Université Fédérale

Toulouse Midi-Pyrénées

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut Supérieur de l'Aéronautique et de l'Espace

Présentée et soutenue par :
Juliette Pierron

le jeudi 9 novembre 2017

Titre :

Modèle de transport d'électrons à basse énergie (~10 eV-2 keV) pour applications spatiales (OSMOSEE, GEANT4)

École doctorale et discipline ou spécialité :
ED GEET : Électromagnétisme et Systèmes Haute Fréquence

Unité de recherche :
DPhIEE ONERA - Département Physique, Instrumentation, Environnement, Espace

Directeur/trice(s) de Thèse :

M. Jean-Pierre David	ONERA
M. Christophe Inguimbert	ONERA

Jury :

Directeur de thèse	M. Jean-Pierre David	ONERA
Co-directeur de thèse	M. Christophe Inguimbert	ONERA
Co-encadrant	M. Mohamed Belhaj	ONERA
Co-encadrante	Mme Mélanie Raine	CEA
Co-encadrant	M. Jérôme Puech	CNES
Rapporteur	M. Mauro Taborelli	CERN
Rapporteur	Pr. Omar Jbara	LISM
Examinateur	M. Sébastien Incerti	CENBG

REMERCIEMENTS

Réaliser ces trois années de thèse au sein du département Environnement SPatial, devenu entre-temps le département Physique Instrumentation Environnement et Espace, de l'ONERA à Toulouse, a été riche en enseignements et je remercie l'ONERA, le CNES et le CEA de m'avoir offert cette opportunité.

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de thèse M. Jean-Pierre David pour son soutien, sa grande disponibilité et ses nombreux conseils durant la rédaction du manuscrit.

Je souhaiterais, tout particulièrement, remercier M. Christophe Inguimbert pour son accompagnement et son soutien tout au long de ces trois années et qui, en tant que co-directeur de thèse, a su faire preuve d'une grande pédagogie et d'une écoute attentive, et m'a guidée dans ce travail de recherche grâce à la qualité de son regard critique sur ces travaux de thèse.

Je remercie M. Mohamed Belhaj, qui en tant qu'encadrant de thèse m'a permis de réaliser quelques-unes des mesures expérimentales utilisées pour valider les simulations, et qui m'a éclairée sur les applications et les enjeux de ces travaux.

Je remercie aussi M. Jérôme Puech, mon correspondant au CNES, pour son enthousiasme et les discussions très intéressantes lors des différentes réunions.

J'adresse aussi mes remerciements à Mme Mélanie Raine, ma correspondante au CEA, pour son aide précieuse sur le module MicroElec et le code GEANT4, et pour ses remarques très pertinentes lors des échanges sur les résultats de ces travaux de thèse.

Je tiens également à remercier M. Mauro Taborelli, Directeur de recherche au CERN, M. Omar Jbara, Professeur à l'Université de Reims Champagne-Ardenne, et M. Sébastien Incerti, Directeur de recherche au CENBG, pour l'intérêt qu'ils ont porté à ces travaux de thèse, en acceptant d'en être les examinateurs, et dont les remarques pertinentes et les différents approfondissements m'ont permis d'enrichir le manuscrit de thèse.

Je souhaiterais aussi remercier l'ensemble des membres du DESP (ou désormais DPhIEE) de l'ONERA pour leur accueil chaleureux et la bonne ambiance quotidienne, tout particulièrement Sabine et Bernard, ainsi que le trio Gaël, Claude et Stéphane. Bien

sûr, je n'oublie pas Guillaume et Pablo, et beaucoup d'autres, qui ont eu la patience de me supporter au quotidien et avec qui j'ai partagé les pauses thé de l'après-midi.

Pour finir, je tiens à remercier mes parents et mon petit frère pour leur patience, et leur soutien indéfectible tout au long de ces trois années de thèse.

TABLE DES MATIÈRES

Introduction 5
Chapitre 1 : Enjeux de l'étude et état de l'art 11
1.1. Introduction 11
1.1.1. Environnement spatial 11
1.1.2. Effets des radiations sur les composants 13
1.1.2.1. Dose ionisante 15
1.1.2.2. Charge de surface et charge interne 15
1.1.2.3. Effets transitoires 16
1.1.2.4. Effet multipactor 16
1.2. Caractéristiques de l'effet multipactor 17
1.2.1. Rôle et fonctionnement des composants RF 17
1.2.2. Seuil de déclenchement multipactor 19
1.2.3. Pistes envisagées contre l'effet multipactor 21
1.3. Description de l'émission électronique 22
1.3.1. Rendement d'émission électronique 22
1.3.2. Paramètres influençant le rendement d'émission électronique 24
1.3.2.1. Effet de l'état de la surface du matériau 25
1.3.2.2. Effet de l'angle du faisceau d'incidence 27
1.3.3. Modèles et codes de transport existants pour l'émission électronique à basse énergie 28
1.4. Objectifs et démarche de la thèse 30
Chapitre 2 : Physique de l'émission électronique et codes de transport de Monte-Carlo à basse énergie 33
2.1. Introduction 33
2.1.1. Electrons rétrodiffusés et secondaires 34
2.1.2. Distribution en énergie des électrons émis 36
2.2. Grandeurs associées aux interactions 37
2.2.1. Représentation du processus 38
2.2.2. Section efficace d'interaction 39
2.2.2.1. Description en mécanique classique 39
2.2.2.2. Description en mécanique quantique 41
2.2.3. Libre parcours moyen 42
2.3. Description des différentes interactions des électrons dans un solide 43

2.3.1. Interactions élastiques 44
2.3.2. Interactions inélastiques 45
2.3.2.1. Description des solides dans la théorie des bandes 46
2.3.2.1.1. Niveaux d'énergie de l'atome isolé 46
2.3.2.1.2. Passage de l'atome isolé au solide 47
2.3.2.1.3. Références en énergie adoptées 50
2.3.2.2. Interactions avec les électrons faiblement liés 50
2.3.2.2.1. Interactions individuelles 51
2.3.2.2.2. Interactions collectives 53
2.3.2.3. Interactions avec les électrons de cœur 58
2.3.2.3.1. Ionisation 58
2.3.2.3.2. Processus de désexcitation 60
2.3.2.4. Interactions avec les phonons 63
2.3.3. Traversée de la surface 65
2.3.4. Conditions d'existence 68
2.4. Codes de transport de particules et méthode de Monte-Carlo 69
2.4.1. Principe de fonctionnement du code OSMOSEE et du module MicroElec 70
2.4.1.1. Choix de l'interaction 71
2.4.1.2. Détermination des grandeurs caractéristiques 72
2.4.2. Grandeurs accessibles par les codes 74
2.4.2.1. Profondeurs caractéristiques 74
2.4.2.2. Dose ionisante 77
2.5. Conclusion 79
Chapitre 3 : Modélisation du transport des électrons dans les codes OSMOSEE et MicroElec 81
3.1. Introduction 81
3.2. Modèle des fonctions diélectriques 82
3.2.1. Origine et limites du modèle 82
3.2.1.1. Un problème sans solution exacte 83
3.2.1.2. Approximation de Born et théorie de la faible perturbation 83
3.2.2. Equations principales 86
3.2.3. Modélisation de la fonction de perte d'énergie 88
3.2.3.1. Expression approchée de la fonction diélectrique 88
3.2.3.2. Modélisation par des données expérimentales 89
3.2.3.2.1. Fonction de perte d'énergie optique 90
3.2.3.2.2. Extensions à q≠0 99

3.2.3.2.3. Cas du plasmon de surface 107
3.2.4. Détermination des libres parcours moyens 111
3.2.4.1. Libre parcours moyen total inélastique 112
3.2.4.2. Séparation des différentes contributions 115
3.2.4.2.1. Contribution des électrons de cœur 116
3.2.4.2.2. Contribution des électrons faiblement liés 117
3.2.4.3. Effet Begrenzung 123
3.3. Modélisation du transport des électrons 125
3.3.1. Modèle pour l'énergie d'origine des électrons secondaires 125
3.3.1.1. Cas de l'aluminium et l'argent 126
3.3.1.2. Cas du silicium 128
3.3.1.3. Modélisation de la cascade Auger 130
3.3.2. Modélisation des phonons 131
3.3.3. Modélisation de la surface 133
3.4. Conclusion 134
Chapitre 4 : Comparaison des simulations numériques avec les mesures expérimentales 137
4.1. Introduction 137
4.1.1. Principe des mesures du dispositif DEESSE 137
4.1.1.1. Mesures des spectres en énergie 138
4.1.1.2. Mesures des rendements d'émission 140
4.1.2. Biais sur les mesures expérimentales 141
4.2. Comparaison des spectres en énergie 143
4.2.1. Contribution des électrons rétrodiffusés 144
4.2.2. Contribution des électrons secondaires 150
4.3. Comparaison des rendements d'émission électronique 153
4.3.1. Rendements totaux et angle d'incidence 153
4.3.2. Électrons rétrodiffusés et secondaires 160
4.3.3. Rendements à très basse énergie 165
4.4. Mise en évidence de deux régimes de transport 167
4.4.1. Profondeurs de pénétration 168
4.4.2. Étude des variations du rendement d'émission 170
4.4.3. Doses ionisantes 171
4.5. Conclusion 174
Chapitre 5 : Etude de l'effet de la rugosité sur l'émission électronique 177
5.1. Introduction 177

5.1.1. Définition des différents effets de la rugosité 178
5.1.2. Description de l'application GEANT4 utilisée 181
5.2. Etude de l'effet des rainures sur le rendement d'émission 183
5.2.1. Effet de la profondeur des rainures 184
5.2.2. Effet de la largeur des rainures 192
5.2.3. Comparaison entre l'argent et l'aluminium 198
5.3. Etude de l'effet des damiers sur le rendement d'émission 199
5.3.1. Effet de la hauteur des damiers 199
5.3.2. Effet de la largeur des damiers 206
5.3.3. Comparaison entre les rainures et les damiers 208
5.4. Discussion : applications á des systèmes réels 210
5.5. Conclusion 213
Conclusion 215
Bibliographie générale 221
Liste des communications 239
Annexes 241
Annexe 1 : Structures des bandes électroniques des matériaux étudiés 241
Annexe 2 : Origine du modèle des fonctions diélectriques 242
Annexe 3 : Caractéristiques du code OSMOSEE et du module MicroElec 259
Liste des figures 261

INTRODUCTION

L'espace est un milieu hostile pour les équipements embarqués à bord des satellites. Les électrons, ions et protons de haute énergie qui les bombardent continuellement peuvent pénétrer à l'intérieur de leurs composants électroniques et engendrer des dysfonctionnements **[STA88]**. Ces particules peuvent, par exemple, provoquer des dérives à long terme des caractéristiques des composants microélectroniques (effets de dose ionisante **[KIN12]** ou non ionisante), ou être à l'origine d'effets plus aléatoires, comme les effets de charge externe et interne **[BOU02]**. Ces effets de charge dépendent directement des flux de ces particules, et peuvent aboutir à des arcs électriques auxquels les panneaux solaires **[GAR81]** sont particulièrement sensibles. Le passage d'une unique particule de haute énergie peut, par ailleurs, être à l'origine de dysfonctionnements dans les composants électroniques numériques tels que le bruit dans les capteurs, ou les évènements singuliers dans les mémoires **[WAN08]**. Les particules de haute énergie qui traversent les parois du satellite peuvent aussi être à l'origine des phénomènes d'avalanche d'électrons dans les composants radiofréquences **[KIS98]**.

Les électrons, ions et protons du milieu spatial ont une énergie entre le keV et le GeV. Lorsque ces particules de haute énergie traversent un matériau, elles sont essentiellement ralenties par les interactions avec les électrons de ce matériau. Lors de ces interactions, ces électrons sont éjectés de leur atome et mis en mouvement dans le matériau. En interagissant à leur tour avec les autres électrons du matériau, ils sont à l'origine d'une cascade d'électrons de plus basse énergie — entre l'eV et le MeV. Tous les électrons de la cascade ont été arrachés à un atome du matériau traversé, et sont donc associés à la création de paires électrons-trous. S'ils ne s'échappent pas du matériau, ces électrons perdent leur énergie jusqu'à s'y implanter, ce qui met fin à la cascade.

Ces électrons, appelés « électrons secondaires », peuvent être responsables de différents types d'effets selon les composants dans lesquels ils se produisent. Par exemple, les champs électriques présents dans les composants électroniques collectent les paires électrons-trous générées, ce qui produit des effets transitoires qui perturbent les systèmes numériques. L'intégration croissante des composants électroniques les rend désormais sensibles aux perturbations provoquées par le passage d'un seul proton, et même d'un seul électron pour les composants de dernière génération (technologies : 16 nm, 22 nm ou 45 nm) **[ING15]**. Si les électrons secondaires sont situés suffisamment près de la surface du matériau, ils peuvent s'en échapper, et ainsi provoquer une ava-

lanche d'électrons de basse énergie entre les parois de certains composants radiofréquences, tels que les guides d'ondes ou les filtres **[KIS98]**. Pour les matériaux usuels des applications spatiales, cette avalanche peut être amorcée par des électrons entre quelques eV et quelques keV **[BAL12]**. La compréhension de l'ensemble de ces effets nécessite de connaître avec précision les mécanismes physiques de production des électrons secondaires, ainsi que leurs caractéristiques en terme de niveau de flux, d'énergie et de direction. Cela requiert des outils numériques performants, tels que des codes de transport d'électrons utilisant la méthode statistique de Monte-Carlo, qui doivent être valides jusqu'à quelques eV et à l'échelle du nanomètre.

Les codes de transport de Monte-Carlo sont utilisés depuis les années 1950 **[MET49]** pour étudier le comportement des particules dans les solides. En ayant pour principe de suivre pas à pas le déplacement de chaque électron de la cascade dans le solide, ces codes offrent une modélisation fine de la physique, en particulier à basse énergie. Ils permettent d'accéder à de nombreuses grandeurs critiques pour les applications, telles que le nombre et l'énergie des électrons émis par le solide, l'énergie déposée par les électrons incidents sur leur passage, la profondeur atteinte par les électrons, la profondeur depuis laquelle ils s'échappent, etc. Les codes les plus connus pour le transport des électrons, et mis à disposition par la communauté scientifique, sont les codes ETRAN **[SEL91]**, ITS6 **[FRA09]**, PENELOPE **[SAL15]**, EGSnrc **[KAW01]**, EGS5 **[HIR05]**, MCNP6 **[HUG14]**, GEANT4 **[AGO03, ALL16]** (module MicroElec **[RAI14]**), FLUKA **[BAT16]** et CASINO **[DEM11]**. Toutefois, ces codes ont été initialement développés pour le transport des électrons de haute énergie et ne sont pas forcément adaptés aux basses et très basses énergies — entre l'eV et le keV. D'autres codes plus spécifiques au transport des électrons de basse énergie, mais non mis à disposition de la communauté scientifique, ont également été développés par différents auteurs. Nous pouvons citer les codes de Kuhr et Fitting **[KUH99]**, de Ding et coll. **[DIN02, MAO08]**, de Ganachaud et Cailler **[GAN79]**, de Palov et coll. **[PAL98]**, de Dapor et coll. **[DAP17]**, et de Nishimura et coll. **[NIS94]**.

À notre connaissance, ces codes ne permettent pas la modélisation du transport des électrons dans des géométries complexes. Or, les grandeurs caractéristiques des électrons secondaires émis par les matériaux (flux, énergie) dépendent fortement de l'état de leur surface, c'est-à-dire s'ils sont oxydés, s'ils présentent de la contamination ou de la rugosité **[GIN14, GIN15]**. L'état de la surface, qui peut avoir un impact important pour les applications, n'est habituellement pas pris en compte dans les modèles physiques ou les codes de transport. Les mesures expérimentales étant coûteuses et

complexes à mettre en œuvre, obtenir des outils numériques capables de prendre en compte ces effets — par exemple en créant des multicouches pour modéliser l'oxydation et la contamination, ou des structures géométriques pour représenter la rugosité — est d'un grand intérêt pour les applications spatiales.

Dans ce contexte, l'ONERA, en partenariat avec le CNES, a développé son propre code de transport pour les électrons à basse énergie : OSMOSEE pour Onera Simulation MOdel for Secondary Electron Emission **[ROU13]**. Le code OSMOSEE a été validé pour des électrons d'énergie entre 10 eV et 2 keV. Cependant, les modèles physiques implémentés sont spécifiques à l'aluminium, et le code ne permet pas la modélisation 3D dans des géométries complexes. De son côté, le CEA a développé, pour le silicium, le module basse énergie MicroElec **[VAL12, RAI14]** dans le code de particules de haute énergie GEANT4. Ce code, qui permet de gérer des géométries 3D complexes, ne prend pas en compte certains modèles physiques nécessaires au transport des électrons de basse énergie, ce qui ne permet pas d'étudier, par exemple, le phénomène de l'émission électronique secondaire.

Afin d'obtenir une meilleure compréhension du transport des électrons à basse énergie pour les applications spatiales, l'enjeu, dans un effort commun entre l'ONERA, le CNES et le CEA, a été d'étendre au cours de cette thèse, ces deux codes à différents matériaux. La principale difficulté est, qu'à basse énergie, le transport des électrons dépend fortement de la structure des bandes électroniques des solides. Pour décrire les différentes interactions entre les électrons, nous avons choisi un modèle utilisant les fonctions diélectriques **[NIK12, VAL12]**. Ces fonctions, en étant déterminées à partir de la mesure des indices optiques, pour lesquels il existe des bases de données **[PALI97]**, permettent de s'affranchir de la disparité de structure électronique des matériaux, et ainsi de modéliser à la fois les métaux, les semi-conducteurs et les isolants.

Obtenir une meilleure compréhension du transport des électrons à basse énergie offre des perspectives intéressantes pour de nombreuses applications dans et hors du domaine spatial. Par exemple, les calculs de dépôts d'énergie sont d'un grand intérêt pour la problématique des composants de la microélectronique qui sont soumis aux radiations de l'espace **[AKK09, VAL12]**, l'accès à la profondeur depuis laquelle les électrons s'échappent du solide est une grandeur très intéressante pour la spectroscopie d'analyse de surface **[MAN14]**, le nombre d'électrons émis par le solide permet de mieux comprendre les phénomènes de nuages d'électrons dans les accélérateurs de particules **[CIM15]**, et la modélisation des interactions entre les électrons est utilisée pour la radio-

thérapie **[INC16, BAT16]**. Dans le cadre de ces travaux de thèse, bien que les codes numériques que nous avons développés permettent d'accéder à la plupart de ces grandeurs, nous nous sommes focalisés sur le processus de l'émission électronique secondaire.

Ce manuscrit de thèse s'articule autour de cinq chapitres.

Le premier chapitre, consacré au contexte et aux enjeux de ces travaux de thèse, dresse un état de l'art de l'émission électronique.

Le deuxième chapitre décrit les différentes interactions des électrons à basse énergie dans les matériaux, le principe de fonctionnement des codes de Monte-Carlo OSMOSEE et MicroElec, et pose les définitions des grandeurs accessibles par ces codes et auxquelles nous allons nous intéresser.

Le troisième chapitre présente le modèle des fonctions diélectriques que nous avons choisi pour décrire les différentes interactions entre les électrons. Dans ce chapitre, une première étape de validation s'appuie sur les calculs de deux grandeurs caractéristiques du transport : le libre parcours moyen et le pouvoir d'arrêt. Dans le cadre de ces travaux de thèse, nous nous sommes intéressés à trois matériaux : l'aluminium, l'argent et le silicium. L'aluminium est un métal simple à modéliser, et a couramment été étudié dans la littérature. Ce matériau, déjà implémenté dans le code OSMOSEE par le biais de modèles analytiques, nous a permis d'obtenir de précieux éléments de comparaison pour l'implémentation du modèle des fonctions diélectriques. Le deuxième matériau, l'argent, est couramment utilisé dans les applications spatiales. Toutefois, il s'agit d'un métal de transition qui possède une structure de bandes électroniques plus complexe que l'aluminium et, en ce sens, constitue un métal très intéressant pour étudier les limites de notre modélisation. Pour finir, le silicium, déjà implémenté dans le module MicroElec du code GEANT4, nous a permis, par comparaison avec le code OSMOSEE, d'étendre la validité de ce module à plus basse énergie.

Les deux derniers chapitres regroupent les principaux résultats obtenus sur l'émis-sion électronique secondaire.

Le quatrième chapitre est consacré aux comparaisons entre les simulations des codes OSMOSEE et MicroElec, et les mesures expérimentales disponibles dans la littérature. Dans cette logique de validation des codes, j'ai effectué des mesures de rendement d'émission électronique à l'aide du dispositif de mesures DEESSE de l'ONERA **[GIN14, GIN15]**. Dans ce chapitre, les matériaux étudiés sont considérés comme « théoriques », et correspondent à des solides sans oxydation, sans contamination et sans rugosité.

