduction band. The vacuum level is used to describe the energy of primary and emitted electrons while the bottom of conduction band is used to describe the energy of electrons inside the metal and specific energy of interactions.

We compare the MC simulated TEEY of aluminium with an experimental TEEY obtained by Bronshtein and Fraiman [7] and recently reported by Andronov et al. [31]. These yields are shown in figure 7 for primary electron energies ranging from 1 to 25 eV. MC simulations are carried out taking into account or not the collective interactions. For curve (a) we assume the absence of these interactions and we restricted to individual interactions (electron-electron scattering). For curve (b) only interactions with volume plasmons were added. At last, for curve (c) both surface and volume interactions are added. We note a good overall agreement between theoretical (curve c) and experimental results.

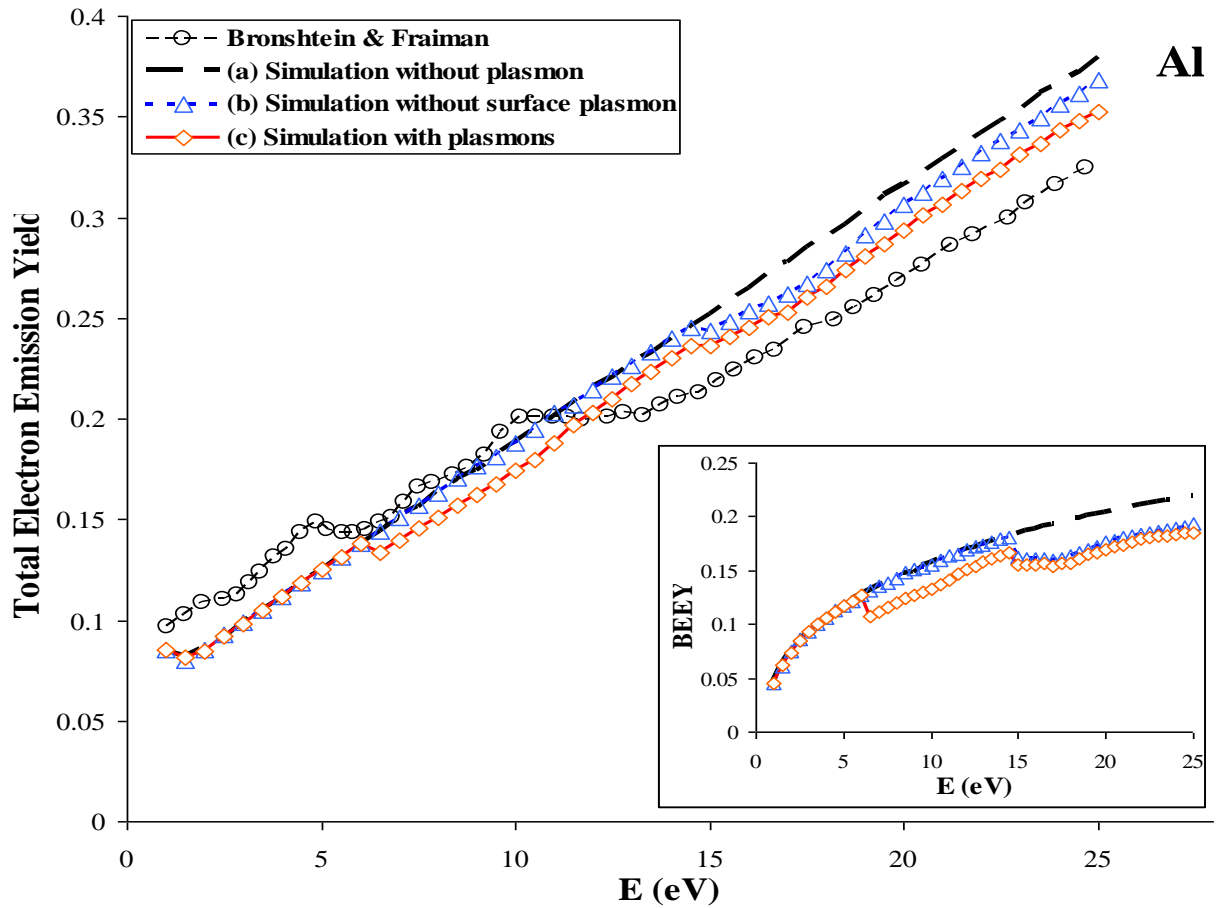


Figure 7. Total Electron Emission Yield σ simulated in three cases: (a) without plasmon, (b) with volume plasmons but no surface plasmon, (c) with volume and surface plasmons; compared to experimental σ of Bronshtein and Fraiman [6]. The insert represent the Backscattered Electron Emission Yield η calculated with same simulation cases as TEEY.

Now look at the shape of each TEEY curves and the magnitude order of values obtained for electron emission yield:

When only inelastic interactions with conduction electrons, which can occur for any impinging energy in the studied range, are considered (curve a), the elastic scattering probability is higher than inelastic scattering one, especially at few eV (see figure 8). Indeed, for energies close to U_0 , the electron statistically undergoes tens of elastic interactions for one inelastic interaction. As a consequence, many primary electrons are scattered to target surface before losing energy. However, the simulation shows a total yield that tends to low value (see figure 7). This trend is due to the fact that when the electron passing through the surface the condition based on the normal component of its energy has to be fulfilled. In other words, there is a limit angle θ_{lim} above which the electron is reflected by the surface:

$$\theta_{\text{lim}} = \arcsin\left(\sqrt{\frac{E - U_0}{E}}\right), \quad (4)$$

with E the energy of the electron in the target. This limit angle becomes very low as electron energy is close to U_0 (see figure 9). In order to fulfil this condition, the electron needs a near normal incidence. Indeed, a primary electron with an energy difference of one eV with respect to U_0 has a limit angle of attack of 14.1° with respect to surface normal. So, electrons of one eV inside the target are reflected many times at the interface before fulfilling the attack angle condition. These reflections cause the lengthening of their path and hence increase the probability to undergo an inelastic interaction, and the trapping of electron in the target [32,33]. A better understanding of these considerations requires additional calculations such as the elastic escape probability as function of path length in aluminium for electron of 1 to 5 eV (see figure 10). We see that this probability is low when the path length becomes comparable to the inelastic mean free path (IMFP), around 8% for an electron of 2 eV. In other words for an electron of very low energy, the probability to suffer an inelastic collision is significant since his path length in the material is important. In this energy range, with only one inelastic interaction the electron energy can be lowered to energies close or below the surface potential barrier U_0 . Therefore, the probability of emission is even lower leading to an emission yield that tends to decrease as the primary electron energy decreases.

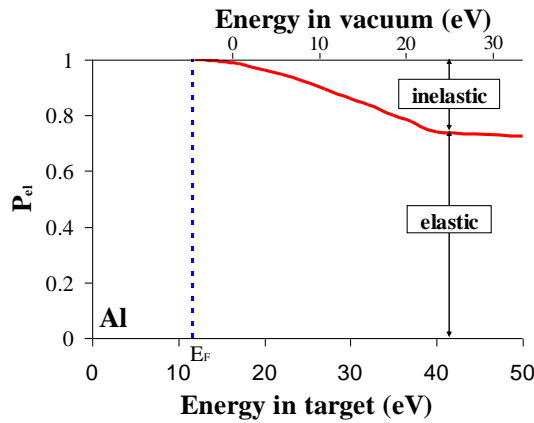


Figure 8. Probabilities of elastic and inelastic scattering as function of incident electron energy in Al.