À l'opposé, le cinquième chapitre présente les résultats d'émission des électrons secondaires sur des matériaux dits « techniques » caractérisés par de la rugosité à leur surface. Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes intéressés à l'effet de structures simples telles que les rainures et les damiers.

CHAPITRE 1 : ENJEUX DE L'ÉTUDE ET ÉTAT DE L'ART

1.1. INTRODUCTION

L'espace est un milieu hostile pour les équipements embarqués à bord des satellites. L'analyse des données en vol montre que les ions, protons et électrons de haute énergie qui les bombardent continuellement sont responsables d'environ 20 % des défaillances **[BOU02]**. Or, l'espace n'est pas un milieu homogène, et les risques associés aux satellites dépendent donc de l'orbite sur laquelle ils se situent **[STA88]**. Le milieu spatial est formé de différents plasmas alimentés par les ions, protons et électrons issus du rayonnement cosmique, des ceintures de radiations qui entourent la Terre, du vent solaire ou des éruptions solaires. Une description complète de ces plasmas et de leurs effets sur les satellites peut être trouvée dans la littérature **[STA88, BOU02]**. Dans le cadre de cette thèse, nous allons nous intéresser plus particulièrement aux ceintures de radiations, et notamment aux électrons, qui sont à l'origine de dysfonctionnements dans les composants utilisés par les équipements radiofréquences (effet multipactor), des effets de dose, ainsi que des évènements singuliers dans les composants microélectroniques de dernière génération.

1.1.1. ENVIRONNEMENT SPATIAL

Lorsqu'un satellite est envoyé en orbite depuis la Terre, il traverse, tout d'abord, le plasma froid de l'ionosphère (haute atmosphère) puis croise les ceintures de radiations qui entourent la Terre. Découvertes en 1958 par Van Allen, ces ceintures concentrent les électrons et protons de haute énergie qui sont piégés par le champ magnétique terrestre (ou magnétosphère). Les ceintures de radiations sont des zones restreintes du milieu spatial, mais rassemblent les conditions les plus défavorables aux équipements des satellites. Il existe deux ceintures d'électrons, situées entre 1 et 10 rayons terrestres, et regroupant des particules d'énergie comprise entre quelques keV et 30 MeV ; et une unique ceinture de protons, située entre 1 et 7 rayons terrestres et rassemblant des par-

ticules d'énergie comprises entre quelques keV et 100 MeV. La FIGURE 1.1 illustre la position et les principales caractéristiques de ces ceintures. Sur cette figure, les énergies et les flux des électrons et des protons de ces ceintures sont calculés respectivement avec les modèles AE-8 **[SAW76]** et AP-8 **[VET91]** de la NASA. La FIGURE 1.1 présente également la position de l'orbite géostationnaire sur laquelle sont situés la plupart des satellites de télécommunications, et de deux orbites inclinées qui correspondent aux positions des satellites des systèmes GPS et Galileo. Nous pouvons voir que ces satellites traversent les ceintures d'électrons, en particulier la ceinture extérieure, mais pas, ou peu, la ceinture de protons. En ce sens, les électrons vont être à l'origine de nombreuses défaillances dans ces satellites.

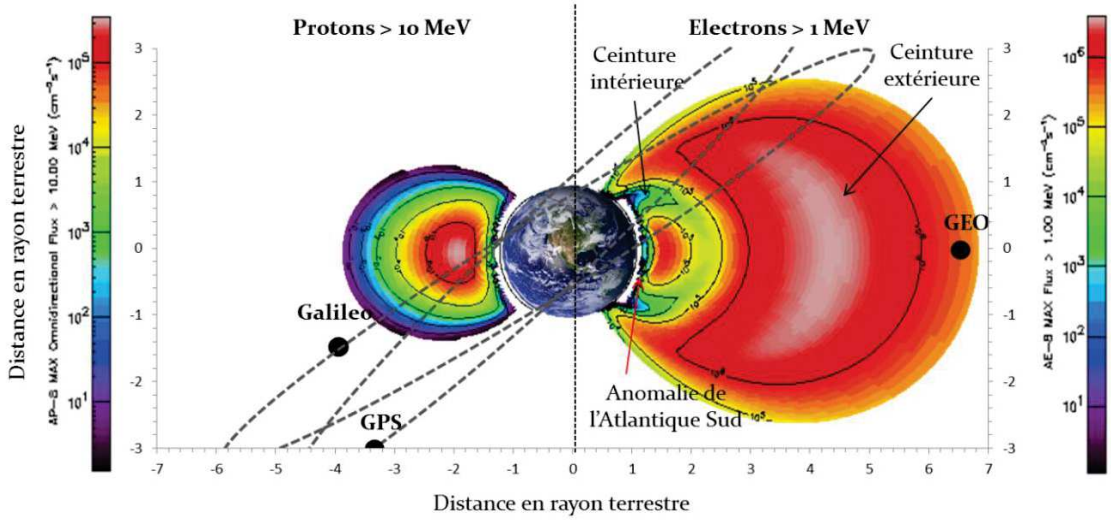


FIGURE 1.1. Représentation de la position des ceintures de protons et d'électrons qui entourent la terre ainsi que de l'orbite géostationnaire (GEO), et des orbites des systèmes de navigation Galileo et GPS. Les orbites des satellites ont été tracées à partir d'une figure de Horne [HOR07]. La partie gauche de la figure correspond à la distribution des protons d'énergie supérieure à 10 MeV calculée par le modèle AP-8 MAX de la NASA [SAW76]. La partie droite correspond à la distribution des électrons d'énergie supérieure à 1 MeV calculée par le modèle AE-8 MAX [VET91]. Les figures sont disponibles sur la base de données SPENVIS (SPace ENVironment Information System) de l'ESA qui répertorie les modèles décrivant l'environnement spatial et ses effets.

Toutefois, la magnétosphère terrestre possède une géométrie particulière : elle est comprimée du côté du soleil entre 10 ou 12 rayons terrestres, s'étend du côté opposé au soleil jusqu'à plusieurs centaines de fois le rayon terrestre, et possède deux cornets au niveau des pôles **[STA88]**. Ces cornets permettent le passage des électrons et protons

des ceintures dans l'ionosphère. Au niveau des pôles, les électrons peuvent pénétrer jusqu'à une altitude de 1000 km **[BOU02]**. Par ailleurs, le champ magnétique terrestre est incliné de 11° **[STA88]** par rapport à l'axe de rotation de la Terre et décentré de 500 km vers le Pacifique-Est. Cette dissymétrie engendre une zone où le champ est plus faible au-dessus du Brésil. Cette zone est appelée anomalie de l'Atlantique Sud. Dans cette zone, les électrons et protons de la ceinture de radiations la plus proche peuvent pénétrer à plus basse altitude (200 km) **[BOU02]**. C'est ce que nous pouvons voir sur la FIGURE 1.2 qui présente les flux d'électrons calculés à une altitude de 500 km autour de la Terre. En conséquence, même un satellite en orbite basse sera exposé à des flux de particules importants provenant notamment des cornets polaires et de l'anomalie de l'Atlantique Sud.

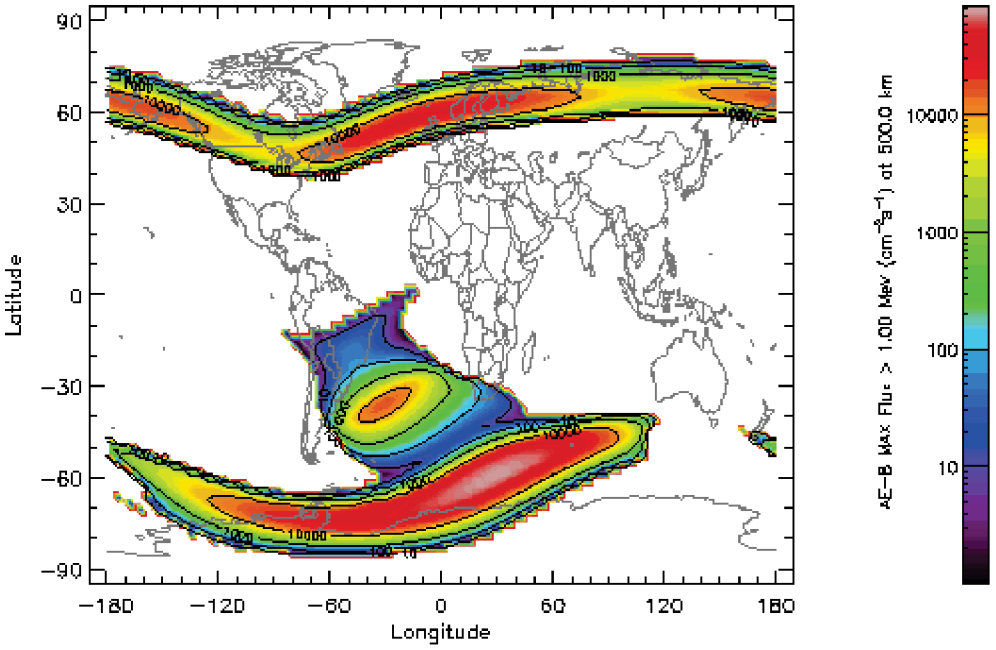


FIGURE 1.2. Distribution des électrons d'énergie supérieure à 1 MeV à une altitude de 500 km autour de la Terre calculée par le modèle AE-8 MAX [VET91]. La figure est disponible sur la base de données SPENVIS de l'ESA.

1.1.2. EFFETS DES RADIATIONS SUR LES COMPOSANTS

Les flux des électrons et des protons des ceintures de radiations sont tels qu'ils ne sont pas absorbés en totalité par les parois du satellite, le plus souvent en aluminium,

et parviennent ainsi à pénétrer à l'intérieur des composants électroniques. La FIGURE 1.3 illustre les profondeurs de pénétration des électrons dans l'aluminium. Nous pouvons voir que des électrons de quelques keV peuvent traverser une épaisseur de 50 nm alors que des électrons de 1 MeV peuvent traverser une épaisseur de plus de 1 mm. Pour les électrons de plus basse énergie, en dessous de 100 eV, nos récents calculs **[ING17]** montrent que l'épaisseur traversée reste relativement constante autour de quelques nanomètres. Nous verrons plus loin (chapitre 4) que ce phénomène à un effet direct sur les rendements d'émission électronique.

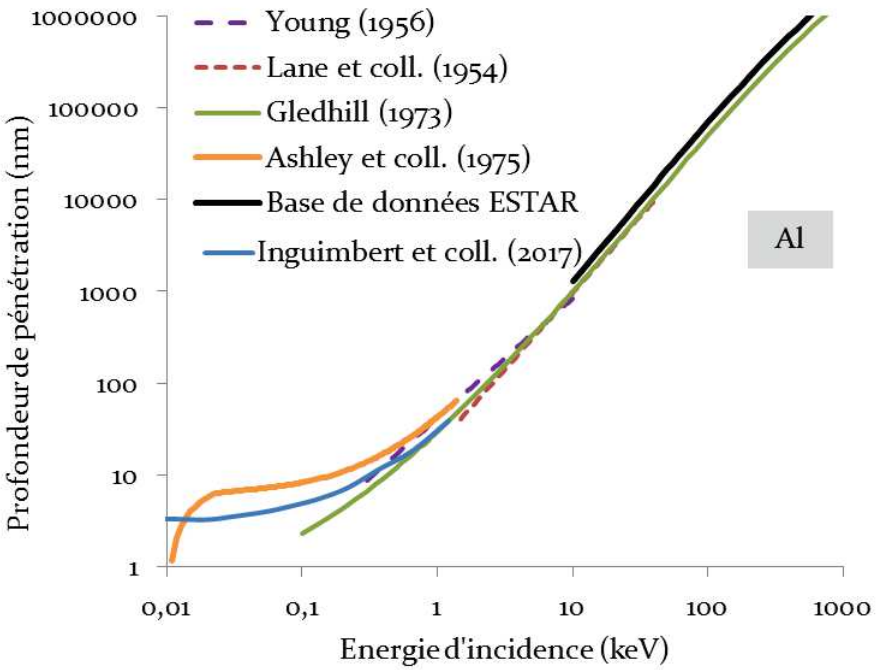


FIGURE 1.3. Profondeurs de pénétration calculées dans l'approximation CSDA (Continous Slowing Down Approximation) pour les électrons dans l'aluminium. Les données proviennent de [YOU56, GLE73, ASH75, ING17] et de la base de données ESTAR du NIST (National Institute of Standards and Technology) [NIST].

Lorsqu'un électron ou un proton de haute énergie traverse un matériau, il va interagir principalement avec les électrons du matériau. Lors de ces interactions, la particule incidente perd une partie de son énergie et est ralentie. Cette énergie est transmise aux électrons du matériau, ce qui entraîne la génération de paires électrons-trous (processus d'ionisation) sur la trajectoire de la particule incidente. En conséquence, les électrons et les protons des ceintures de radiations peuvent être à l'origine de plusieurs types de dysfonctionnements. On distingue, en général, deux types d'effets : les effets cumulatifs, dus à une exposition dans la durée des composants à l'environnement spa-

tial (dose ionisante, effets de charge) ; et les effets transitoires, dus à la perturbation provoquée par le passage d'une unique particule de haute énergie (bruit dans les capteurs, évènements singuliers dans les composants électroniques). Par ailleurs, les particules de haute énergie, qui traversent les parois du satellite, peuvent aussi être à l'origine des phénomènes d'avalanche d'électrons dans les composants radiofréquences (effet multipactor).

1.1.2.1. DOSE IONISANTE

Les effets de dose ionisante correspondent à une dégradation progressive des performances des composants électroniques sous l'effet d'une exposition prolongée aux électrons et protons de haute énergie. Par exemple, dans les circuits CMOS, une partie des paires électrons-trous générées, peut rester piégée dans les isolants des composants et produire des potentiels électriques parasites qui sont à l'origine de la dérive des tensions de seuil des transistors, ce qui peut à terme empêcher leur fonctionnement. Avec la réduction de taille des composants microélectroniques, dont certaines dimensions tendent vers quelques nanomètres pour les composants de dernière génération **[RAI12]**, la prise en compte des effets de dose ionisante nécessite des codes de transport de particules valides jusqu'à l'échelle du nanomètre.

1.1.2.2. CHARGE DE SURFACE ET CHARGE INTERNE

Les effets de charges sont principalement le fait des électrons de moyenne et de haute énergie. Les électrons de moyenne énergie, entre 10 et 200 keV, s'implantent dans les diélectriques présents à l'extérieur des satellites et sont à l'origine des phénomènes de charge dite « de surface ». Cette charge est à l'origine d'arcs électriques dans les panneaux solaires **[GAR81]** dont la structure peut entraîner la présence de différentiels de charge importants. Ces effets sont plus probables pour les orbites de basses altitudes et de forte inclinaison sur lesquelles se situent les satellites d'observation de la Terre. Les électrons d'énergie supérieure à plusieurs MeV, plus pénétrants, sont, quant à eux, responsables des phénomènes de charge interne **[BOU02]**. Ces effets sont plus probables sur les orbites synchrones des satellites de télécommunications et sur la mi-altitude de positionnement des satellites des systèmes GPS et Galileo représentés dans la FIGURE 1.1.

1.1.2.3. EFFETS TRANSITOIRES

Les effets transitoires, à l'intérieur des composants électroniques, sont dus principalement aux protons et aux ions, toutefois les électrons de haute énergie deviennent de plus en plus susceptibles de provoquer des évènements singuliers dans les composants suite à la réduction de leur taille. C'est le cas notamment avec les SEUs (Single Event Upset) qui correspondent au changement d'état des bits dans les mémoires **[WAN08].** Les travaux d'Inguimbert et coll. **[ING15]** ont montré que des mémoires SRAM de dernière génération (16 nm), ayant des volumes sensibles de l'ordre de 32 nm et des seuils de déclenchement de l'ordre de quelques keV étaient sensibles aux électrons. La prédiction de ce type de phénomènes requiert donc une précision de calcul de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres. À ces échelles, il faut prendre en compte, dans le cas des particules lourdes, la largeur de la colonne d'ionisation produite le long de leur trajectoire (la trace). La modélisation précise des traces des ions lourds nécessite de suivre les électrons secondaires générés à très basse énergie **[VAL12]**. En conséquence, l'estimation précise des seuils de déclenchement des SEUs nécessite des codes de transport d'électrons atteignant une précision de quelques nanomètres. Nous verrons dans le chapitre 4 de cette thèse, que cette précision correspond au domaine des basses énergies (< 2 keV).

1.1.2.4. EFFET MULTIPACTOR

En traversant les parois et les composants des satellites, les électrons de haute énergie sont ralentis et peuvent atteindre des énergies très faibles, de l'ordre de l'eV. Ces électrons de plus basse énergie peuvent être à l'origine de dysfonctionnement dans les composants (par exemple, décharges électroniques dans les composants radiofréquences ou effet multipactor **[KIS98]**). Ces effets sont plus probables sur les orbites synchrones des satellites de télécommunications et sur la mi-altitude de positionnement des satellites des systèmes GPS et Galileo représentés dans la FIGURE 1.1. Pour éviter l'apparition de cet effet, les industriels du domaine spatial tendent à limiter la puissance de fonctionnement des composants radiofréquences en imposant des marges importantes. Or, à l'heure actuelle, les satellites de communication sont sollicités par un nombre croissant d'utilisateurs qui désirent des taux de transferts de données de plus en plus élevés, ce qui nécessite une augmentation de la puissance des composants radiofréquences. Avoir une meilleure connaissance de la physique électronique à basse éner-

gie, à l'origine de l'effet multipactor, permettrait de diminuer les marges et donc d'augmenter la puissance de ces composants.

Dans le cadre de ces travaux de thèse, bien que les codes numériques que nous avons développés permettent d'accéder à la plupart des grandeurs nécessaires aux applications décrites dans cette section, nous avons choisi de nous focaliser sur l'effet multipactor.

1.2. CARACTÉRISTIQUES DE L'EFFET MULTIPACTOR

L'effet multipactor correspond à une avalanche d'électrons dans le vide, par interaction résonnante avec les parois d'une cavité, suite à la mise en mouvement des électrons par une onde électromagnétique radiofréquence. Observé pour la première fois en 1924 par Guttons, l'effet multipactor fut cependant identifié une décennie plus tard par Famsworth qui lui donna son nom d'après l'invention d'un amplificateur basé sur cet effet **[KIS98]**. L'effet multipactor peut se produire sur les différents composants radiofréquences qui permettent de transmettre le signal du satellite jusqu'à la Terre : antennes, filtres, guides d'ondes, câbles coaxiaux, amplificateurs, etc. Dans cette section, après avoir brièvement présenté la chaîne des composants radiofréquences (RF) qui permettent de transmettre une onde radiofréquence entre le satellite et la Terre, nous décrirons les conditions nécessaires au déclenchement de l'effet multipactor.

1.2.1. RÔLE ET FONCTIONNEMENT DES COMPOSANTS RF

La transmission d'une onde radiofréquence entre deux stations situées à la surface de la Terre via un satellite passe par un système complexe de composants radiofréquences. Un schéma simplifié de ce système est donné par la FIGURE 1.4. Une description plus complète du principe de fonctionnement des systèmes radiofréquences dans les satellites de télécommunication peut être trouvée dans la littérature **[MAR96]**.

Les ondes radiofréquences sont définies par des fréquences entre 30 kHz et 300 GHz ce qui équivaut à une longueur d'onde entre 10 km et 1 mm. Lors de leur propagation dans l'ionosphère, la puissance transportée par ces ondes est atténuée d'un facteur $1/r^2$ où r représente la distance parcourue par l'onde. Par exemple, pour un sa-

tellite de télécommunication située en orbite géostationnaire, la distance r vaut environ 36 000 km (dans l'expression $1/r^2$, elle intervient en m). Les ondes RF émises par les stations terrestres (ou un autre satellite) sont reçues par l'antenne réceptrice du satellite avant d'être réparties dans les différents canaux du transpondeur selon leur fréquence grâce aux filtres d'entrée de canal (IMUX) **[MAR96]**. A des fins de simplification, le schéma de la FIGURE 1.4 représente un unique canal.