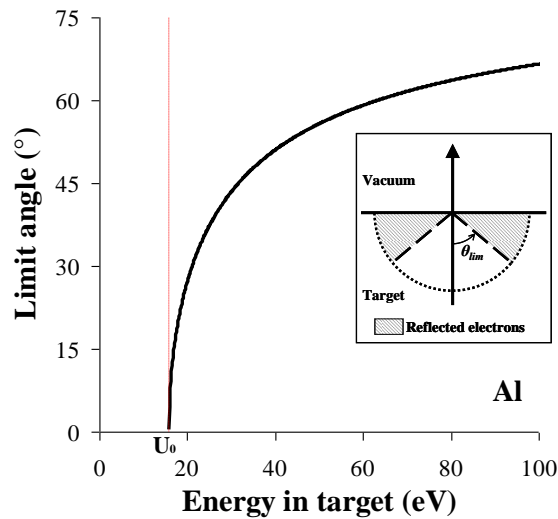


Figure 9. Limit angle of attack of the surface as function of electron energy in Al target. The insert illustrate the escape cone that allows electrons to be transmitted.

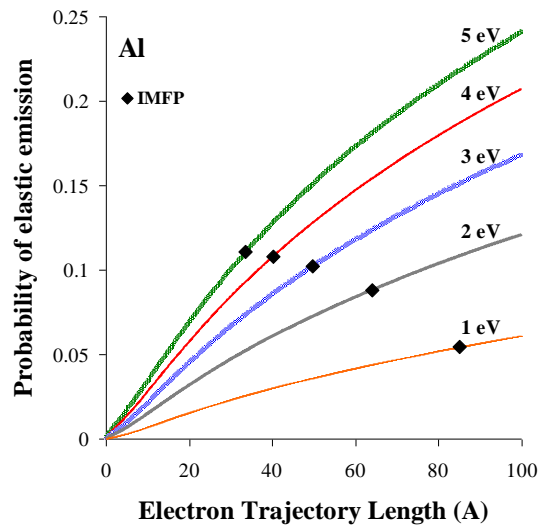


Figure 10. Calculated probability of elastic escape as function of the travelled path length of the electron in Aluminium target for primary energy of 1 to 5 eV in the vacuum. Square dots represent the Inelastic Mean Free Path (IMFP) at corresponding energy.

Another reflection to consider is that of electrons moving toward the vacuum to surface. In some experiments [34] the coefficient of reflected electrons is presented as responsible for the increase to unity of the TEEY when primary energy tends to zero. In our simulation, the effect of surface barrier potential which causes the reflection of incident electrons is taken into account using expression (3). We obtain a reflected electrons coefficient R , as represented in figure 5, which decreases as a function of primary energy. R remains low even at 1 eV ($R \approx 0.04$). The magnitude order of the reflectivity

which a priori may seem absurd, at energies as low, is in perfect agreement with experimental results published a few decades by Heil and Hollweg [35]. With the reflection of primary electron by the surface potential barrier, our simulation doesn't show any increase to unity close to zero eV. In fact, our simulation tends to very low TEEY and it is consistent with Bronshtein and Fraiman data.

When volume plasmon interactions are taken into account, as shown by the curve b in figure 7, the yield increases linearly up to 14 eV where it presents a slight shoulder after which it continues again a linear increase. This shoulder is attributed to the first electron than undergoes a volume plasmon interaction which lowered the energy of the incident electron very close to U_0 . As seen before (cf. figure 10), this implies a very low escape probability for this electron. Since a part of primary electrons is strongly decelerated by this interaction, a decrease of the backscattered electron emission is observed (see insert of figure 7). At the same time, conduction electrons that are excited by decay of volume plasmons have energies sufficient to pass through the surface leading to an increase of the secondary electron emission. The overall result is a stabilization of the TEEY that results in a short plateau from 14 to 16 eV, similar to the experimental one observed at 10 eV. With respect to the simulation without plasmon (curve a), the effect of the volume plasmon is to decrease the TEEY in the considered energy range.