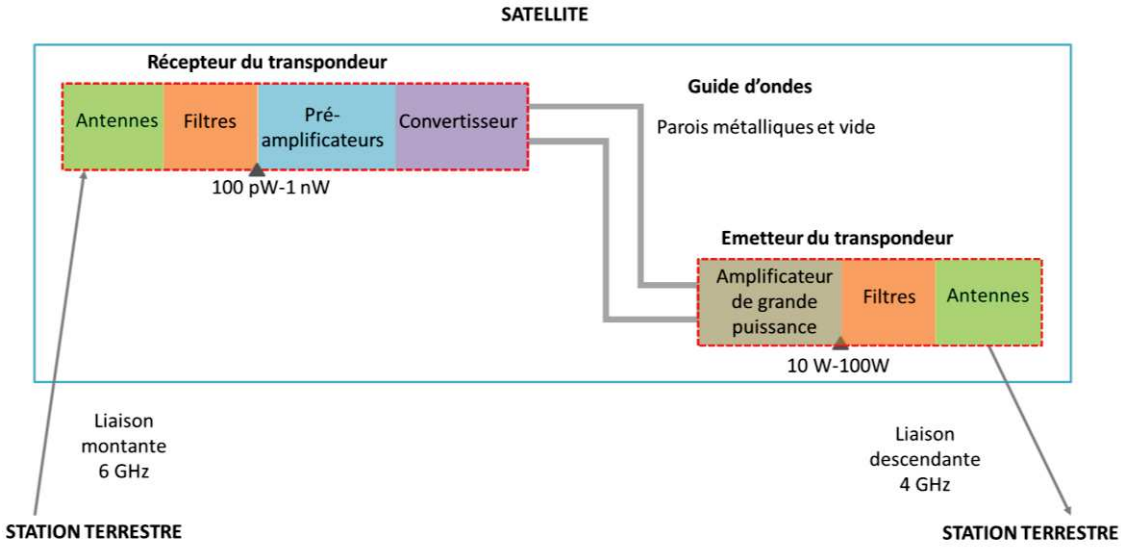


FIGURE 1.4. Schéma simplifié de l'architecture du système de télécommunication d'un satellite.

Chaque canal permet de traiter un signal dans une sous-bande de fréquence particulière de la bande totale allouée au satellite. Les ondes se propageant dans toutes les directions, cette opération de filtrage permet de considérer uniquement le signal qui nous intéresse parmi tous ceux que reçoit l'antenne réceptrice du satellite.

A l'entrée du récepteur, l'onde RF, fortement atténuée par l'ionosphère, a une puissance de l'ordre de 100 pW à 1 nW **[MAR96]**. Dans la partie réceptrice, l'onde RF est légèrement amplifiée par un préamplificateur. Elle est ensuite modulée en fréquence par un convertisseur puis diffusée dans un guide d'ondes ou un câble coaxial pour atteindre la partie émettrice de la chaîne. La modulation en fréquence permet de distinguer l'onde que va envoyer le satellite à la station terrestre de l'onde initialement reçue par l'antenne réceptrice. Le rôle des guides d'ondes et des câbles coaxiaux est de contraindre la propagation de l'onde dans la bonne direction afin qu'elle puisse être réémise par l'antenne émettrice du satellite.

En vue de son émission dans l'espace et de sa future atténuation par l'ionosphère, l'onde est amplifiée dans la partie émettrice de la chaîne par des amplificateurs de grande puissance. La puissance en sortie de l'amplificateur d'émission du canal est de l'ordre de 10 W à 100 W **[MAR96]**. Le gain en puissance est donc de l'ordre de 100 à 130 dB. Après amplification dans chaque canal par des amplificateurs, les ondes RF sont regroupées par filtres de sortie de canal (OMUX) sur l'antenne d'émission. Les filtres de sortie permettent d'enlever le bruit du signal. Le satellite peut alors réémettre les ondes vers les stations terrestres (ou vers un autre satellite).

L'effet multipactor peut se produire sur l'ensemble de la chaîne RF. La création d'une cascade d'électrons peut endommager les antennes, les filtres, les guides d'ondes et les câbles coaxiaux (érosion des parois, montée en température) et limiter la propagation du signal (création d'un signal parasite) dans ces composants. Par ailleurs, les préamplificateurs, les convertisseurs et les amplificateurs de puissance vont avoir tendance à augmenter la cascade d'électrons, ce qui peut également être problématique. Si la transmission du signal du satellite aux stations terrestres (ou à un autre satellite) est bloquée, il existe un risque de perdre le contact avec le satellite, ce qui pourrait aboutir à l'échec de la mission.

1.2.2. SEUIL DE DÉCLENCHEMENT MULTIPACTOR

Afin de simplifier les explications pour décrire le déclenchement de l'effet multipactor dans les composants radiofréquences que nous avons brièvement présentés dans la section 1.2.1., nous allons prendre l'exemple d'un guide d'ondes radiofréquences rectangulaire et métallique. De manière simplifiée, ce composant peut être modélisé par des plaques conductrices — par exemple, en aluminium recouvertes d'une fine couche d'argent —séparées par du vide. Si les matériaux diélectriques sont également utilisés dans les composants RF, par exemple dans les filtres de multiplexage en aval de l'amplificateur haute puissance, ces matériaux ont tendance à se charger suite à leur irradiation par un faisceau d'électrons. L'étude du phénomène de charge à la surface des matériaux diélectriques dépasse le cadre de cette thèse, mais nous pouvons néanmoins retenir que ce phénomène a une grande influence sur le seuil de déclenchement de l'effet multipactor **[PUE17]**.

Lorsqu'un électron de basse énergie arrive sur la paroi d'un guide d'ondes radiofréquence, cet électron va pouvoir arracher un ou plusieurs électrons de la paroi du guide. Ce phénomène est appelé « émission électronique ». Si les électrons créés dans le guide par émission électronique sont accélérés par le champ électrique de l'onde radiofréquence et envoyés contre les parois du guide, ils vont pouvoir à leur tour arracher d'autres électrons aux parois. À terme, il peut se produire une avalanche d'électrons dans le guide. Cette avalanche correspond à l'effet multipactor.

Nous voyons là, à travers cette première description, que l'effet multipactor ne peut apparaître que sous certaines conditions. Afin d'initier la cascade d'électrons dans le guide, la première condition est d'avoir un matériau qui émet plus d'électrons qu'il n'en reçoit. La deuxième condition est que les électrons doivent atteindre l'une des parois du guide d'ondes. En ce sens, le champ radiofréquence entre les parois du composant ne doit pas changer la direction des électrons et les freiner de manière trop importante afin qu'ils atteignent l'une des parois du guide, et puissent arracher d'autres électrons à cette paroi par émission électronique. En conséquence, l'effet multipactor dépend fortement de la fréquence et de la puissance de l'onde radiofréquence, et des dimensions du composant.

Une première théorie de cet effet a été réalisée en 1958 par Hatch et Williams, et a montré que la cascade électronique à l'intérieur du guide d'ondes se produit selon des modes de résonance. En première approximation, l'effet multipactor se produit lorsque le temps que met l'électron pour aller d'une paroi à une autre (ou pour retourner sur la paroi initiale) est un multiple de la moitié de la période de l'onde RF **[UDI07]**. Lorsque la trajectoire est telle que les électrons retournent à leur position initiale, on parle d'effet multipactor à un point. Si la trajectoire des électrons fait une boucle sur deux points d'impact, on parle d'effet multipactor à deux points, etc. L'ordre de l'effet multipactor est défini par le nombre de périodes radiofréquences nécessaires pour que l'électron atteigne l'une des parois du guide. Dans le cas d'un effet multipactor à deux points et d'ordre n, l'électron met 2n-1 demi-périodes de l'onde radiofréquence pour atteindre la paroi opposée. La FIGURE 1.5 présente un schéma simplifié du déclenchement d'un effet multipactor à deux points et d'ordre 2 dans un guide d'ondes radiofréquences.

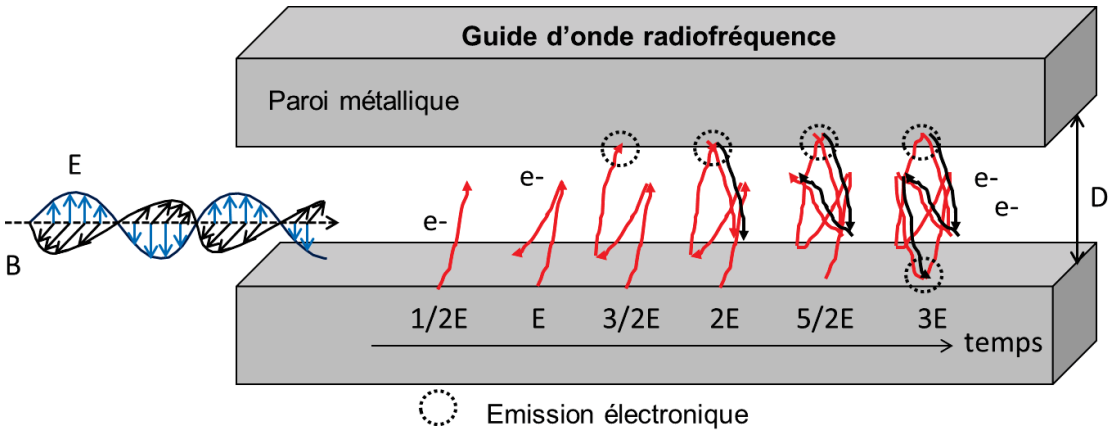


FIGURE 1.5. Evolution au cours du temps du déplacement des électrons libres dans un guide d'ondes radiofréquences. Cas d'un effet multipactor à deux points et d'ordre 2.

Nous voyons sur la FIGURE 1.5 que la géométrie du composant, en particulier la distance D entre les deux parois, va jouer un rôle crucial dans le déclenchement de l'effet multipactor. C'est pourquoi, en général, l'effet multipactor a plus de risque de se produire dans les zones restreintes des composants où la distance entre les parois est faible **[UDI07]** comme les iris des guides d'ondes, les filtres, ou les câbles coaxiaux dans lesquels du vide peut apparaître avec les différences de températures dues à l'environnement spatial. Or, une augmentation en puissance de ces composants se traduit par une augmentation du champ électrique entre leurs parois dans ces zones restreintes, ce qui rend alors le composant plus favorable à l'apparition de l'effet multipactor.

1.2.3. PISTES ENVISAGÉES CONTRE L'EFFET MULTIPACTOR

Afin de limiter l'effet multipactor dans les composants radiofréquences, plusieurs pistes sont envisagées **[KIS98]**. La première consiste à jouer sur la géométrie du composant afin de limiter les modes de résonances permettant d'initier la cascade d'électrons **[UDI07]**. La deuxième piste consiste à utiliser le fait que la cascade d'électrons va, au cours du temps, modifier la surface des parois des composants et s'annuler **[KIS98]**. On parle d'effet de conditionnement. Cette approche n'est, en général, pas envisagée dans les applications spatiales mais plutôt pour les accélérateurs de particules (CERN, ITER) dans lesquels l'effet multipactor peut également se produire.

La troisième piste consiste à choisir des matériaux qui émettent peu d'électrons. Cette approche revient à réaliser des traitements de surface sur les zones restreintes des parois des composants qui sont les plus susceptibles de déclencher la cascade d'électrons.

C'est dans le cadre de cette troisième approche que s'inscrit cette thèse. Notre objectif est double. Il s'agit, d'une part, d'utiliser des codes de transport de particules pour obtenir une meilleure compréhension des mécanismes physiques à l'origine de la cascade d'électrons, ce qui permettrait d'affiner les modèles dans les simulations de l'effet multipactor **[FIL16]** ; d'autre part, il s'agit de comprendre comment des traitements de surface, comme la rugosité, peuvent limiter l'émission électronique à l'origine de l'effet multipactor.

1.3. DESCRIPTION DE L'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE

L'émission électronique désigne le processus par lequel les électrons s'échappent d'un matériau et pénètrent dans le vide. Nous avons vu dans la section précédente, que l'une des conditions nécessaires au déclenchement de l'effet multipactor est d'avoir un matériau qui émet plus d'électrons qu'il n'en reçoit. C'est le cas de la plupart des matériaux utilisés dans les applications spatiales **[BAL12]**.

1.3.1. RENDEMENT D'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE

Pour décrire de manière plus précise l'émission électronique, le nombre d'électrons émis par un matériau est évalué par le rendement d'émission électronique. Ce rendement est défini comme le rapport du nombre d'électrons émis sur le nombre d'électrons incidents. Dans cette définition, la condition d'apparition de l'effet multipactor est alors d'avoir un rendement d'émission électronique supérieur à 1. Le rendement d'émission dépend de l'énergie des électrons incidents. La FIGURE 1.6 présente la courbe de rendement d'émission électronique pour les électrons entre 10 eV et 4 keV dans l'argent.

Sur cette courbe, on s'intéresse à plusieurs points : la valeur σ_{max} et la position E_{max} du maximum de la courbe, et les deux points de cross-over notés Ec_1 et Ec_2. La valeur du maximum permet de savoir si la condition nécessaire au seuil de déclenchement de l'effet multipactor est atteinte. Si c'est le cas, les deux points de cross-over, qui

correspondent aux énergies d'incidence pour lesquelles le rendement vaut 1, donnent l'intervalle d'énergie dans lequel l'effet multipactor peut apparaître.

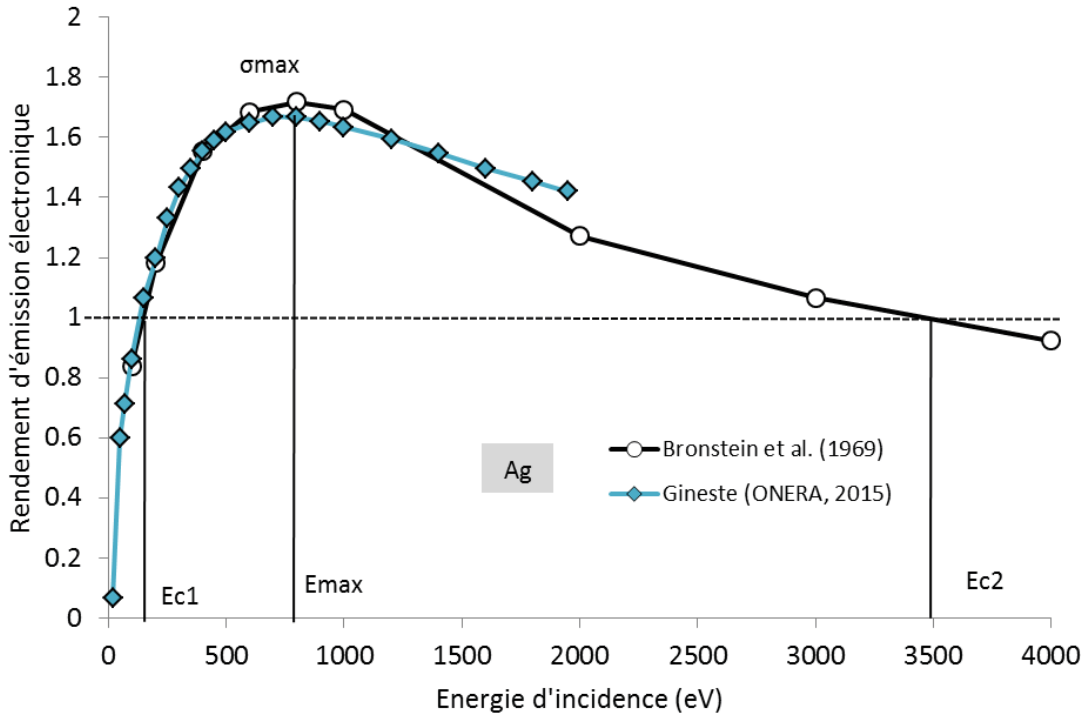


FIGURE 1.6. Courbe de rendement d'émission électronique de l'argent. Les données de Gineste sont des mesures sur des solides massifs décapés *in situ* sous ultravide [GIN15]. Les données de Bronstein et coll. sont des mesures sur des couches minces évaporées *in situ* sous vide [BRO69].

Le déclenchement de l'effet multipactor dépend fortement de l'énergie du premier point de cross-over Ec_1. Nous voyons sur la FIGURE 1.6 que, dans l'argent pur, l'effet multipactor peut être initié par des électrons d'énergie entre Ec_1=74 eV et Ec_2=3600 eV **[GIN15]**. Pour de nombreux matériaux utilisés dans les composants radiofréquences des satellites, le seuil de déclenchement est atteint pour des électrons de basses énergies entre 5 eV et 2 keV **[BAL12]**.

Les rendements d'émission électronique ont été déterminés expérimentalement depuis les années 1920 pour de nombreux matériaux. La plupart des données expérimentales sont regroupées dans la base de données de Joy **[JOY08]**. Toutefois, pour les basses énergies, en particulier en dessous de 100 eV, les mesures de rendement d'émission électronique disponibles dans la littérature sont rares et présentent de fortes disparités. Par exemple, l'accord entre deux ensembles de mesures dans la base de don-

nées de Joy **[JOY08]** est en général de moins de 25%. Ces écarts permettent presque toujours de valider un code de transport en choisissant les données expérimentales qui s'approchent le plus des simulations **[LIN05]**. Les disparités entre les mesures expérimentales de la littérature, et notamment dans la base de données de Joy **[JOY08]**, peuvent s'expliquer par les différences de montage expérimental (enceinte sous vide, travail de sortie du collecteur utilisé, mesure sur des solides massifs ou des couches minces) **[WAL08]** et par l'état de la surface des matériaux (oxydation, contamination, ou rugosité) **[ASS98, WAL08, GIN15]**. Afin de valider les simulations issues des codes de transport d'électrons, il est nécessaire d'obtenir des mesures sur des solides purs et sans rugosité.

Afin d'obtenir de telles mesures, l'ONERA a mis en place un dispositif de mesures expérimentales pour les rendements d'émission électronique : le dispositif DEESSE **[GIN15]** pour Dispositif d'étude de l'Emission Electronique Secondaire Sous Electrons. Ce dispositif permet des mesures sur des solides massifs décapés *in situ* par argon sous ultravide. Une description complète de ce dispositif peut être trouvée dans les travaux de Gineste et coll. **[GIN14, GIN15]**. Les mesures à basse énergie issues de ce dispositif sont en bon accord avec les données expérimentales de Bronstein et Fraiman **[BRO69]**, comme le montre la FIGURE 1.6. Ce résultat nous permet de considérer ces deux jeux de mesures comme fiables.

1.3.2. PARAMÈTRES INFLUENÇANT LE RENDEMENT D'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE

Afin d'étudier l'effet de l'état de la surface du matériau sur le rendement d'émission électronique, dans la suite de ce manuscrit de thèse, nous distinguons les matériaux dits « théoriques », c'est-à-dire les solides purs et parfaitement lisses, des matériaux « techniques », c'est-à-dire les matériaux tels qu'ils sont envoyés dans les charges utiles des satellites. En ce sens, les matériaux théoriques correspondent à des simulations de solides semi-infinis, ainsi qu'aux mesures expérimentales réalisées sur des solides massifs décapés par bombardement ionique d'argon sous ultravide (mesures de Gineste **[GIN15]**) ou sur des couches minces évaporées sous ultravide (mesures de Bronstein et coll. **[BRO69]**). À l'opposé, les matériaux techniques correspondent, en général, à des matériaux exposés à l'air. Ils peuvent présenter une couche d'oxydation, une fine couche d'eau, de la contamination, ou de la rugosité.

1.3.2.1. EFFET DE L'ÉTAT DE LA SURFACE DU MATÉRIAU

La FIGURE 1.7 présente une comparaison des courbes de rendement d'émission électronique à basse énergie pour de l'argent théorique et de l'argent technique. Nous pouvons voir que le rendement atteint un maximum de 1,75 à 632 eV **[BRO69]** pour l'argent théorique et un maximum de 2,28 à 255 eV **[GIN14]** pour l'argent technique. Les points de cross-over sont définis respectivement par Ec1=74 eV et Ec2=3600 keV **[GIN15]** pour l'argent théorique et respectivement par Ec1=24 eV et Ec2=3600 keV **[GIN14]** pour l'argent technique.

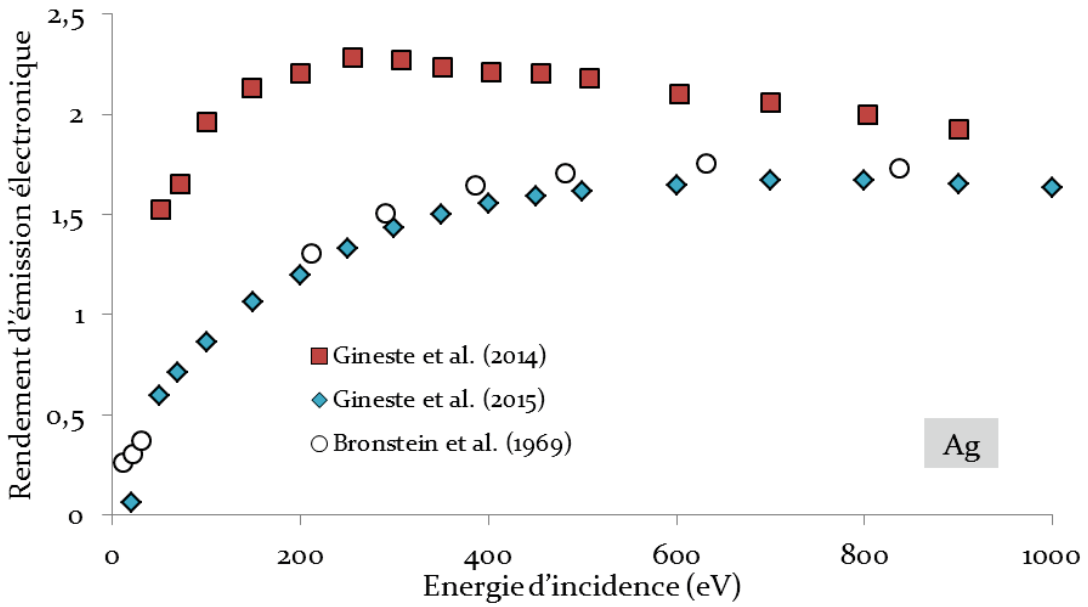


FIGURE 1.7. Rendement d'émission électronique de l'argent pour un matériau théorique et un matériau technique. Les données de Bronstein et coll. [BRO69] correspondent à des mesures sur des couches minces évaporées *in situ* sous ultravide, les données de Gineste et coll. (2015) [GIN15] correspondent à des mesures sur des solides massifs décapés *in situ* par argon sous ultravide. Les données de Gineste et coll. (2014) [GIN14] sont des mesures sous ultravide sur de l'argent exposé à l'air (matériau technique).

Nous voyons dès lors que l'exposition à l'air augmente le rendement d'émission maximal et diminue le premier point de cross-over de l'argent. En ce sens, l'exposition des matériaux à l'air favorise l'effet multipactor. Ce résultat n'est pas propre à l'argent et se vérifie dans la littérature pour d'autres matériaux **[BAG00, JOY08, GIN15]**.

Pour l'aluminium, les mesures de la base de données de Joy **[JOY08]** sont très disparates. Par exemple, il existe un facteur 5 entre les mesures de Hilleret et coll. **[HIL03]** sur de l'aluminium technique et les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]**

sur de l'aluminium théorique. Cet écart peut s'expliquer par le fait que l'aluminium s'oxyde facilement lorsqu'il est exposé à l'air. Les travaux de Baglin et coll. **[BAG00]** ont montré que le rendement d'émission électronique de l'aluminium décapé puis réexposé à l'air atteint une valeur de 2,5 pour une épaisseur d'oxyde de 6 nm — la valeur théorique étant proche de 1 **[BRO69, GIN15]**.

Les matériaux exposés à l'air peuvent également présenter une fine couche d'eau **[GIN15]**. Les mesures de Baglin et coll. **[BAG00]** sur du cuivre ont montré qu'une couche d'eau de 45 monocouches d'épaisseur entraîne une augmentation du rendement d'émission électronique de 1,6 à 1,9 pour ce matériau.

Par ailleurs, les matériaux techniques peuvent présenter de la rugosité à leur surface. Contrairement à l'oxydation qui a tendance à toujours augmenter le rendement d'émission, la rugosité peut avoir plusieurs effets sur le rendement selon la forme des structures rugueuses **[NIS94, PIV08]**. Par exemple, Aguilera et coll. **[AGU13]** ont fait grandir des nanofils d'oxyde de cuivre sur un support de cuivre et ont montré qu'il était possible d'obtenir un rendement inférieur à 1 lorsque les nanofils ont un facteur d'échelle de 10^3 — le rendement du cuivre technique étant de 2,4 **[AGU13]**. Dans cet exemple, le faible rendement s'explique par le fait que les électrons émis par le support en cuivre sont captés par les nanofils avoisinants.

Plusieurs auteurs ont étudié l'effet de la rugosité sur le rendement d'émission électronique, en utilisant des traitements chimiques **[AGU13]**, des traitements mécaniques **[PIV08]**, par usinage laser **[WAT11]**, ou en utilisant la modélisation par le biais de codes de transport d'électrons **[NIS94]**. La modélisation par des codes de transports de particules permet d'éviter le recours à des mesures expérimentales qui s'avèrent parfois coûteuses et difficiles à mettre en place. Toutefois, à notre connaissance, les codes de transport utilisés dans la littérature **[NIS94, WANG07]** ne permettent pas de modéliser à la fois l'ensemble des interactions des électrons dans le solide et leur déplacement dans le cas de géométries 3D complexes. En ce sens, l'approche que nous proposons, dans le cadre de cette thèse, est novatrice.

Les disparités de mesures de rendement d'émission électronique dues à l'état de la surface des matériaux montrent, qu'à basse énergie, les électrons émis proviennent majoritairement des premiers nanomètres de la surface **[BAG00, ROU13]**. Le changement de l'angle du faisceau incident aura donc une grande influence sur le rendement d'émission. Les mesures présentées précédemment ont été réalisées pour un faisceau

arrivant sur l'échantillon avec une incidence normale. L'étude de l'effet de l'angle d'incidence constitue un préalable à l'étude de la rugosité. En effet, avant de nous intéresser au transport des électrons qui s'échappent du matériau servant de support et qui arrivent sur les structures rugueuses avoisinantes avec différents angles d'incidence, nous devons nous intéresser au transport des électrons arrivant de façon oblique sur une surface plane.

1.3.2.2. EFFET DE L'ANGLE DU FAISCEAU D'INCIDENCE

La FIGURE 1.8 présente le rendement d'émission électronique pour différents angles d'incidence dans l'aluminium théorique. Nous pouvons voir que plus l'angle θ du faisceau d'incidence est rasant plus le rendement d'émission électronique augmente.

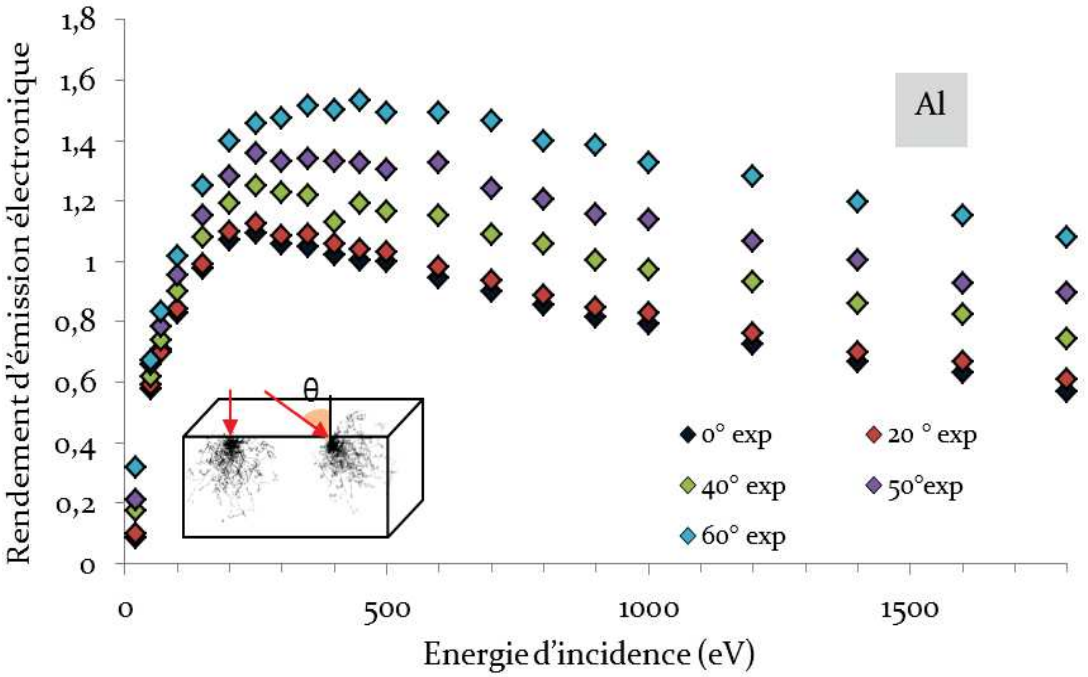


FIGURE 1.8. Rendement d'émission électronique de l'aluminium pour différents angles d'incidence θ. Les données sont des mesures sur des solides massifs décapés *in situ* par argon sous ultravide issues de [GIN15].

À incidence normale, le rendement d'émission de l'aluminium théorique atteint une valeur maximale de 1,12 à 250 eV **[GIN15]**. Les énergies des points de cross-over sont Ec_1=200 eV et Ec_2=450 eV. Pour un angle de 60°, le rendement atteint une va-

leur maximale de 1,51 à 350 eV **[GIN15]**. Le premier point de cross-over est décalé à Ec_1=100 eV et le second point à plus de 2 keV. Cet écart s'explique par le fait que les électrons qui traversent la surface du matériau avec une incidence rasante ont tendance à rester près de la surface. En conséquence, ils vont générer plus d'électrons secondaires proches de la surface qui pourront s'échapper plus facilement du matériau.

Nous pouvons voir que le changement d'angle d'incidence a moins d'effet à basse énergie qu'à haute énergie **[ROU13, GIN15]**. Cela s'explique par le fait qu'à basse énergie, les électrons incidents ont tendance, indépendamment de l'angle d'incidence, à rester dans les premiers nanomètres sous la surface. Les simulations de Kurh et Fitting **[KUH99]** indiquent que les électrons de 100 eV atteignent au maximum une profondeur de 10 nm dans l'aluminium, alors que les électrons de 2 keV atteignent une profondeur de 100 nm.

1.3.3. MODÈLES ET CODES DE TRANSPORT EXISTANTS POUR L'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE À BASSE ÉNERGIE

Si l'émission électronique a été largement étudiée dans les hautes énergies, notamment avec la microscopie électronique et les spectroscopies d'analyse des surfaces, l'interaction des électrons d'énergie inférieure à 100 eV avec la matière est encore peu connue. Nous avons vu pourquoi, dans la section 1.3.2., d'un point de vu expérimental, il est très difficile d'étudier ces électrons sans artéfacts **[GIN15]**. Par ailleurs, en dessous de quelques centaines d'eV, le comportement des électrons est souvent modélisé par des lois approximatives, car extrapolées des lois à haute énergie **[ING14, ING17]**. C'est ce que nous avons pu constater pour les profondeurs de pénétration extrapolées. En effet, la FIGURE 1.3 montre, qu'à haute énergie, les profondeurs h suivent une loi de puissance de la forme $h(E) = k\,E^n$ et que cette loi n'est plus valide pour des énergies en dessous de 100 eV **[ING17]** (FIGURE 1.3).

Les modèles analytiques issus de ces lois extrapolées, ainsi que des modèles empiriques déterminés à partir des données expérimentales **[BAR50, DEK54, JON57, DIO73, DIO75, SEI83, FUR02,]**, sont couramment utilisés dans les codes de transport d'électrons pour déterminer les rendements d'émission électronique **[BRU54, CAZ01, SCH02, LIN05]** ou les conditions de déclenchement de l'effet multipactor**.** Cependant, ces lois s'avèrent insuffisantes pour étudier l'effet de structures morphologiques complexes sur l'émission électronique.

Étudier l'influence de la rugosité sur le rendement d'émission électronique, en particulier à basse énergie, nécessite de traiter de manière précise les interactions entre les électrons et la matière. La plupart des modèles d'interactions utilisés pour le transport des électrons à basse énergie sont issus de la mécanique quantique et sont complexes à mettre en œuvre. En outre, chaque électron ayant un comportement différent, il est nécessaire d'utiliser des méthodes statistiques prenant en compte un grand nombre d'électrons, telle que la méthode de Monte-Carlo **[MET49, NIK12]**.

Les codes de transport utilisant la méthode statistique de Monte-Carlo sont utilisés depuis les années 1950 pour étudier le comportement des particules dans les solides. Le nom de l'algorithme fait allusion aux jeux de hasard des casinos de Monaco, car la méthode, inventée en 1947 par Metropolis et Ulam **[MET49]**, utilise des nombres aléatoires pour calculer, les valeurs caractéristiques du déplacement des électrons dans le solide (par exemple, l'énergie et le moment transférés lors des interactions).

Initialement restreints à la physique nucléaire, les codes de Monte-Carlo sont aujourd'hui utilisés dans de nombreux domaines : imagerie médicale et radioprotection **[INC16, BAT16]**, industrie spatiale **[ROU13]**, microélectronique **[AKK09, VAL12]**, spectroscopie d'analyse de surface **[MAN14]**, etc. Les codes les plus connus pour le transport des électrons et, mis à disposition par la communauté scientifique, sont les codes ETRAN **[SEL91]**, ITS6 **[FRA09]**, PENELOPE **[SAL15],** EGSnrc **[KAW01]**, EGS5 **[HIR05]**, MCNP6 **[HUG14]**, GEANT4 **[AGO03, ALL16]** (module MicroElec **[RAI14]**), FLUKA **[BAT16]** et CASINO **[DEM11]**. Toutefois, ces codes ont été initialement développés pour le transport des électrons de haute énergie et ne sont pas adaptés aux basses énergies. Les codes ETRAN, ITS6, EGSnrc, EGS5, FLUKA ne permettent pas de traiter le transport des électrons en dessous de 1 keV, et les codes PENELOPE et CASINO en dessous de 50 eV. Seuls les codes MCNP6 (dernière version **[HUG14]**) et GEANT4 permettent de modéliser le transport des électrons à plus basse énergie, avec une limite respective de 10 eV et 16 eV. Toutefois, à notre connaissance, aucun de ces deux codes n'a été utilisé pour calculer les rendements d'émission des électrons secondaires. Par ailleurs, dans la dernière version de GEANT4 (10.3) le module MicroElec, développé par le CEA est spécifique au silicium.

D'autres codes spécifiques au transport des électrons de basse énergie, mais non mis à disposition de la communauté scientifique, ont également été développés par différents auteurs. Nous pouvons citer les codes de Kuhr et Fitting **[KUH99]**, Ding et coll. **[DIN02, MAO08]**, Ganachaud et Cailler **[GAN79]**, Palov et coll. **[PAL98]**, Dapor et coll. **[DAP17]**, Kieft et Bosch **[KIE08]**, et Nishimura et coll. **[NIS94]**, qui traitent l'ensemble

des interactions des électrons dans un solide et permettant ainsi de calculer des rendements d'émission d'électrons secondaires en accord avec les données expérimentales de la littérature. Cependant, à notre connaissance, ces codes, excepté peut-être celui de Kieft et Bosch **[KIE08]**, ne permettent pas la modélisation du transport des électrons dans des géométries 3D complexes, et en conséquence d'étudier l'effet de la rugosité à la surface des matériaux.

L'ONERA, en partenariat avec le CNES, a développé son propre code de transport pour les électrons à basse énergie : OSMOSEE pour Onera Simulation MOdel for Secondary Electron Emission **[ROU13]**. Le code OSMOSEE a été validé pour des électrons d'énergies entre 10 eV et 2 keV par comparaison avec les données expérimentales du dispositif de mesures DEESSE de l'ONERA. Toutefois, ce code est spécifique à l'aluminium et les modèles implémentés pour décrire les interactions inélastiques ne sont pas généralisables à d'autres matériaux. Par ailleurs, il ne permet pas la modélisation de géométries 3D complexes.

Dans un effort commun entre l'ONERA, le CNES et le CEA, ces travaux de thèse s'appuient sur le développement du code OSMOSEE et du module MicroElec implémenté par le CEA dans le code GEANT4.

1.4. OBJECTIFS ET DÉMARCHE DE LA THÈSE

Afin d'obtenir une meilleure compréhension du transport des électrons à basse énergie pour les applications spatiales, l'objectif de ces travaux de thèse est d'étendre le code OSMOSEE, développé par l'ONERA et le CNES, et le module MicroElec, développé par le CEA, à différents matériaux, et ainsi d'obtenir un outil de simulation numérique capable de modéliser le transport des électrons dans les matériaux jusqu'à 10 eV, à l'échelle nanométrique, et dans des géométries 3D complexes.

Pour réaliser cet objectif, la première étape a consisté à identifier les caractéristiques des différentes interactions que peuvent réaliser les électrons dans un solide (chapitre 2). La principale difficulté est, qu'à basse énergie, le transport des électrons dépend fortement de la structure des bandes électroniques des solides. Afin de généraliser les modèles physiques associés aux différentes interactions des électrons, nous avons choisi de décrire ces interactions par un modèle utilisant les fonctions diélectriques (chapitre 3) **[NIK12, VAL12]**. Ces fonctions, en étant déterminées à partir de la

mesure des indices optiques, pour lesquels il existe des bases de données **[PALI97]**, permettent de s'affranchir de la disparité de structure électronique des matériaux, et ainsi de modéliser à la fois les métaux, les semi-conducteurs et les isolants. Nous nous sommes intéressés à trois matériaux : l'aluminium, l'argent et le silicium.

La version existante du code OSMOSEE, validée pour l'aluminium à basse énergie, a permis d'obtenir de précieux éléments de comparaison pour l'implémentation du modèle des fonctions diélectriques. Dans la logique de la version existante, nous avons choisi de traiter séparément chacune des interactions entre les électrons. La validation de cette étape s'appuie sur les calculs de deux grandeurs caractéristiques du transport : le libre parcours moyen et le pouvoir d'arrêt.

Dans une deuxième étape, les simulations du code OSMOSEE et du module MicroElec ont été comparées avec des mesures expérimentales au dispositif DEESSE de l'ONERA **[GIN15]** et des données de la littérature, en particulier avec les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** qui nous semblent les plus fiables des bases de données (chapitre 4). Les résultats de ces simulations ont permis une meilleure compréhension de la physique de l'émission électronique à basse énergie, et offrent des perspectives intéressantes pour mieux comprendre l'effet de dose ionisante dans les composants microélectroniques.

Pour finir, la validation du module MicroElec dans le cas de matériaux théoriques nous a permis d'étudier l'effet de structures morphologiques simples, telles que les rainures ou les damiers, sur le rendement d'émission électronique (chapitre 5). Les résultats de ces simulations offrent des perspectives intéressantes pour limiter l'effet multipactor dans les composants radiofréquences.

CHAPITRE 2 : PHYSIQUE DE L'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE ET CODES DE TRANSPORT DE MONTE-CARLO À BASSE ÉNERGIE

2.1. INTRODUCTION

Lorsqu'un électron arrive sur un solide, il peut, tout d'abord, être réfléchi par la surface de ce solide ou la traverser et pénétrer à l'intérieur du solide. Ces électrons incidents, aussi appelés « électrons primaires », peuvent, au cours de leur déplacement dans le solide, interagir avec les noyaux ou les électrons des atomes du solide. Lors de ces interactions, les électrons primaires vont être déviés de leur trajectoire et perdre de l'énergie. Dans le cas d'une interaction avec un électron du solide, l'électron primaire va transmettre une partie de son énergie et de son moment à l'électron du solide. Cet électron appelé « secondaire » va être éjecté de son atome et mis en mouvement dans le solide. Il va alors pouvoir à son tour interagir avec les noyaux et les autres électrons des atomes du solide et être à l'origine d'une cascade d'électrons dans le solide, telle que représentée de manière simplifiée sur la **FIGURE 2.1**.

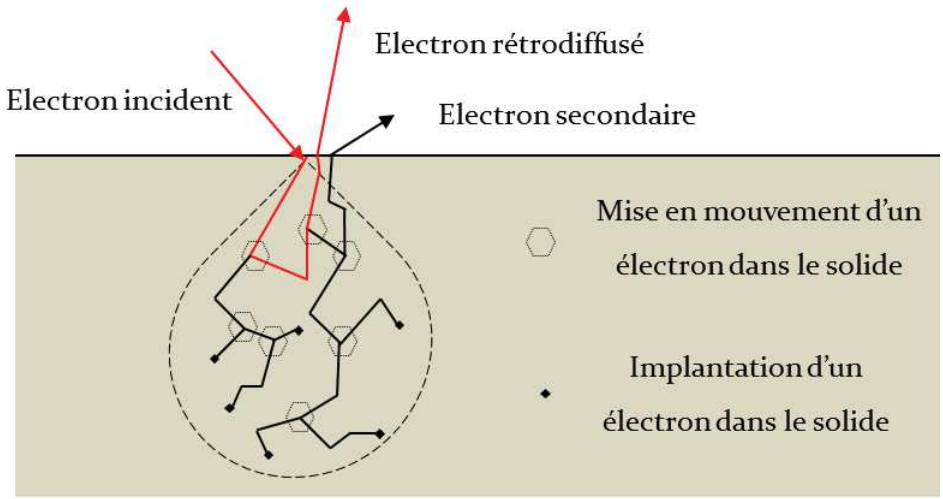


FIGURE 2.1. Schéma simplifié du transport des électrons dans un solide.