When surface plasmons are taken into account in simulation (curve c), an irregularity appears at energy position 6 eV. This position corresponds to first electrons that can interact with surface plasmons. This interaction lowered the energy of these electrons below U_0 . Their escape probability drop to zero after this interaction. It follows a sharp decrease of the backscattered electron emission (see also insert of figure 7). Electrons excited by the decay of surface plasmons have energies higher of few eV than U_0 . Their escape probability is low. Although, an increase of the secondary electron emission occurs, it is not sufficient to compensate for the decrease of the backscattered electron emission, because no primary electron that suffered plasmon excitation can escape the target and the corresponding electrons (of lower energy) have lower escape probability than the primary electron before interaction. As a result, the overall effect is a decrease of the TEEY. This behaviour is comparable to the TEEY irregularity measured around 5 eV.

On the basis of the comparison between experimental and simulation results, we attribute the experimental TEEY local variations at 5 eV and 10 eV to respectively surface and volume plasmon thresholds. However, in this case the plasmon thresholds used in our simulations, $E_F + \hbar\omega_s$ and $E_F + \hbar\omega_v(k_c)$, for respectively surface and volume plasmons would be overestimated. If assuming a threshold of $E_F + \hbar\omega_v(0)$ for the excitation of a volume plasmon, this would lead to an overestimation of only 1 eV as in the case of the surface plasmon excitation. In the energy threshold expression employed in our simulation for the volume plasmon excitation, the cut-off wave-vector k_c is used to calculate the plasmon energy as in Andersson work on energy threshold [36]. The plasmon energy is calculated by using the classical dispersion relation obtained by Pines [37],

$$\omega_v^2(k) = \omega_v^2(0) + \frac{\hbar^2}{m^2} \cdot \left(\frac{k^4}{4} + \frac{3 \cdot k^2 \cdot k_c^2}{5} \right), \quad (5)$$

with $\omega_v(0)$ the plasma frequency and k the momentum transferred to the volume plasmon. As the cut-off wave-vector is an upper limit of existence for the volume plasmon, a volume plasmon with a momentum k_c is the most energetic volume plasmon excited by an electron. The choice of this volume plasmon energy for the energy threshold could explain the overestimation.

We calculate then the energy threshold in the case of the lower energy allowed for the volume plasmon excited by an electron. In Chung & Everhart model [8], the wave-vector k of the volume plasmon excited by an electron is defined as:

$$k^2 \cong k_{elec}^2 \cdot (\theta_E^2 + \theta^2), \quad (6)$$

where θ is the scattering angle of the incident electron and $\theta_E = \hbar\omega_v/2E$ with E the energy of the incident electron. This expression is based on the assumption that the transferred energy is small compared to the incident electron energy and thus θ is small. If we remove this assumption, expression (6) become:

$$k^2 = 2 \cdot k_{elec}^2 \cdot \left(1 - \theta_E - \sqrt{1 - 2\theta_E} \cdot \cos\theta \right), \quad (7)$$

Following expression (7), there is a lower limit k_{min} of k when $\theta = 0$. Using expression (5) and (7) we calculate the minimum energy for volume plasmon as a function of incident electron energy (see Figure 11). According to the Pauli principle, the incident electron remains outside the Fermi sea after the interaction. Its momentum loss cannot exceed k_{lim} such that

$$E = E_T = \hbar\omega_v(k_{lim}) + E_F, \quad (8)$$

where E_F is the Fermi energy. Our calculations locate this value at 28 eV (see Figure 11). Assuming an identical behaviour of the electron-volume plasmon interaction, this energy threshold would imply an offset of the simulated variation from 14 eV to 12 eV. Such energy threshold would reduce the overestimation to 2 eV compare to experimental TEEY variation. An improvement could be made regarding the dispersion relation (5). This expression neglects effects of exchange, correlations and band structures. These effects tend to lower the plasmon frequency [38-39]. The choice of a more suitable dispersion relation of aluminium plasmons energy would be another step in order to reduce the slight difference between the position of local variations in experimental and theoretical yield [40].