S'ils sont situés suffisamment près de la surface, les électrons primaires et secondaires peuvent s'en échapper. Un électron primaire qui s'échappe du solide est appelé « électron rétrodiffusé ».

Nous pouvons dès lors comprendre, avec la grande quantité de secondaires mis en mouvement, comment un matériau peut émettre plus d'électrons qu'il n'en reçoit. S'ils ne s'échappent pas du solide, les électrons perdent leur énergie jusqu'à s'y implanter, ce qui met fin à la cascade électronique.

Tous les électrons secondaires de la cascade électronique ont été arrachés à un atome de la cible et correspondent à la création de paires électrons-trous. Si en présence d'un champ électrique, la quantité importante de charges créées par ces interactions est collectée, elle va pouvoir perturber le fonctionnement des composants électroniques et être à l'origine de défaillances dans les composants microélectroniques **[AKK09, VAL12]**. Nous voyons donc qu'obtenir une meilleure compréhension du transport des électrons à basse énergie n'est pas seulement utile pour étudier les électrons qui sont émis par les matériaux, mais ouvre également la voie à de nombreuses perspectives pour étudier les effets des électrons qui traversent ou s'implantent dans les matériaux.

2.1.1. ÉLECTRONS RÉTRODIFFUSÉS ET SECONDAIRES

L'étude de l'émission électronique a montré que les électrons rétrodiffusés et les électrons secondaires formaient deux populations d'électrons distinctes **[JOY08, GIN15]**. La FIGURE 2.2 montre ces deux rendements pour le silicium à travers les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** et les simulations Monte-Carlo de Kurh et Fitting **[KUH99]**. D'après ces données, nous pouvons voir qu'entre 100 eV et 1 keV, la plupart des électrons émis sont des électrons secondaires. Afin de mieux comprendre ce résultat, nous pouvons nous intéresser à l'énergie des électrons émis qui est décrite par les spectres en énergie.

Un spectre en énergie est défini comme la répartition des électrons émis par un solide en fonction de leur énergie E dans le vide. La FIGURE 2.3 présente le spectre en énergie des électrons incidents d'énergie E_0=1 keV pour le silicium. Nous pouvons constater sur ce spectre que les électrons rétrodiffusés et les électrons secondaires forment des populations distinctes.

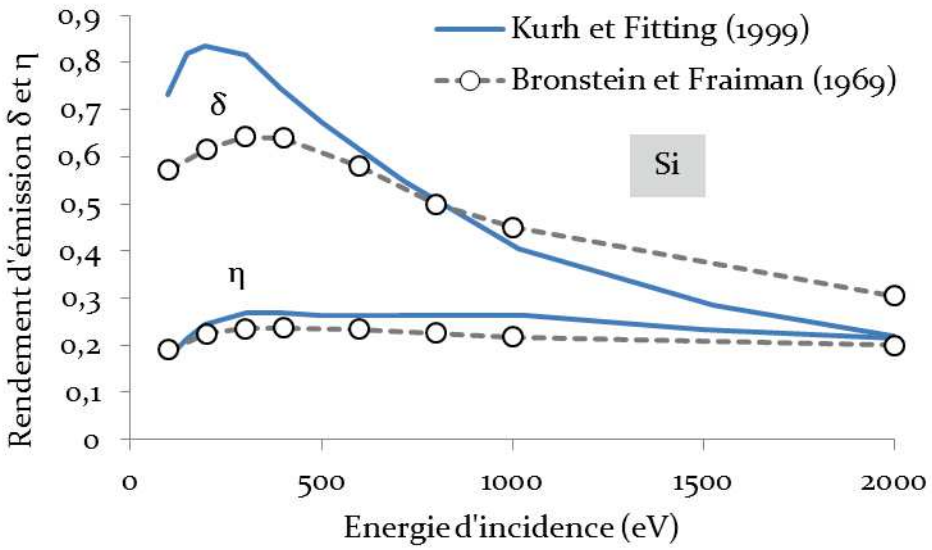


FIGURE 2.2. Rendement d'émission des électrons secondaires et des électrons rétrodiffusés du silicium. Les données de Bronstein et coll. [BRO69] sont des mesures sur des couches minces évaporées *in situ* sous ultravide. Les données de Kurh et Fitting [KUH99] sont issues de simulations Monte-Carlo.

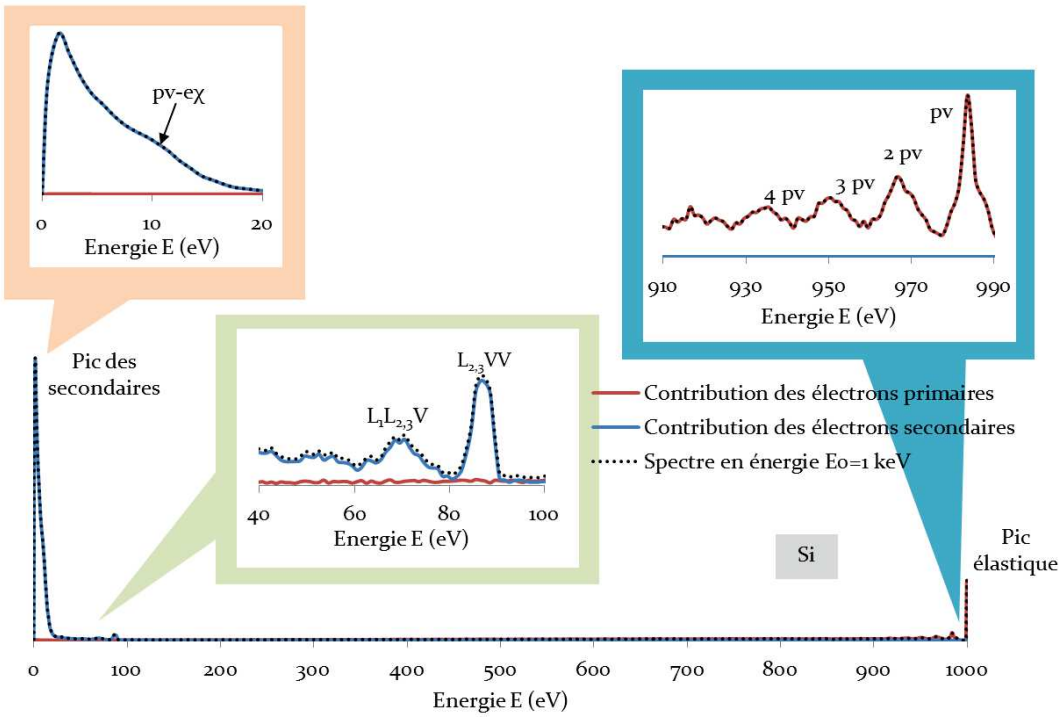


FIGURE 2.3. Spectre en énergie pour le silicium pour des électrons d'énergie d'incidence de E_0=1 keV. Les notations pv et $L_{2,3}VV$ désignent le plasmon de volume et la transition de la couche $L_{2,3}$ à la bande de valence. La notation eχ désigne l'affinité électronique du matériau. Les spectres sont issus des simulations du code OSMOSEE. Ils sont donnés dans cette partie à titre d'illustration pour avoir une unique courbe. Des spectres similaires peuvent être trouvés dans les travaux de Kurh et Fitting [KUH99].

La plupart des électrons rétrodiffusés ont une énergie plus élevée que les électrons secondaires. Cette énergie est par ailleurs assez proche de l'énergie E_0 des électrons incidents. Cela montre que la plupart des électrons rétrodiffusés sont des électrons qui ont perdu peu d'énergie dans le solide. Au contraire, la FIGURE 2.3 nous indique que la plupart des électrons secondaires sont émis avec une énergie comprise entre 2 et 5 eV **[KUH99, GIN15]**. Cela s'explique, d'une part, par le fait que les électrons secondaires sont créés avec une énergie d'origine plus faible que les électrons primaires, et d'autre part, par le fait que les électrons secondaires sont créés tout le long de la trajectoire des électrons primaires. En conséquence, les électrons secondaires qui sont créés en profondeur dans le solide vont perdre la plus grande partie de leur énergie en interagissant avec les électrons du solide lors de leur déplacement avant d'atteindre la surface. Les électrons secondaires qui s'échappent du solide proviennent donc des premiers nanomètres du solide **[KLA74, FERR82, ROU13]**.

Historiquement, les expérimentateurs qui cherchent à séparer ces populations d'électrons considèrent une limite de 50 eV. La norme veut que les électrons rétrodiffusés correspondent aux électrons qui possèdent une énergie supérieure à 50 eV et les électrons secondaires sont ceux qui possèdent une énergie inférieure à 50 eV. Si cette approximation est couramment utilisée par les expérimentateurs pour les mesures à haute énergie, nous pouvons anticiper en regardant le spectre en énergie de la FIGURE 2.3 que cette approximation n'est plus valide à basse énergie **[ROU13]**.

2.1.2. DISTRIBUTION EN ÉNERGIE DES ÉLECTRONS ÉMIS

Si nous reprenons le spectre en énergie de la FIGURE 2.3, nous pouvons remarquer que ce spectre présente différents pics. Ces pics sont caractéristiques du matériau et correspondent aux énergies les plus probables pour les électrons rétrodiffusés et secondaires. La présence de pics nous indique qu'il existe différents types d'interactions entre les électrons dans un solide. On distingue, en général, deux grands types d'interactions : les interactions élastiques qui désignent les interactions entre un électron et un noyau, et les interactions inélastiques qui correspondent aux interactions des électrons incidents avec les électrons du matériau.

Sur le spectre en énergie de la FIGURE 2.3, le pic proche de l'énergie d'incidence des électrons primaires correspond aux électrons incidents qui ont subi uniquement des

interactions élastiques. En effet, l'interaction entre deux particules de masse très différentes (électron incident vs. noyau) conduit à des transferts d'énergie très faibles. Ces électrons sont qualifiés de « rétrodiffusés élastiques » et le pic qui leur est associé de « pic élastique ». Tous les autres pics sont associés aux interactions inélastiques pour lesquels les transferts d'énergies seront maximaux (électron incident vs. électron du solide).

Parmi ces interactions, on distingue les interactions avec les électrons faiblement liés (interactions individuelles, interactions collectives de volume, interactions collectives de surface), les interactions avec les électrons de cœur (ionisation, désexcitation Auger), et les interactions avec les vibrations du réseau formé par les atomes (phonons). Les pics de haute énergie proches du pic élastique correspondent aux électrons rétrodiffusés après avoir réalisé un nombre limité d'interactions avec les électrons faiblement liés du solide. Les interactions avec des électrons faiblement liés isolés dites « interactions individuelles » correspondent à un fond continu sur le spectre en énergie. Au contraire, les interactions dites « collectives » au cours desquelles l'électron incident perd son énergie en excitant une oscillation du plasma d'électrons libres (plasmon) sont associées à des pics bien marqués, notés pv sur la FIGURE 2.3 pour les interactions de volume. A plus basse énergie, entre 50 et 70 eV, les pics correspondent aux électrons secondaires émis lors des interactions entre les électrons primaires et les électrons de cœur des atomes du solide.

Avant de décrire plus en détail ces différentes interactions (énergie transférées autorisées, conditions d'existence, etc.), nous allons définir les grandeurs principales qui leur sont associées.

2.2. GRANDEURS ASSOCIÉES AUX INTERACTIONS

Les grandeurs les plus appropriées pour décrire les interactions des électrons dans la matière sont la section efficace et le libre parcours moyen. La section efficace correspond à une probabilité d'occurrence de l'interaction. Nous allons voir que cette grandeur peut être définie de différentes façons selon le formalisme physique utilisé (mécanique classique ou mécanique quantique). Le libre parcours moyen, quant à lui, caractérise la distance qui sépare deux interactions successives. Nous allons voir que ces deux grandeurs sont liées.

2.2.1. REPRÉSENTATION DU PROCESSUS

De manière simplifiée, une interaction entre deux électrons peut être modélisée par la FIGURE 2.4. Lors d'une telle interaction, un électron primaire d'énergie E_0 et de moment $\hbar k_0$ transmet une partie de son énergie $\hbar\omega$ et de son moment $\hbar q$ à un électron secondaire d'énergie initiale E_i. Après l'interaction, l'électron primaire a une énergie E_1 et un moment $\hbar k_1$. L'électron secondaire possède une énergie E_s.

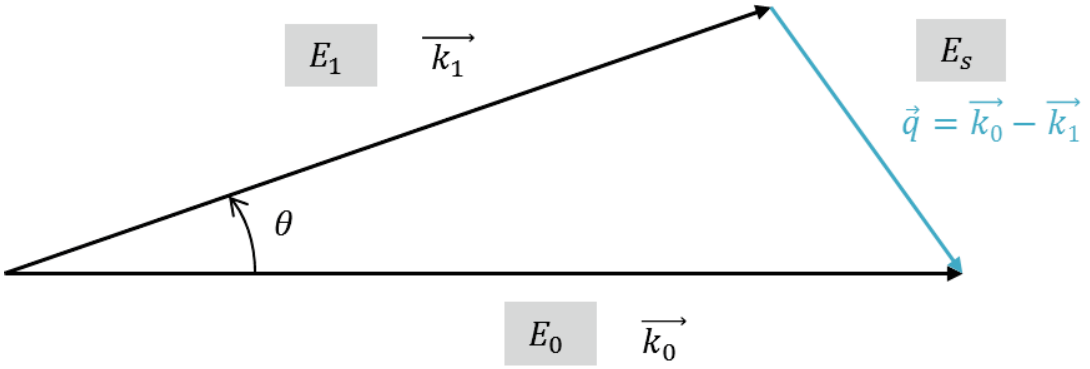


FIGURE 2.4. Représentation des transferts d'énergie et de moments lors d'une interaction entre un électron incident et un électron du solide. Les notations E_0 et $\hbar k_0$ (respectivement E_1 et $\hbar k_1$) correspondent à l'énergie et au moment de l'électron incident avant (respectivement après) l'interaction. Les notations E_s et $\hbar q$ correspondent à l'énergie et au moment de l'électron du solide après l'interaction [RAE65].

Les lois de conservation en énergie et en moment (2. 1), (2. 2) et (2. 3) nous donnent les relations entre les grandeurs E_0, $\hbar k_0$, E_1, $\hbar k_1$, E_i, E_s et $\hbar q$:

$$E_1 = E_0 - \hbar\omega \quad \textbf{(2. 1)}$$

$$E_s = E_i + \hbar\omega \quad \textbf{(2. 2)}$$

$$\overrightarrow{k_1} = \overrightarrow{k_0} - \vec{q} \quad \textbf{(2. 3)}$$

L'équation (2. 3) peut se réécrire, par projection des vecteurs, sous la forme :

$$q^2 = {k_0}^2 + {k_1}^2 - 2k_0k_1cos\theta \quad \textbf{(2. 4)}$$

Dans le cas des interactions élastiques, les transferts d'énergie sont très faibles et seront négligés. Il n'y a évidemment aucun électron secondaire mis en mouvement. Nous ne considérons alors que les équations (2. 3) et (2. 4) sur le transfert de moment.

2.2.2. SECTION EFFICACE D'INTERACTION

2.2.2.1. DESCRIPTION EN MÉCANIQUE CLASSIQUE

Considérons un faisceau d'électrons de flux F_i dirigé sur un axe Oz, tel qu'indiqué sur la FIGURE 2.5. Pour simplifier le problème, nous supposons que les électrons du faisceau interagissent avec un unique noyau ou un unique électron que nous appelons « centre diffuseur ». Lors de l'interaction, les électrons du faisceau incident sont soumis au champ coulombien du centre diffuseur. Nous notons le potentiel associé à l'interaction V. Si nous souhaitons connaître le nombre d'électrons dn par unité de temps qui ont interagi avec le centre diffuseur et sont diffusés dans un angle solide $d\Omega$, défini selon les angles θ et φ, nous pouvons positionner un détecteur derrière le centre diffuseur.

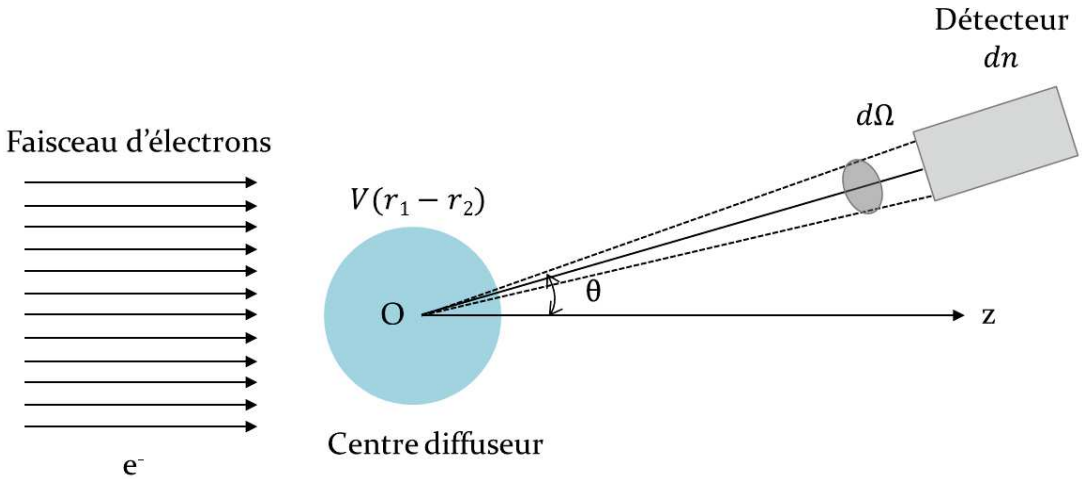


FIGURE 2.5. Représentation simplifiée de la diffusion d'un faisceau d'électrons par un centre diffuseur. Le potentiel associé à l'interaction est centré en O et noté $V(r_1 - r_2)$. Afin de détecter les électrons diffusés dans l'angle solide $d\Omega$, un détecteur est placé derrière le centre diffuseur. L'axe du détecteur est décalé d'un angle θ par rapport à l'axe du faisceau d'électrons.

Afin de calculer dn, nous devons formuler plusieurs hypothèses **[COH94].** Premièrement, le faisceau d'électrons doit être plus large que la zone d'action du potentiel du centre diffuseur, et le flux d'électrons incidents F_i suffisamment faible pour que les interactions entre les électrons incidents soient négligeables. Deuxièmement, nous supposons que les interactions sont décrites par une énergie potentielle $V(r_1 - r_2)$ qui ne dépend que de la position relative $r = r_1 - r_2$ entre l'électron incident (r_1) et le centre diffuseur (r_2) qui est ici placé en O. C'est le cas, notamment, du potentiel de Coulomb.

Dans ces hypothèses, nous pouvons voir que le nombre d'électrons dn qui traversent le détecteur par unité de temps dépend directement du flux d'électrons incidents F_i et de la position du détecteur, c'est-à-dire de l'angle solide $d\Omega$ défini par les angles θ et φ. Dans un solide qui comporte N_{cd} centres diffuseurs, mais en gardant l'hypothèse qu'un électron n'interagit qu'avec un unique centre diffuseur (pas de diffusion multiple), nous pouvons écrire ce résultat par l'équation (2. 5) :

$$dn = N_{cd} F_i \frac{d\sigma(\theta, \phi)}{d\Omega} d\Omega \qquad \textbf{(2. 5)}$$

Le coefficient de proportionnalité $d\sigma(\theta, \varphi)/d\Omega$ est, par définition, la section efficace différentielle. La section efficace $\sigma(\theta, \varphi)$ est définie par intégration de l'équation (2. 5). Cette grandeur a les dimensions d'une surface. Cela signifie que le nombre de particules dn arrivant par unité de temps sur le détecteur est égal au nombre de particules qui traversent par unité de temps une surface $\sigma(\theta, \varphi)$.

$$\sigma(\theta, \phi) = \int \frac{d\sigma(\theta, \phi)}{d\Omega} d\Omega \qquad \textbf{(2. 6)}$$

Les définitions que nous venons de donner pour la section efficace différentielle $d\sigma(\theta, \varphi)/d\Omega$ et la section efficace totale $\sigma(\theta, \varphi)$ correspondent à celles de grandeurs d'un problème de mécanique classique. Cependant, nous ne pouvons pas considérer les électrons uniquement comme des particules. C'est ce qu'ont montré récemment Bach et coll. **[BAC13]** en mettant en pratique l'expérience dite « des balles de fusils » pensée par Feynman en 1965 **[FEY14]**. Le résultat de cette expérience, similaire aux fentes d'Young pour les photons, montre clairement que les électrons ont un caractère ondulatoire.

2.2.2.2. DESCRIPTION EN MÉCANIQUE QUANTIQUE

En mécanique quantique, l'électron est considéré comme une particule délocalisée, et est, en ce sens, décrit par une fonction d'onde $\psi(\vec{r},t)$ qui délimite la zone de l'espace dans laquelle il est probable de le trouver. Dans l'hypothèse précédente, où l'électron est situé suffisamment loin du centre diffuseur avant l'interaction, nous pouvons considérer que la fonction d'onde $\psi(\vec{r},t)$ est une onde plane de la forme (2. 7) :

$$\psi(\vec{r},t) = \psi_0 \, e^{i(\overrightarrow{k_0}\vec{r}-\frac{E}{\hbar}t)} \tag{2. 7}$$

où ψ_0 est l'amplitude de l'onde de l'électron incident, $\overrightarrow{k_0}$ son vecteur d'onde, et $\vec{r}$ le vecteur position de l'électron à l'instant t. Au cours de l'interaction avec le centre diffuseur, l'onde incidente a une certaine probabilité d'être diffusée dans la direction θ et le détecteur placé dans cette direction a une certaine probabilité d'enregistrer l'électron. L'onde sortante $\psi_s(\vec{r},t)$ se comporte à grande distance comme une onde sphérique de la forme :

$$\psi_s(\vec{r},t) = \psi_0 f(\theta,\varphi) \, \frac{e^{i(\overrightarrow{k_1}\vec{r}-\frac{E}{\hbar}t)}}{r} \tag{2. 8}$$

avec $\overrightarrow{k_1}$ le vecteur d'onde de la particule diffusée et $f(\theta,\varphi)$ le facteur de diffusion exprimé en coordonnées sphériques (r,θ,φ). Le facteur de diffusion $f(\theta,\varphi)$ dépend du potentiel d'interaction $V(r)$ entre le centre diffuseur et l'électron incident. Les calculs de mécanique quantiques **[COH94]** montrent que la section efficace différentielle $d\sigma(\theta,\varphi)/d\Omega$ est donnée par la relation (2. 9) :

$$\frac{d^2\sigma(\theta,\varphi)}{d\theta d\varphi} = |f(\theta,\varphi)|^2 \tag{2. 9}$$

Cette définition est, par exemple, utilisée pour déterminer les sections efficaces des interactions élastiques dans le modèle d'analyse des ondes partielles. Dans le cas des interactions inélastiques, il est possible d'utiliser une troisième définition.

D'après les lois de conservations données dans la section 2.2.1, nous voyons que, pour une interaction donnée, le nombre d'électrons dn qui atteignent le détecteur par unité de temps et qui sont diffusés dans l'angle solide $d\Omega$ après une interaction iné-

lastique est équivalent à $dn = n_i\,\Gamma(\theta,\phi)d\Omega$ avec n_i le nombre d'électrons incidents et $\Gamma(\theta,\phi)$ la probabilité par unité de temps qu'un électron atteigne un état final dans l'angle solide $d\Omega$ du détecteur. Le terme $\Gamma(\theta,\phi)$ est associé à une probabilité intégrée sur l'ensemble des transitions possibles en énergie transférée $\hbar\omega$. La probabilité par unité de temps qu'un électron incident passe d'un état initial à un état final, en étant dans l'angle solide $d\Omega$ après l'interaction, et transfère une énergie $\hbar\omega$ pendant l'interaction est appelée taux de transition et notée τ. En tenant compte des différents transferts en énergie $\hbar\omega$, nous pouvons considérer la relation : $\Gamma(\theta,\phi) = \int \tau(\theta,\phi,\hbar\omega)d\hbar\omega$.

En utilisant cette définition, et par analogie avec le problème présenté par la FIGURE 2.5, nous voyons que le taux de transition τ des électrons est proportionnel au flux d'électrons F_i arrivant sur le centre diffuseur dans l'état initial. La définition de la section efficace différentielle $d^2\sigma(\theta,\varphi)/d\Omega d(\hbar\omega)$ pour une unique transition (avec $n_i = 1\ et\ N_{cd} = 1$) est alors donnée par la relation (2. 10) :

$$\frac{d^2\sigma(\theta,\phi)}{d\Omega d(\hbar\omega)} = \frac{\tau}{F_i} \qquad \textbf{(2. 10)}$$

Dans le cas des interactions inélastiques, notre problème revient finalement à calculer le taux de transitions τ d'un état initial à un état final. Pour cela, la démarche consiste à résoudre l'équation de Schrödinger dépendante du temps qui décrit la perturbation des électrons du solide suite à l'envoi d'un électron incident **[PIN64]** (annexe 2). Le calcul est fastidieux et le résultat, n'ayant pas de solution exacte, dépend des approximations utilisées.

2.2.3. LIBRE PARCOURS MOYEN

Le libre parcours moyen associé à une interaction λ correspond à la distance que parcourt l'électron entre deux interactions successives. Considérons un faisceau d'électrons projeté vers une cible de tranche infinitésimale de dimensions $L \times L \times dx$ qui contient un nombre N_{cd} de centres diffuseurs par unité de volume. L'aire occupée par les centres diffuseurs est $N_{cd}\sigma L^2 dx$ où σ est la section efficace que nous avons définie précédemment. La probabilité P qu'un électron soit arrêté par l'un des centres diffuseurs de la tranche est donnée par la relation (2. 11).

$$P = N_{cd}\sigma dx \tag{2. 11}$$

La diminution d'intensité $dI(x)$ du faisceau d'électrons passant à travers la tranche d'épaisseur dx est égale à l'intensité $I(x)$ du faisceau incident sur la tranche en x multipliée par la probabilité de collision P (2. 12). Par intégration, nous déduisons pour $I(x)$ l'expression (2. 14) où I_0 est l'intensité initiale du faisceau incident.

$$dI(x) = -I(x)N_{cd}\sigma dx \tag{2. 12}$$

$$I(x) = I_0 e^{-N_{cd}\sigma x} \tag{2. 13}$$

La probabilité $dP(x)$ qu'un électron soit arrêté dans la tranche entre x et $x + dx$ est donnée par :

$$dP(x) = \frac{I(x) - I(x + dx)}{I_0} = N_{cd}\sigma e^{-N_{cd}\sigma x} \tag{2. 14}$$

Le libre parcours moyen étant défini comme la distance moyenne entre deux collisions, nous déduisons son expression (2. 15). Nous pouvons voir que le libre parcours est directement lié à la section efficace $\sigma(\theta, \varphi)$ et à la densité de centres diffuseurs N_{cd}.

$$\lambda = \frac{\int_0^\infty x dP(x) dx}{\int_0^\infty dP(x) dx} = \frac{1}{N_{cd}\sigma} \tag{2. 15}$$

2.3. DESCRIPTION DES DIFFÉRENTES INTERACTIONS DES ÉLECTRONS DANS UN SOLIDE

Si nous reprenons la définition du processus d'interaction de la section 2.2.1, nous voyons qu'afin de décrire les différentes interactions des électrons dans le solide, nous devons déterminer les caractéristiques des transferts en énergie et en moments qui ont lieu lors de ces interactions.

2.3.1. INTERACTIONS ÉLASTIQUES

Les interactions élastiques sont dues au champ coulombien induit par les noyaux des atomes du solide et les électrons de cœur fortement liés à ces noyaux. Dans la suite de ce manuscrit, l'ensemble formé par le noyau et les électrons de cœur est, par convention, appelé « cœur ionique ». En raison de la différence de masse entre l'électron et le noyau de l'atome, les interactions élastiques sont caractérisées par une très faible perte d'énergie, inférieure au millième d'eV. À l'opposé, l'angle de déviation de l'électron lors de l'interaction dépend fortement de son énergie d'incidence.

Lorsqu'un électron interagit avec un atome isolé, il est non seulement soumis au champ coulombien de ce noyau mais également à celui de ses électrons. Dans un solide, il faut ajouter à ces champs ceux des noyaux voisins et de leurs électrons. En mécanique quantique, les interactions élastiques sont décrites en prenant en compte le champ du noyau et celui des électrons qui l'entourent par la méthode dite d'analyse en ondes partielles qui a été perfectionnée par Mott **[MOT65]**. Cette méthode, en lien avec le premier calcul de la section efficace de la section 2.2.2.2, dépend fortement des approximations utilisées pour modéliser les potentiels associés aux champs coulombiens des atomes et de leurs électrons **[CZY90, SAL05]**. Il s'agit d'une méthode complexe à mettre en œuvre et qui nécessite une grande quantité de calculs laborieux, cependant, plusieurs auteurs **[BER00, JAB03]** ont regroupés les calculs des sections efficaces différentielles $d\sigma/d\Omega$ nécessaires au fonctionnement des codes de transport d'électrons dans des bases de données mises à disposition de la communauté scientifique.

Nous pouvons citer celles de Berger et Seltzer **[BER00]** et de Jablonski et coll. **[JAB03]** qui sont mises à disposition par l'Institut National des Standards et de Technologie (NIST). La première regroupe des calculs pour des électrons d'énergie entre 1 keV et 100 MeV. La seconde regroupe des données pour des électrons entre 50 eV et 300 keV. Toutefois, les modèles associés à ces deux bases de données ne sont pas valides à basse énergie **[SAL05]**. Jablonski et coll. ont amélioré leur base de données en créant le logiciel ELSEPA — ELastic Scattering of Electrons and Positrons by Atoms — qui est basé sur les calculs de Salvat et coll. **[SAL05]**. Cette base de données regroupe des calculs pour les électrons d'environ 10 eV à 1 GeV pour tous les éléments de numéro atomique Z de 1 à 103. Toutefois, le modèle physique utilisé pour les calculs des énergies inférieures à 50 eV est remis en question par certains auteurs **[AKK09, VAL12]**. Pour les énergies inférieures à 50 eV, d'autres auteurs comme Akkerman et coll.

[AKK09] et Valentin et coll. **[VAL12]** utilisent des calculs *ab initio* considérés comme plus précis **[BET05]**.

La base de données ELESPA ayant permis d'obtenir des résultats en bon accord avec les données expérimentales pour l'aluminium dans la version existante du code OSMOSEE, nous avons choisi de la conserver pour décrire les interactions élastiques. La FIGURE 2.6 présente les probabilités de déviation $d\sigma/d\Omega$ en coordonnées polaires de l'électron primaire lors d'une interaction élastique dans de l'aluminium pour plusieurs énergies calculées par Roupie **[ROU13]** d'après la base de données du code ELSEPA. Nous pouvons voir qu'un électron de basse énergie a une probabilité plus importante d'être fortement dévié, voire de réaliser un retour arrière ($|\theta| > 90°$), qu'un électron de haute énergie.

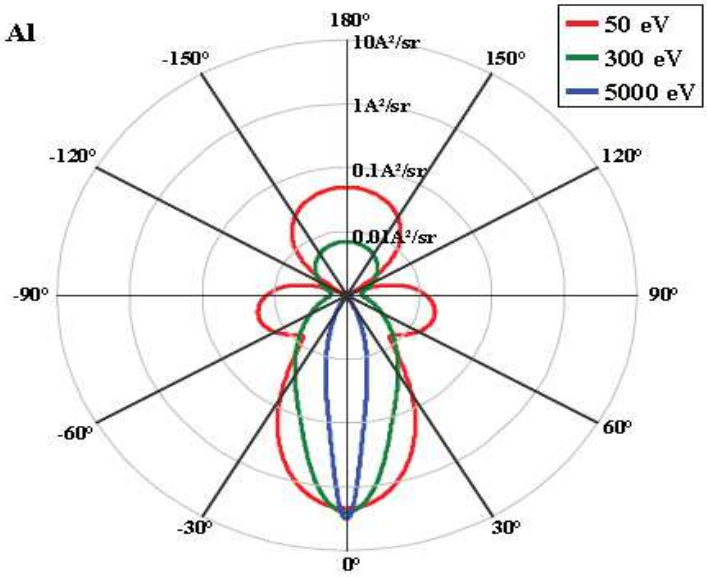


FIGURE 2.6. Représentation en coordonnées polaire de la probabilité (section efficace différentielle $d\sigma/d\Omega$ en Å²/sr) de déviation pour un électron réalisant une interaction élastique dans l'aluminium. Calculs de Roupie [ROU13] d'après la base de données ELSEPA.

2.3.2. INTERACTIONS INÉLASTIQUES

Lorsqu'un électron interagit avec les électrons du solide, il peut interagir avec deux populations d'électrons : les électrons de cœur fortement liés aux noyaux des atomes et les électrons de valence faiblement liés aux noyaux des atomes. Les propriétés de ces deux populations d'électrons sont décrites par la théorie des bandes. Dans un souci de clarté, nous rappelons dans la section suivante quelques notions fondamentales

de mécanique quantique. Une description plus détaillée peut être trouvée dans différents ouvrages de référence **[KIT71, COH94]**.

2.3.2.1. DESCRIPTION DES SOLIDES DANS LA THÉORIE DES BANDES

Avant de regarder les propriétés électroniques des solides, nous devons nous intéresser aux propriétés des atomes isolés. Les électrons qui gravitent autour du noyau d'un atome isolé sont soumis, au cours de leur mouvement, à la force d'attraction coulombienne exercée par le noyau, mais aussi à la force de répulsion coulombienne exercée par chacun des autres électrons de l'atome. Chaque électron de l'atome est assimilable à un oscillateur qui possède une fréquence — et donc une énergie — propre **[COH94]**. Cette énergie dépend de l'orbitale sur laquelle se trouve l'électron.

2.3.2.1.1. NIVEAUX D'ÉNERGIE DE L'ATOME ISOLÉ

En observant les spectres d'émission, Bohr propose en 1913 un modèle dans lequel ces énergies sont quantifiées. Dans ce modèle, les niveaux d'énergie des électrons sont décrits par quatre nombres. Le premier est le nombre quantique principal $n \in [1; +\infty[$. Ce nombre décrit la distance de l'électron au noyau et correspond à la couche électronique de l'électron. Par convention, nous utiliserons les notations usuelles K pour $n = 1$, L pour $n = 2$, M pour $n = 3$, etc. Le deuxième nombre est le nombre quantique azimutal $\ell \in [0; n-1]$ qui décrit la forme de l'orbitale. Ce nombre correspond à la sous-couche électronique de l'électron. Chaque sous-couche contient $2n^2$ électrons. Par convention, nous utiliserons les notations usuelles s pour $\ell = 0$, p pour $\ell = 1$, d pour $\ell = 2$, etc. Les troisième et quatrième nombres sont le nombre quantique magnétique $m \in [-\ell;\ \ell]$ qui décrit l'orientation de l'orbitale de électron dans un champ magnétique extérieur, et le nombre quantique s qui décrit l'orientation du spin de l'électron. D'après le principe d'exclusion de Pauli, le nombre d'électrons de mêmes nombres quantiques (n, ℓ, m) situés sur une même orbitale est de deux au maximum. Cela signifie que les niveaux d'énergie occupés par les électrons de l'atome ne sont pas accessibles à un électron incident qui interagit avec l'atome. Lors de son implantation dans le solide, cet électron incident doit alors atteindre un niveau d'énergie plus élevé et inoccupé.

Au zéro absolu (T=0 K), les électrons de l'atome occupent les niveaux d'énergie les plus bas selon les règles définies par Klechskowski et Pauli **[COH94]**. On dit que l'atome est dans son état fondamental. Lorsque les électrons des couches périphériques de l'atome reçoivent de l'énergie (par exemple, par excitation thermique ou bombardement par un faisceau d'électrons), ils peuvent s'échapper de leur orbitale et passer sur une orbitale de niveau d'énergie plus élevée, à condition que celle-ci soit inoccupée pour respecter le principe d'exclusion de Pauli. La présence d'une lacune sur une orbitale électronique déstabilise l'atome. Ce dernier va chercher à retrouver son état fondamental stable en laissant l'électron retourner sur le niveau inférieur. Lorsque les électrons des couches périphériques et des couches de cœur reçoivent une énergie supérieure à l'énergie de liaison qui les lie à l'atome, ces électrons vont pouvoir s'échapper de l'atome (ionisation). Suite à la présence d'une lacune sur une orbitale de cœur, l'atome va se désexciter en recombinant ses électrons ou en émettant des photons. Ces mécanismes sont décrits en détail dans la section 2.3.2.3. Pour donner un ordre de grandeur, les énergies de liaisons des électrons faiblement liés sont de l'ordre de la dizaine d'eV, alors que celles des électrons de cœur sont de l'ordre de la centaine d'eV ou du keV.

2.3.2.1.2. PASSAGE DE L'ATOME ISOLÉ AU SOLIDE

Lorsque l'on passe d'un atome isolé à un solide, il faut prendre en compte le fait que chacun des atomes du solide est soumis à la force coulombienne des autres atomes. Si les atomes sont suffisamment éloignés les uns des autres, leurs niveaux d'énergie sont semblables à ceux des atomes isolés. Au contraire, lorsque les atomes se rapprochent, les orbitales des électrons sont perturbées par la présence des noyaux et des électrons voisins. Pour respecter le principe d'exclusion de Pauli, les niveaux d'énergie des atomes qui sont mis en commun, se subdivisent. Pour un groupe de N atomes placés suffisamment près les uns des autres, chacun des niveaux d'énergie des atomes est subdivisé en N niveaux. Dans un solide, les niveaux des électrons faiblement liés, qui participent à la liaison entre les atomes, sont si près les uns des autres qu'ils deviennent indiscernables et forment des continuums d'énergie de niveaux autorisés (bandes de valence et de conduction) et de niveaux inaccessibles (bande interdite), comme illustré sur la FIGURE 2.7.

Les niveaux des électrons de cœur sont séparés en bandes de faible largeur. Toutefois, comme ces électrons sont fortement liés au noyau de l'atome, l'influence des

atomes voisins est beaucoup plus faible et nous considérons dans le cadre de cette thèse qu'ils restent discrets.

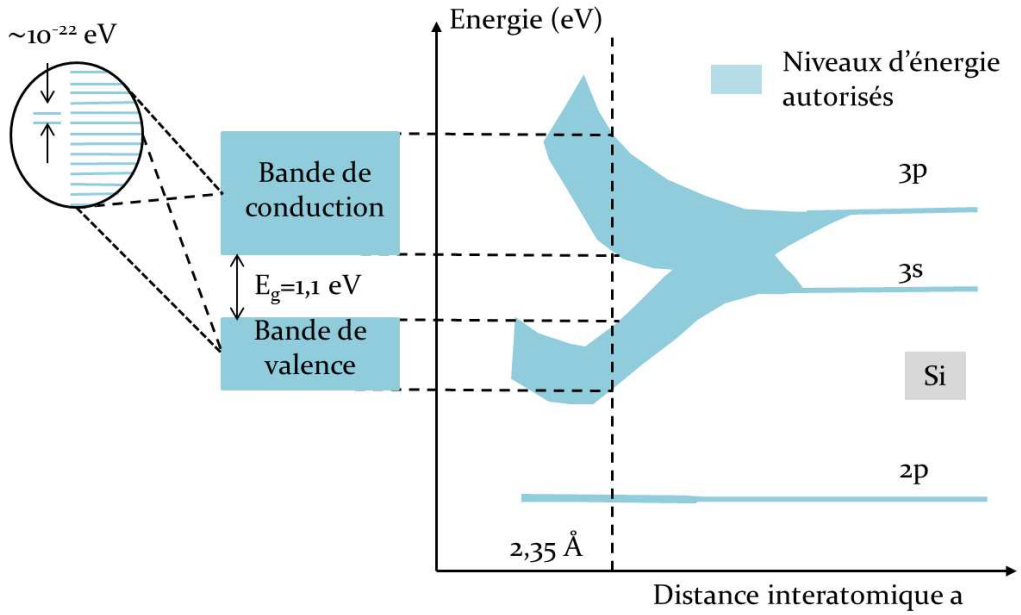


FIGURE 2.7. Représentation simplifiée du diagramme de bandes du silicium lors du passage d'un atome isolé au solide

L'agencement des différentes bandes et leur remplissage par les électrons définit les propriétés des matériaux. La FIGURE 2.8 présente les structures de bandes électroniques pour différents types de matériau : métaux, semi-conducteurs et isolants. Par définition, la bande de valence correspond à la dernière bande électronique complétement remplie à T=0 K. La bande de conduction correspond à la première bande électronique entièrement vide ou à la dernière bande électronique lorsque celle-ci est partiellement remplie.

Dans les métaux, la bande de conduction n'est pas entièrement remplie à température ambiante (T=300 K). Les électrons peuvent alors facilement passer d'un état occupé à un état inoccupé. Les électrons de la bande de conduction sont considérés comme libres et peuvent se déplacer dans l'ensemble du volume du solide. Dans cette hypothèse, ils ne ressentent pas l'effet des cœurs ioniques lors de leurs déplacements dans le solide, ni les effets des interactions avec les autres électrons faiblement liés du solide **[KIT71].** Le niveau d'énergie le plus élevé occupé par les électrons dans la bande

de conduction est le niveau de Fermi noté E_F sur la FIGURE 2.8. Dans les métaux simples, comme l'aluminium, les bandes de conduction et de valence se chevauchent. Cela nous permet de considérer une unique population d'électrons libres **[ROU13]**. Dans les métaux plus complexes, il existe des effets additionnels dus aux interactions entre les couches électroniques internes. Par exemple, les éléments de transitions et ceux qui les suivent immédiatement dans la classification périodique ont des couches électroniques d incomplètes qui sont caractérisées par de plus fortes énergies de liaison que les couches électroniques s et p des électrons périphériques **[SEK10, KIT71]**.