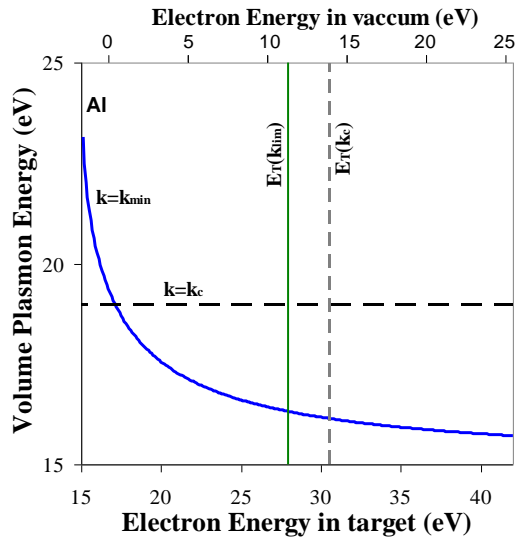


Figure 11. Calculated volume plasmon energy and energy threshold with $k = k_{min}$ (full curves) and with $k = k_c$ (dashed curves)

4. Conclusion

MC simulations of electron emission at low energy have been achieved very successfully for a nearly free electron metals. It could well explain the experimental results available in literature. Local variations at 5 eV and 10 eV of the experimental yield are explained by respectively surface and volume plasmon thresholds. The shift of 4 eV between experiment and simulation on the variation attribute to volume plasmon is explained by an overestimation of the volume plasmon threshold. A better choice of minimum wave-vector k reduced the slight difference to 2 eV. An even better agreement would be obtained with a more realistic dispersion relation. The good agreement near zero ends the ambiguities concerning the emission yield that tends to 1 as the energy tends to zero. A few eV, the drop of the electron emission is explained by the limit angle of surface attack and the competition between elastic escape probability and inelastic interaction probability. The exponential barrier model of the quantum reflection probability used in our simulation does not show any noticeable increase until few tenths eV, contrary to the rough square barrier model.

Acknowledgments

The authors would like to thank CNES and ONERA and their financial supports.

References

- [1] Izawa M, Sato Y, and Toyomasu T 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 5044
- [2] Fubiani G, de Esch H P L, Simonin A and Hemsworth R S 2008 *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **11** 014202