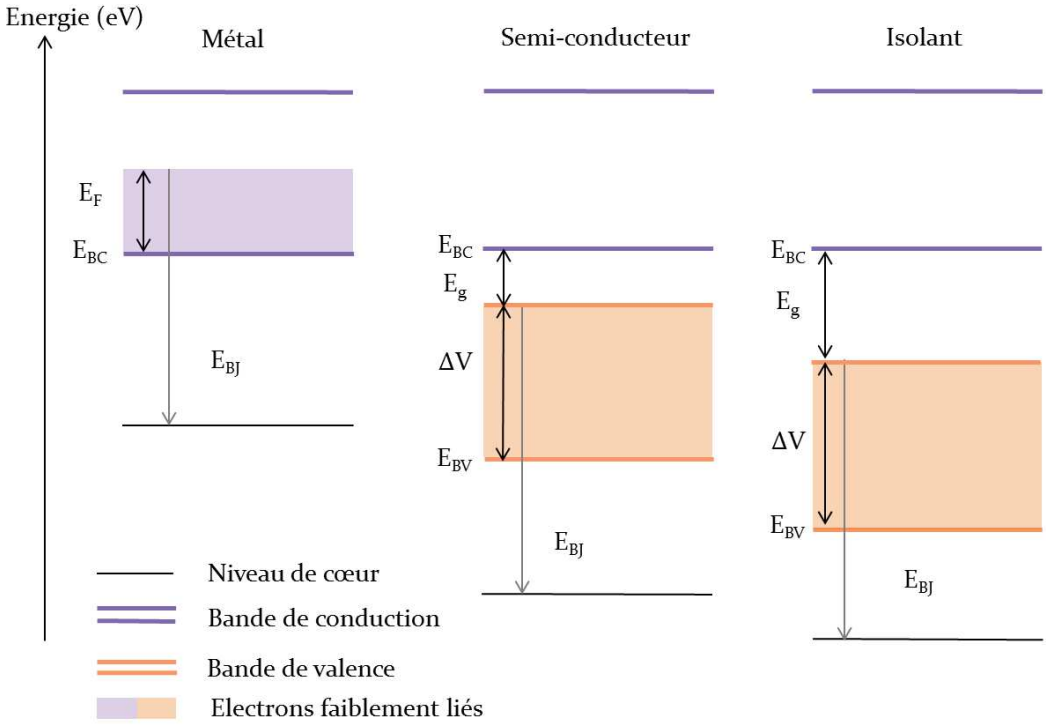


FIGURE 2.8. D'après [KIT71]. Schéma général des populations d'électrons faiblement liés selon la nature du matériau. Les notations E_F, E_{BC}, E_{BJ} désignent respectivement l'énergie de Fermi, le bas de la bande de conduction, l'énergie de liaison du niveau de cœur. Les notations E_g, ΔV, E_{BV} désignent respectivement l'énergie de la bande interdite, la largeur de la bande de valence et le bas de la bande de valence. Par convention, l'énergie E_{BJ} est donnée par rapport au niveau de Fermi dans un métal et par rapport au haut de la bande de valence dans un isolant.

Dans les semi-conducteurs et les isolants, la bande de conduction est séparée de la bande de valence par une bande interdite de largeur notée E_g sur la FIGURE 2.8. Au zéro absolu (T=0 K), la bande de conduction est entièrement vide et, la bande de va-

lence, entièrement ou presque entièrement remplie. Dans les semi-conducteurs, la bande interdite n'est pas très large (quelques eV), de sorte que le passage des électrons de la bande de valence à la bande de conduction est possible par excitation thermique. Ce n'est pas le cas dans les isolants où la bande interdite est si large (>6 eV) que le passage d'un électron n'est possible que lorsque le matériau est soumis à un fort champ électrique. Dans ces deux types de matériau, le passage des électrons de la bande de valence à la bande de conduction peut être aidé par les vibrations du réseau des atomes (phonons). Par convention, dans ces matériaux, le niveau de Fermi est situé au milieu de la bande interdite, et nous notons E_{BC} le bas de la bande de conduction.

2.3.2.1.3. RÉFÉRENCES EN ÉNERGIE ADOPTÉES

Dans la suite de ce manuscrit, nous considérons les références en énergies telles qu'indiquées sur la FIGURE 2.8. Afin de décrire les transferts d'énergie lors des interactions dans les métaux, nous avons choisi de prendre le bas de la bande de conduction comme référence en énergie. Ce choix a été fait pour garder une cohérence par rapport à la version existante du code OSMOSEE **[ROU13]**.

Par analogie, pour les semi-conducteurs, nous avons choisi de prendre le bas de la bande de valence comme référence en énergie. Il est possible de choisir d'autres références, en particulier le niveau de Fermi pour les métaux ou le haut de la bande de valence pour les semi-conducteurs. Ces références sont utilisées, par exemple, dans le module MicroElec du code GEANT4 **[VAL12]**.

2.3.2.2. INTERACTIONS AVEC LES ÉLECTRONS FAIBLEMENT LIÉS

Nous avons vu dans la section 2.1.2 que, sur les spectres en énergie, les pics de haute énergie proches du pic élastique correspondent aux électrons qui sont rétrodiffusés après avoir réalisé un nombre limité d'interactions avec les électrons faiblement liés du solide. On distingue deux types d'interactions entre un électron primaire et les électrons faiblement liés du solide : les interactions avec des électrons isolés dites « interactions individuelles » et les interactions dites « collectives » au cours desquelles l'électron incident perd son énergie en excitant une oscillation du plasma d'électrons libres appelée « plasmon ».

2.3.2.2.1. INTERACTIONS INDIVIDUELLES

Un électron primaire peut interagir avec un unique électron faiblement lié de la bande de conduction ou de la bande de valence d'un solide. Lors de cette interaction, comme décrit par la FIGURE 2.4 de la section 2.2.1, l'électron incident d'énergie E_0 et de moment $\hbar k_0$ transmet une partie de son énergie cinétique $\hbar\omega$ et de son moment $\hbar q$ à l'électron du solide d'énergie E_i. L'électron du solide est alors éjecté de son orbitale et envoyé sur un niveau d'énergie accessible E_s. Après l'interaction, l'électron incident a une énergie E_1 et un moment $\hbar k_1$. En prenant en compte le principe d'exclusion de Pauli dans les lois de conservation en énergie (2. 1) et (2. 2) de la section 2.2.1. nous obtenons des conditions supplémentaires sur les énergies transférées $\hbar\omega$.

$$E_1 > E_F \Leftrightarrow \hbar\omega < E_0 - E_F \quad \textbf{(2. 16)}$$

$$E_s > E_F \Leftrightarrow \hbar\omega > E_F - E_i \quad \textbf{(2. 17)}$$

Dans un métal, l'énergie E_i correspond à l'énergie d'origine dans la bande de conduction de l'électron du solide. En ce sens, dans les références en énergie adoptées, nous avons $0 < E_i < E_F$. Lorsque l'énergie transférée est telle que $\hbar\omega > E_F$, l'électron primaire peut interagir avec tous les électrons faiblement liés de la bande de conduction. Lorsque l'énergie transférée est telle que $\hbar\omega < E_F$, l'électron primaire ne peut interagir qu'avec les électrons situés dans le haut de la bande de conduction, entre le niveau d'énergie E_i et le niveau de Fermi E_F.

Dans un semi-conducteur ou un isolant, les équations (2. 16) et (2. 17) s'écrivent en remplaçant E_F par l'énergie du bas de la bande de conduction E_{BC}. Ce changement est nécessaire pour inclure l'énergie de la bande interdite E_g. Dans ces matériaux, l'énergie E_i correspond à l'énergie d'origine des électrons dans la bande de valence. Nous avons donc : $0 < E_i < E_{BC} - E_g$ avec $E_{BC} - E_g = \Delta V$. L'équation (2. 17) nous indique qu'afin de fournir à l'électron du solide une énergie suffisante pour passer de la bande de valence à la bande de conduction, l'énergie transférée $\hbar\omega$ doit être au minimum supérieure à E_g. En conséquence, dans les semi-conducteurs et les isolants, lorsque l'électron primaire à une énergie E_0 avant l'interaction inférieure à E_g, il ne peut pas interagir avec un électron faiblement lié de la bande de valence. Par analogie avec les métaux, lorsque $\hbar\omega > E_{BC}$, l'électron primaire peut interagir avec tous les électrons faiblement liés de la bande de valence. Lorsque $E_g < \hbar\omega < E_{BC}$, l'électron primaire ne peut interagir qu'avec les électrons du haut de la bande de valence.

De manière similaire aux énergies, où il faut respecter pour les énergies transférées $\hbar\omega$ les conditions induites par la loi de conservation de l'énergie et de quantification, il existe des conditions à respecter sur les moments $\hbar$q transférés par les électrons primaires lors des interactions. A des fins de clarté, nous ne présenterons les lois de conservations en moment et en énergie de manière détaillée que dans le chapitre 3. Nous pouvons toutefois mentionner dès cette section l'existence d'un moment limite $\hbar q_c$. Ce dernier a été interprété par Ferrell **[FER56]** et Raether **[RAE65]** comme une limite de séparation entre les interactions individuelles et les interactions collectives (2.3.2.2.2). Ce moment de coupure a été observé expérimentalement par Batson et Silcox **[BATS83]**. Nous considérerons, dans la suite de ce manuscrit, que les interactions individuelles ont lieu lorsque $q > q_c$.

En réécrivant l'équation de conservation du moment (2. 4) en utilisant l'équation de la conservation de l'énergie (2. 1), nous pouvons déduire l'angle de déviation θ de l'électron primaire après l'interaction :

$$\hbar\omega = E_0 + (E_0 - \hbar\omega) - 2\sqrt{E_0}\sqrt{E_0 - \hbar\omega}\,cos\theta \qquad \textbf{(2. 18)}$$

$$sin^2\theta = \frac{\hbar\omega}{E_0} \qquad \textbf{(2. 19)}$$

Les premières approches pour modéliser l'interaction entre un électron incident et un électron faiblement lié ont été effectuées pour des métaux simples, en prenant en compte une bande de conduction partiellement remplie et en considérant les électrons comme libres. Nous pouvons citer les travaux de Lindhard **[LIND54]**, de Ferrell **[FER56]**, de Ritchie **[RIT57],** de Pines et Nozières **[PIN64]** et de Rather **[RAE65]**. Pour décrire l'interaction entre un électron incident et un électron libre, les auteurs de ces travaux utilisent la méthode des perturbations dépendantes du temps. Cette méthode prend en compte la modification des niveaux d'énergie des électrons de l'atome dans son état fondamental suite à la perturbation provoquée par l'électron incident (passage d'un électron au-dessus du niveau de Fermi).

Dans l'hypothèse d'une faible perturbation, il est possible de déterminer les niveaux d'énergie après l'interaction par la connaissance des niveaux de l'état fondamental de l'atome. On déduit alors la probabilité de transition d'un état occupé à un état inoccupé pour l'électron du solide avec lequel interagit l'électron incident. Cette probabilité de transition peut être reliée à la fonction diélectrique $\varepsilon(\hbar\omega, q)$ **[PIN64]** qui peut être

approximée par une expression simplifiée dans l'hypothèse d'un gaz d'électrons libres **[LIND54, NIK12]**.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons choisi d'utiliser le modèle des fonctions diélectrique de Ritchie et Howie **[RIT77]** qui permet de modéliser la fonction diélectrique à partir des mesures des indices optiques. La base de données la plus connue pour les indices optiques est celle de Palik **[PALI97]**. L'intérêt de ce modèle est qu'il permet de modéliser l'ensemble des métaux, semi-conducteurs, et isolants pour lesquels ces données sont disponibles. Nous décrirons ce modèle dans le chapitre 3.

2.3.2.2.2. INTERACTIONS COLLECTIVES

INTERACTIONS COLLECTIVES DE VOLUME

Lorsqu'un électron incident pénètre dans un métal, il crée une perturbation qui peut déplacer l'ensemble des électrons faiblement liés de la bande de conduction par rapport aux cœurs ioniques. Les électrons faiblement liés sont alors rappelés vers leur position d'équilibre par attraction coulombienne, et une oscillation collective des électrons faiblement liés apparaît dans le volume du solide **[KIT71]**. Cette excitation collective, appelée plasmon, est longitudinale car le champ électrique créé par l'électron incident est parallèle à la direction de sa propagation. De manière analogue, dans un semi-conducteur ou un diélectrique, l'électron incident crée une perturbation qui déplace l'ensemble des électrons faiblement liés de la bande de valence par rapport aux cœurs ioniques. La FIGURE 2.9 représente de manière simplifiée le mouvement des électrons faiblement liés dans un plasmon de volume. La fréquence notée ω_{pv}de cette oscillation dans le volume du solide dépend essentiellement de la densité des électrons de valence et du moment $\hbar$q transféré par l'électron incident lors de l'interaction **[RAE65]**.

Lors d'une interaction entre un électron incident et un plasmon de volume, l'électron incident va transmettre une partie de son énergie au plasmon. Le plasmon créé va ensuite se désexciter en cédant son énergie $\hbar\omega_{pv}$ et une partie de sa quantité de mouvement à un ou plusieurs électrons faiblement liés. Lors de cette interaction, l'énergie transférée est quantifiée. Il en résulte que les interactions entre les électrons incidents et les plasmons de volume correspondent à des pics bien définis sur les spectres en énergie. Dans l'exemple de la FIGURE 2.3, ces pics (notés pv) correspondent

pour les électrons primaires aux énergies $E_0 - n\,\hbar\omega_{pv}$ avec n entier. Les travaux de Werner et coll. **[WER08, WER13]** ont montré que le processus de désexcitation le plus probable pour le plasmon de volume était d'émettre un unique électron. En ce sens, un pic à l'énergie $E_0 - n\,\hbar\omega_{pv}$ correspond aux électrons incidents qui ont interagi n fois de manière consécutive avec les plasmons. Contrairement aux interactions individuelles, lors des interactions avec les plasmons, le transfert d'énergie est indirect car l'électron émis par le plasmon lors de sa désexcitation peut provenir de l'ensemble du solide **[KIT71]**. A des fins de simplifications, nous considérerons, comme la plupart des modèles **[ROU13],** que l'électron issu du plasmon est émis à l'endroit où l'interaction avec l'électron incident a eu lieu.

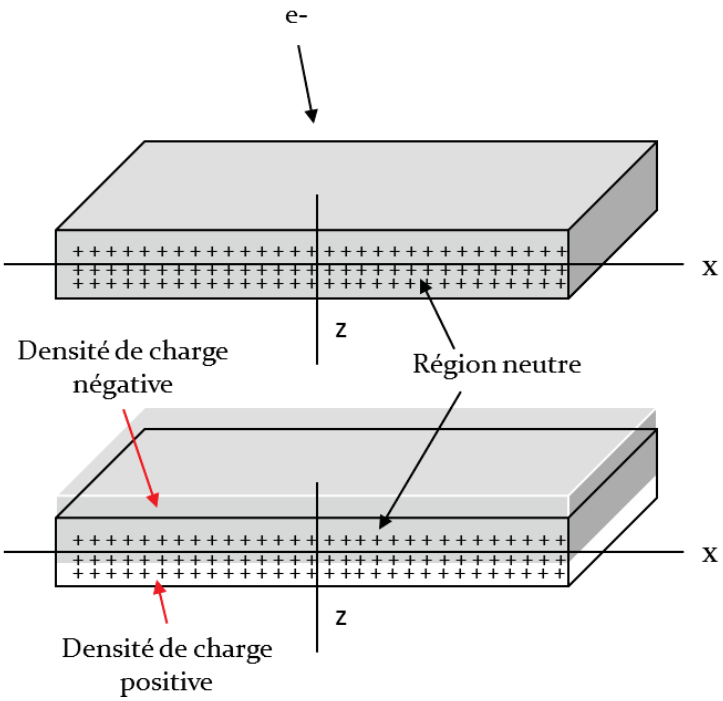


FIGURE 2.9. D'après Kittel [KIT71]. (Haut) Tranche de solide. Les cations sont indiqués par des signes + et les électrons faiblement liés par le fond gris. La tranche est électriquement neutre. (Bas) Suite à l'irradiation du matériau, les électrons faiblement liés se sont déplacés uniformément vers le haut d'une petite distance. Ce déplacement crée une densité superficielle de charge négative sur la face supérieure de la tranche et une densité de charge positive sur la face inferieure. Un champ électrique $\vec{E}$ apparaît à l'intérieur de la tranche et tend à ramener le nuage d'électrons faiblement liés à sa position d'équilibre.

Les lois de conservation en énergie énoncées dans le cas des interactions individuelles s'appliquent également pour le cas des interactions avec les plasmons, en remplaçant l'énergie transférée $\hbar\omega$ des équations (2. 1) et (2. 2) par $n\,\hbar\omega_{pv}$ avec n entier.

Nous pouvons voir, en reprenant ces équations qu'il existe une énergie limite pour l'électron primaire en dessous de laquelle celui-ci ne peut pas exciter un n-ième plasmon de volume. Cette énergie est donnée par l'équation (2. 20) dans un métal et par l'équation (2. 21) dans un semi-conducteur ou un isolant.

$$E_0 > n\,\hbar\omega_{pv}(q) + E_F \tag{2. 20}$$

$$E_0 > n\,\hbar\omega_{pv}(q) + E_{BC} \tag{2. 21}$$

Comme mentionné dans la section précédente, lorsque le moment transféré atteint une valeur critique q_c, nous considérons que le plasmon de volume se désintègre en formant une paire électron-trou et est ainsi indiscernable des interactions individuelles avec les électrons faiblement liés. Cela revient à considérer que le plasmon dans le volume du solide n'existe que pour $q < q_c$ **[GAN79]**. L'utilisation du moment de coupure q_c permet alors de définir un domaine dans lequel les interactions avec les plasmons sont majoritaires $(q < q_c)$ et un domaine dans lequel les interactions individuelles avec les électrons faiblement liés sont majoritaires $(q > q_c)$. Cette séparation est décrite sur la FIGURE 2.10.

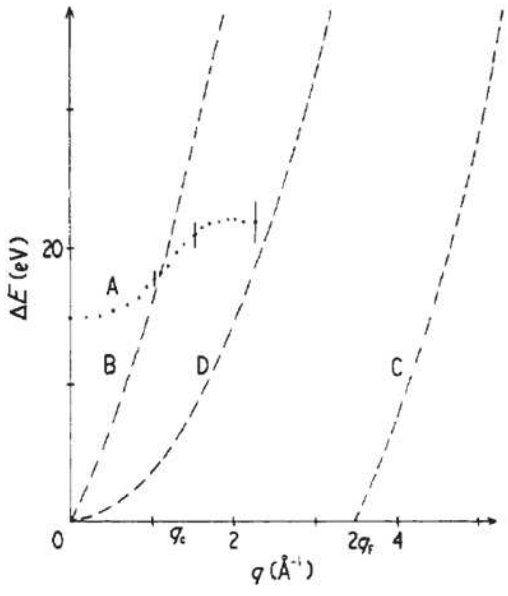


FIGURE 2.10. Relation de dispersion en énergie transférée (notée ΔE sur la figure) et en moment transféré $\hbar q$ du plasmon de volume pour l'aluminium. La figure est extraite des travaux de Zacharias et coll. [ZAC74]. La courbe A correspond à la relation de dispersion expérimentale. Le domaine des interactions individuelles est défini entre les courbes B et C qui sont associées aux relations de dispersion pour les interactions individuelles avec les électrons faiblement liés. La courbe D est associée à la dispersion d'un électron libre dans le vide.

La séparation s'explique par le fait que la longueur d'onde des oscillations du plasmon de volume possède une limite inférieure λ_{min} (réciproquement q a une limite

supérieure q_c) car le concept d'oscillations organisées perd sa signification lorsque la longueur d'onde λ décroît et devient comparable à la distance entre les électrons. Lorsque l'on a $\lambda > \lambda_{min}$ $(q < q_c)$, selon Raether **[RAE65]**, on peut considérer que l'interaction entre un électron incident et le gaz d'électrons est une interaction de longue portée (plasmon de volume), et lorsque l'on a $\lambda < \lambda_{min}$ $(q > q_c)$, on peut considérer qu'il s'agit d'une interaction de courte portée qui correspond au fait que l'électron incident repousse les électrons qui l'entourent. Pour des distances supérieures à quelques Angström, les charges positives des noyaux (qui constituent un fond continu) font écran à la charge négative de l'électron, ce qui, en conséquence, limite l'interaction de courte portée. Pour l'aluminium, la valeur est $\lambda_{min} \sim 5$ Å **[RAE65]**.