- [3] Mostajeran M and Lamehi Racht M 2010 Importance of number of gap crossings on secondary emission in the simulation of two-sided multipactor *Journal of Instrumentation* **5** 8003.
- [4] Tondu T, Belhaj M, and Inguibert V 2011 Electron-emission yield under electron impact of ceramics used as channel materials in hall-effect thrusters *Journal of applied physics* **110** 093301
- [5] Palov A 1996 On simulation of secondary electron emission from simple metals *Tech. Phys. Letters* (in Russian) **22** 49.
- [6] Bronshtein M and Fraiman B S 1969 *Secondary electron emission* (Moscow) (Russia: Atomizdat) p 60
- [7] Salvat F, Jablonski A and Powell C J 2005 ELSEPA-Dirac partial-wave calculation of elastic scattering of electrons and positrons by atoms, positive ions and molecules *Comp. Phys. Comm.* **165** 157
- [8] Chung M S and Everhart T E 1977 Role of plasmon decay in secondary electron emission in the nearly-free-electron metals. Application to Aluminium *Phys. Rev.* **10** (1977) 4699
- [9] Bocan G A and Miraglia J E 2005 Plasmon decay mechanisms in electron-aluminum collisions *Phys. Rev. A* **71** 024901
- [10] Werner W S M, Salvat-Pujol F, Smekal W, Khalid R, Aumayr F, Störi H, Ruocco A and Stefani G 2011 Contribution of surface plasmon decay to secondary electron emission from an Al surface
- [11] Werner W S M, Ruocco A, Offi F, Lacobucci S, Sekal W, Winter H P and Stefani G 2008 Role of surface plasmon decay in secondary electron emission *Phys. Rev. B* **78** 233403
- [12] Ganachaud J P and Cailler M 1979 A Monte Carlo calculation of the secondary electron emission of normal metals *Surf. Sci.* **83** 498
- [13] Ritchie R H and Ashley J C 1965 The interaction of hot electrons with free electron gas *J. Phys. Chem. Solids* **26** 1689
- [14] Yubero F and Tougaard S 1992 Model for quantitative analysis of reflection-electron-energy-loss spectra *Phys. Rev. B* **46** 2486
- [15] Tanuma S, Ichimura S and Goto K 2000 Estimation of surface excitation correction factor for 200–5000 eV in Ni from absolute elastic scattering electron spectroscopy *Surf. Interface Anal.* **30** 212
- [16] Zemek J, Jiricek P, Lesiak B and Jablonski A 2004 Surface excitations in electron backscattering from silicon surfaces *Surf. Sci.* **562** 92.
- [17] Ritchie R H 1975 Plasmon Losses by Fast Electrons in Thin Films *Phys. Rev.* **106** 874
- [18] Stern E A and Ferrell R A 1960 Surface Plasmon of a degenerate electron gas *Phys. Rev.* **120** 130
- [19] Werner W S M, Eisenmenger-Sittner C, Zemek J and Jiricek P 2003 Scattering angle dependence of the surface excitation probability in reflection electron energy loss spectra *Phys. Rev. B.* **67** 155412
- [20] Pauly N and Tougaard S 2009 Determination of the effective surface region thickness and of Begrenzungs effect *Surf. Sci.* **603** 2158
- [21] Wang J P, Tung C J, Chen Y F and Kwei C M 1996 The surface effect on Au 4f X-ray photoelectron spectra *Nucl. Instrum. Meth. B* **108** 331

- [22] Vicanek M 1999 Electron transport processes in reflection electron energy loss spectroscopy (REELS) and X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) *Surf. Sci.* **440** 1
- [23] Tougaard S and Chorkendorff 1987 I Differential inelastic electron scattering cross sections from experimental reflection electron-energy-loss spectra: Application to background removal in electron spectroscopy *Phys. Rev. B* **35** 6570
- [24] Riccardi P, Pisarra M, Cupolillo A, Commisso M, Sindona A, Baragiola R A and Dukes C A 2010 Secondary electron emission spectra from clean and cesiated Al surfaces: the role of plasmon decay and data analysis for applications *J. Phys.: Condens. Matter* **22** 305004
- [25] Kuhr J Ch and Fitting H-J 1999 Monte Carlo simulation of electron emission from solids *J. Electr. Spect. Relat. Phenom* **105** 257
- [26] Ding Z J, Tang XD and Shimizu R 2001 Monte Carlo study of secondary electron emission *J. Appl. Phys.* **89** 718
- [27] Cutler P H and Davis J C 1964 Electrons through surface potential barriers *Surf. Sci.* **1** 194
- [28] Jones R O, Jennings P J and Jepsen O 1984 Surface barrier in metals: A new model with application to W(001) *Phys. Rev. B* **29** 6474
- [29] McColl L A 1939 *Phys. Rev.* **56** 699
- [30] Goldman I I and Krinchenkov V D 1961 *Problems in Quantum Mechanics* (Addison-Wesley, Reading, Mass.) p 11
- [31] Andronov A N, Smirnov A S, Kaganovich I D, Startsev E A, Raitses Y, Davidson R C, Demidov V 2011 Secondary Electron Emission in the Limit of Low Energy and its Effect on High Energy Physics Accelerators American Physical Society, 53rd Annual Meeting of the APS Division of Plasma Physics.
- [32] Ganachaud J P and Amokran A 1995 *Surf. Sci.* **334** 329
- [33] Nishimura K, Kawata J and Ohya K 2000 Comparative study of secondary electron emission from solids under positron and electron impacts *Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Res. B* **164-165** 903
- [34] Cimino R 2006 Surface related properties as an essential ingredient to e-cloud simulations *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* **561** 272
- [35] Heil H and Hollweg J V 1967 Electron reflexion at zero energy. I. Experiments *Phys. Rev.* **164** 881
- [36] Andersson S 1972 Plasmon thresholds in the secondary electron yield – I. Experiment”, *Solid State Commun.* **11** 1401
- Andersson S, Lundqvist B I, Srinivasan G and Wikbord E 1972 Plasmon thresholds in the secondary electron yield – II. Dispersion laws *Solid State Commun.* **11** 1405
- [37] Pines D 1948 Theory of Plasma Oscillations. A. Origin of Medium-Like Behaviour *Phys. Rev.* **75** 1851
- [38] Hasegawa M and Watanabe M 1969 Theory of Plasmon Damping in Metals. I. General Formulation and Application to an Electron Gas *J. Phys. Soc. Japan* **27** 1393

- [39] Vashishta P and Singwi K S 1972 Electron Correlations at Metallic Densities *Phys. Rev. B* **6** 875
- [40] Zacharias P 1974 Behaviour of collective volume excitations in aluminium near the 'critical wavevector' (transition into single-particle excitation) *J. Phys. F: Metal Phys.* **5** 645

Résumé

Le phénomène d'émission électronique sous impact d'électrons, bien que très étudié, est mal connue à très basse énergie (<100 eV). Un domaine d'énergie où ce phénomène est un paramètre fondamental de technologies dans le domaine spatial comme les guides d'onde radiofréquence sous vide. Afin de mieux comprendre ce phénomène à cette gamme d'énergie, une étude théorique a été entreprise par le biais d'une simulation Monte-Carlo de l'émission électronique à très basse énergie. Après identification des interactions mises en jeu, nous avons sélectionné pour chaque interaction le ou les modèles existants les plus appropriés tout en leur apportant des modifications à chaque fois que cela était nécessaire. Certains modèles trouvés dans la littérature ont été utilisés pour la première fois dans le domaine de l'émission électronique. Notre approche a été appliquée à l'aluminium et a été validée expérimentalement lorsque les données existaient. L'allure de la courbe de rendement communément admise à ce jour a été contredite et expliquée par la faible probabilité d'échappement des électrons de très basse énergie, ainsi que par un traitement plus rigoureux de la réflexion des électrons de très basse énergie qui impactent le matériau. De surcroît, la simulation donne accès pour la première fois à un rendement à très basse énergie qui présente des oscillations que l'on retrouve dans les rares données expérimentales disponibles. Ces oscillations sont attribuées à l'interaction de l'électron avec les plasmons. Les simulations ont montré l'importance de la population d'électrons rétrodiffusés à très basse énergie.

Abstract

Although extensively studied, the phenomenon of electron emission under electron impact is not very well known at very low energy (<100 eV). An energy range where this phenomenon is a fundamental parameter in space technologies such as radiofrequency waveguide in vacuum. In order to provide a better understanding of the phenomenon, in this energy range, a theoretical study through Monte Carlo simulation of electron emission at very low energy have been undertaken. After identification of the involved interactions, we selected for each interaction the most appropriate existing models while providing modifications whenever necessary. Some models found in the literature were used for the first time in the field of electron emission. Our approach has been applied to aluminum and has been validated experimentally when data existed. The commonly accepted shape of the yield curve has been contradicted and explained by the low escape probability of very low energy electrons, as well as by a more rigorous treatment of the reflection of very low energy electrons that impact the material. In addition, the simulation provides, for the first time, access to a yield curve at very low energy presenting oscillations also found in the few available experimental data. These oscillations are attributed to the interaction of the electrons with the plasmons. Simulations showed the importance of the backscattered electrons population at very low energy.