Cette explication est cohérente avec les observations expérimentales **[ZAC74]**, dans lesquelles pour $q > q_c$ le plasmon de volume est fortement amorti en transférant son énergie à un seul électron **[WER08]**, et ne vérifie pas la même relation de dispersion que pour $q < q_c$.

L'existence d'un moment critique $\hbar q_c$ implique l'existence d'un angle de déviation limite θ_c pour les interactions avec les plasmons. Cet angle a été défini par Raether **[RAE65]** par la relation (2. 22).

$$\theta_c = \frac{{q_c}^2}{{k_0}^2} - \left(\frac{\hbar\omega}{2E_0}\right)^2 \qquad \textbf{(2. 22)}$$

Les modèles décrivant les interactions avec les plasmons et les interactions individuelles avec les électrons faiblement liés sont souvent fondés sur les mêmes formalismes. Si plusieurs auteurs ont, de manière similaire aux interactions individuelles, utilisés la théorie du gaz d'électrons libres pour modéliser le plasmon de volume **[FER56, RAE65]**, il est également possible d'utiliser le modèle des fonctions diélectrique pour décrire cette interaction **[PEN87, GAN79, KUH99]**.

Toutefois, ces modèles permettent uniquement de décrire le plasmon dans le volume du solide, c'est-à-dire dans un matériau infini. Or, la surface d'un solide entraîne une discontinuité de la densité de charge des électrons qui va modifier la fréquence de l'oscillation des électrons faiblement liés. Ce phénomène est appelé « effet Begrenzung » **[RIT57]**. En conséquence, on distingue deux types de plasmons : les plasmons de volume, que nous venons de décrire, et les plasmons de surface.

INTERACTIONS COLLECTIVES DE SURFACE

Les plasmons de surface correspondent à une excitation transversale des électrons faiblement liés. Ils ne peuvent se produire que dans une « surface effective » qui correspond aux premiers nanomètres de la surface du solide **[YUB96, PAU09]**. De manière similaire aux plasmons de volume, les travaux de Werner et coll. **[WER13]** ont montré que le processus de désexcitation le plus probable pour le plasmon de surface était d'émettre un unique électron d'énergie $\hbar\omega_{ps}$. En ce sens, un pic à l'énergie $E_0 - \hbar\omega_{ps}$ sur un spectre en énergie correspond aux électrons incidents qui ont réalisé une unique interaction avec un plasmon de surface avant de s'échapper du solide.

La FIGURE 2.11 représente les calculs de Chen **[CHE02]** pour l'inverse du libre parcours moyen en fonction de la profondeur des électrons pour les excitations des plasmons de volume et de surface dans le cuivre.

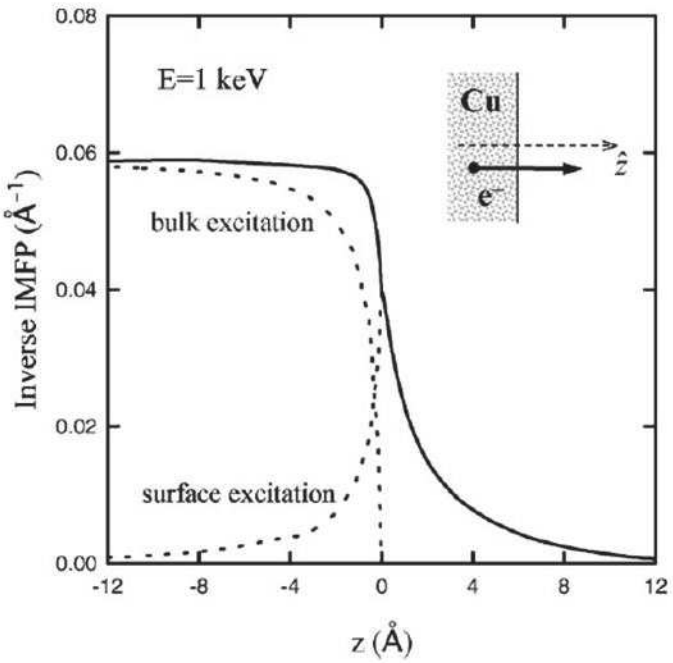


FIGURE 2.11. Calculs de Chen [CHE02] de la contribution du volume et de la contribution de surface au libre parcours moyen en fonction de la profondeur pour des électrons de 1 keV dans du cuivre.

Nous pouvons voir que lorsque l'on se rapproche de la surface, la probabilité d'interaction avec un plasmon de volume diminue et que la probabilité d'interaction avec un plasmon de surface augmente.

Plusieurs auteurs ont proposé des modèles pour calculer la surface effective d'interaction des plasmons de volume et de surface. Chen et coll. **[CHE96]** ont estimé

que la surface effective des deux plasmons correspond à la vitesse de l'électron divisée par la fréquence du plasmon de volume : v_0/ω_{pv}. Nunez et coll. **[NUN80]** ont considéré des surfaces effectives différentes pour les plasmons de surface et les plasmons de volume. C'est l'approche qui a été choisie dans la version existante du code OSMO-SEE, dans laquelle la surface effective du plasmon de surface est v_0/ω_{ps} où $\hbar\omega_{ps}$ correspond à l'énergie du plasmon de surface. De manière similaire au plasmon de volume, le plasmon de surface peut être modélisé dans le modèle des fonctions diélectriques **[RAE65, KUH99, GAN79]**.

La FIGURE 2.11 montre que les plasmons de surface peuvent également se produire dans le vide **[CHE96, WER13]**. A des fins de simplifications, nous ne prendrons pas en compte l'interaction avec un plasmon de surface depuis le vide. D'après les travaux de Werner et coll. **[WER13]**, cette interaction ne serait plus négligeable à très basse énergie.

2.3.2.3. INTERACTIONS AVEC LES ÉLECTRONS DE CŒUR

Lors des interactions avec un électron de cœur, un électron primaire transmet à un électron de cœur une énergie $\hbar\omega$ suffisamment élevée pour rompre la liaison d'énergie qui le lie à son atome. Lors de l'interaction, l'électron de cœur est éjecté de son atome et mis en mouvement dans le solide. Il y a alors création d'une lacune électronique qui entraîne une instabilité dans la répartition des électrons de l'atome. Afin de retourner dans son état fondamental, l'atome va se désexciter en émettant des photons ou en recombinant ses électrons. Ces processus de réarrangement peuvent être assez complexes et interviennent dans un laps de temps très court de 10^{-17} à 10^{-14}s **[ROU13]**.

2.3.2.3.1. IONISATION

De manière similaire aux interactions avec les électrons faiblement liés, lors de l'étape d'ionisation de l'atome, un électron primaire d'énergie E_0 transmet à un électron de cœur d'énergie $Ei = -E_{BJ} + E_F$ une énergie $\hbar\omega$ pour un métal. Pour un semi-conducteur, dans les références en énergie adoptées, l'énergie du niveau de cœur est $Ei = -E_{BJ} + \Delta V$. Les lois de conservation en énergie donnent les équations (2. 23) et (2. 24) dans le cas d'un métal. Dans le cas de semi-conducteurs ou d'isolants, l'énergie de Fermi E_F est remplacée par l'énergie du bas de la bande de conduction E_{BC}.

$$E_1 > E_F \Leftrightarrow \hbar\omega < E_0 - E_F \quad \textbf{(2. 23)}$$

$$E_s > E_F \Leftrightarrow \hbar\omega > E_{BJ} \quad \textbf{(2. 24)}$$

Le principe d'exclusion de Pauli indique que l'électron éjecté du niveau de cœur est situé au-dessus du niveau de Fermi après l'interaction, comme indiqué par la relation (2. 24). Par convention, l'énergie de liaison E_{BJ} est donnée par rapport au niveau de Fermi dans un métal et par rapport au haut de la bande de valence dans un semi-conducteur ou un isolant. L'énergie minimale transférée lors de l'interaction par l'électron primaire est donc $\hbar\omega = E_{BJ}$ pour un métal et $\hbar\omega = E_{BJ} + E_g$ pour un semi-conducteur ou un isolant. L'équation (2. 23) montre qu'il existe une limite en énergie pour l'électron primaire en dessous de laquelle cette interaction n'est pas possible. Pour un métal cette limite est $E_0 > E_{BJ} + E_F$. Dans le cas d'un semi-conducteur ou d'un isolant, nous avons la condition $E_0 > E_{BJ} + E_g + E_{BC}$.

L'étape d'ionisation est couramment décrite dans la littérature par le modèle de Gryzinski **[GRY65]**. Ce modèle correspond à la collision classique entre deux électrons et permet d'obtenir une première estimation des sections efficaces de l'étape d'ionisation. Son avantage principal est d'être peu coûteux en temps de calcul. Toutefois, les sections efficaces calculées avec le modèle de Gryzinski peuvent différer significativement des données expérimentales et des calculs des modèles de mécanique quantique **[LLO14]**.

Un autre modèle couramment utilisé dans les codes de transport d'électrons est celui du GOS (Generalized Oscillator). Ce modèle, issu de la mécanique quantique, revient à considérer les électrons de cœur comme des oscillateurs **[ASH75, NIK12]**. Il peut être identifié au modèle des fonctions diélectriques, que nous utiliserons également pour modéliser l'étape d'ionisation **[AKK09, VAL12]**. Toutefois, les modèles du GOS et des fonctions diélectriques ne sont pas adaptés aux basses énergies et ne modélisent pas correctement les sections efficaces près du seuil d'ionisation. En effet, le modèle des fonctions diélectriques repose sur la première approximation de Born (hypothèse d'une faible perturbation et des ondes planes). Cette approximation implique que l'électron incident qui interagit avec un électron de cœur doit avoir une vitesse beaucoup plus grande que cet électron de cœur. Lorsque électron incident possède une énergie proche du niveau de liaison de cœur, les deux électrons ont alors une vitesse similaire, et la va-

lidité du modèle devient discutable. De plus, la fonction d'onde de l'électron incident n'est plus plane mais se déforme lors de l'interaction.

Un modèle plus réaliste, qui prend en compte cette déformation, a été développé récemment par Bote et Salvat **[LLO14]**. Ce modèle, qui a été validé par des comparaisons avec des mesures expérimentales et est mis à disposition de la communauté scientifique sur le site du NIST, permet de modéliser les sections efficaces des ionisations à plus basse énergie. Toutefois, le code de Bote et Salvat ne donne pas les sections efficaces des couches les plus périphériques. Dans l'hypothèse où la plupart des interactions des électrons à basse énergie sont des interactions avec les électrons faiblement liés, nous avons considéré que le modèle des fonctions diélectriques est suffisant pour modéliser le transport des électrons dans l'aluminium, l'argent et le silicium.

2.3.2.3.2. PROCESSUS DE DÉSEXCITATION

Lors d'une désexcitation par émission d'un photon (fluorescence), un électron d'une couche électronique de plus haute énergie va venir combler la lacune électronique créée précédemment dans l'étape d'ionisation. L'excès d'énergie de cet électron permet l'émission d'un photon X. On parle également de fluorescence X. L'énergie du photon émis correspond à la différence d'énergie entre les niveaux électroniques :

$$h\nu = E_n - E_m \tag{2. 25}$$

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.

Lors d'une désexcitation par recombinaison électronique, l'excès d'énergie de l'électron est transmis à un autre électron appartenant à une couche électronique de plus haute énergie de l'atome. Cet électron, qui va être lui aussi éjecté de l'atome du solide, est appelé « électron Auger ». Son énergie après l'interaction peut être déterminée par la relation empirique de Chung et Jenkins **[CHU70]** :

$$E_{WX_nY_m}(Z) = E_W(Z) - \frac{1}{2}\left[E_{X_n}(Z) + E_{X_n}(Z+1) + E_{Y_m}(Z) + E_{Y_m}(Z+1)\right] \tag{2. 26}$$

où $E_{WX_nY_m}$ désigne l'énergie de l'électron Auger issu des transitions entre les niveaux W, X_n et Y_m, E_W est l'énergie de la couche électronique W qui contient la lacune électronique. E_{X_n} correspond à l'énergie de la sous-couche n de la couche électronique X dont est issu l'électron qui effectue la transition, E_{Y_m} est l'énergie de la sous-couche m de la couche électronique Y d'où l'électron Auger est émis, Z désigne le numéro atomique du matériau. 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. Ces termes sont une correction sur l'énergie de la sous-couche électronique mise en jeu. Ils tiennent compte du fait que la présence d'une lacune modifie le nombre d'électrons de la sous-couche et donc son énergie.

Dans le cas où l'électron qui transite vers la lacune est issu de la même couche électronique que la lacune, on parle de transition Coster-Kronig. Il existe un cas très rare dit transition super Coster-Kronig où les trois électrons (celui émis lors de la première étape de l'interaction, celui qui comble la lacune et l'électron Auger) appartiennent à la même couche électronique. La FIGURE 2.12 illustre un exemple de transition Auger pour l'aluminium.

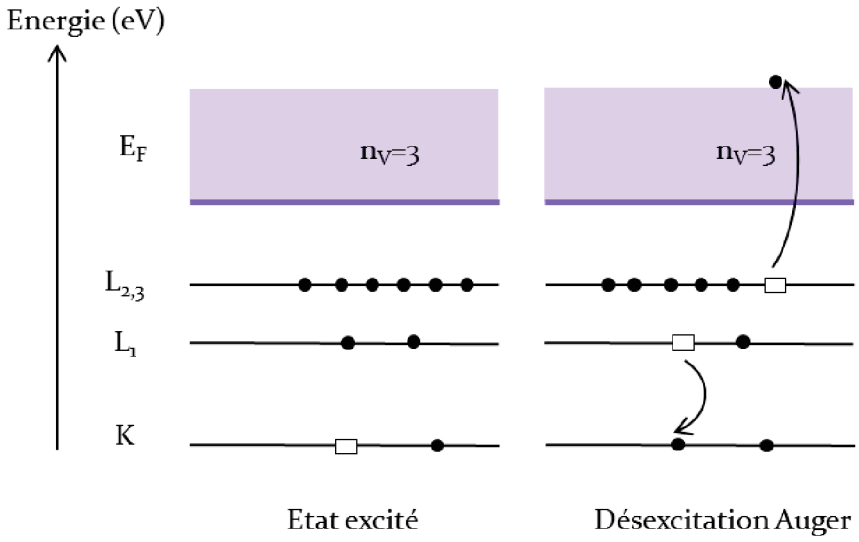


FIGURE 2.12. Représentation de la transition Auger $KL_1L_{2,3}$ dans l'aluminium. (Gauche) un électron de la couche K est éjecté. Il a y alors création d'une lacune (représentée par un rectangle blanc) sur la couche électronique. (Droite) un électron de la couche supérieure L_1 vient combler la lacune. L'énergie en excès est transférée à un électron de la couche $L_{2,3}$ qui est alors éjecté de l'atome. Il y a alors création d'une lacune électronique sur la couche L_1 et sur la couche $L_{2,3}$.

Dans cet exemple, un électron primaire va éjecter un électron de la couche K. La lacune qui résulte de l'interaction est comblée par un électron de la couche L_1. L'énergie en excès est transmise à un électron de la couche $L_{2,3}$ qui est alors éjecté de l'atome. Nous pouvons voir dans cet exemple qu'après l'émission de l'électron Auger, l'atome présente deux lacunes électroniques. La recombinaison électronique entraîne la création de nouvelles lacunes électroniques qui vont également déstabiliser l'atome. Afin d'amener l'atome dans un état proche de son état fondamental, il se produit une cascade de recombinaisons électroniques qui s'achève lorsque les lacunes sont déplacées sur les couches les plus externes.

Les processus de désexcitation décrits précédemment sont complémentaires et les probabilités d'interaction qui leur sont associées vérifient la relation $\omega + a + f = 1$ où ω est le rendement de fluorescence X, a le rendement Auger et f le rendement Coster-Kronig. Dans cette relation, le rendement désigne le nombre d'évènements de désexcitation sur le nombre d'interactions entre un électron primaire et un électron de cœur. La base de données issue du code EADL (Evaluated Atomic Data Library) **[PER91]** permet d'obtenir la plupart de ces rendements pour les couches de cœur des éléments atomiques allant de Z=6 à Z=100. Cette base de données est utilisée dans le code GEANT4 **[ALL16]**.

La FIGURE 2.13 représente les probabilités de réaliser des recombinaisons par transitions Auger et par fluorescence pour les différentes couches électroniques K, L et M de différents matériaux. Nous pouvons voir que ces rendements présentent une forte dépendance vis-à-vis du numéro atomique Z.

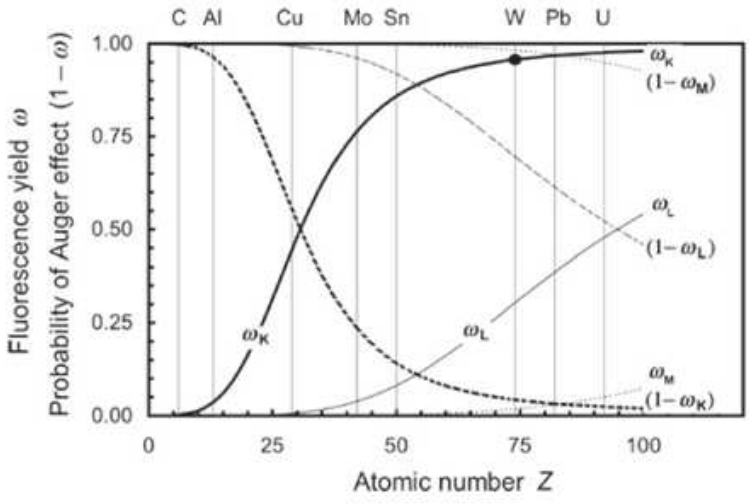


FIGURE 2.13. Probabilité de désexcitation par émission d'un électron Auger ou de photons pour différents matériaux en fonction de leur numéro atomique. La figure est issue de l'ouvrage de Podgorsak [POD14] qui résume les données existantes de la base de données du NIST.

2.3.2.4. INTERACTIONS AVEC LES PHONONS

Dans les semi-conducteurs et les isolants, lorsque les électrons incidents ne peuvent pas transmettre une énergie $\hbar\omega$ supérieure à la largeur de la bande interdite E_g, les électrons faiblement liés de la bande de valence ne peuvent pas passer directement dans la bande de conduction. Leur passage fait appel à l'oscillation collective du réseau formé par les atomes du solide, appelée phonons. L'interaction entre un électron et un phonon peut avoir lieu car le déplacement des plans des atomes change la densité locale d'électrons. Réciproquement, la perturbation créée par l'électron incident entraîne le déplacement des atomes autour de leur position d'équilibre **[KIT71]**.

Dans un cristal, un électron peut absorber ou émettre un phonon. Dans le premier cas, il gagne de l'énergie. Dans le second cas, il perd de l'énergie. Lors de ces interactions, il n'y a pas création d'électron secondaire. Les pertes d'énergies associées aux interactions entre les électrons et les phonons sont de l'ordre de plusieurs dizaines de meV.

Lorsque le transport des électrons est dominé par les interactions avec les phonons — en particulier lorsque le passage direct d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction n'est plus possible — les électrons perdent donc très peu d'énergie. Il en résulte que les électrons restant en surface sont plus susceptibles de s'échapper du matériau, ce qui entraîne une augmentation du rendement d'émission électronique à basse énergie dans les matériaux tels que les halogénures alcalins ou le dioxyde de silicium **[AKK94]**. En ce sens, nous ne pouvons pas négliger ces interactions pour ces matériaux. A l'inverse, les phonons existent dans les métaux, mais peuvent être négligés car les pertes d'énergie sont dominées par les interactions individuelles avec les électrons de la bande de conduction, sauf à très basse énergie (<eV) ou les pertes d'énergies associées aux phonons deviennent du même ordre de grandeur que celles liées aux électrons.

Les relations de conservation de l'énergie et du moment sont semblables à celles établies dans la section 2.2.1. pour les interactions inélastiques entre les électrons. Dans les équations (2. 27) et (2. 28) E_0 et $\hbar k_0$ (respectivement E_1 et $\hbar k_1$) désignent l'énergie et le moment de l'électron avant l'interaction (respectivement après l'interaction). Lors de l'absorption d'un phonon, les énergies $\hbar\Omega$ et moments $\hbar Q$ des phonons sont positifs. Lors de l'émission d'un phonon, ces grandeurs sont négatives (et notées $-\hbar\Omega$ et $-\hbar\vec{Q}$).

$$E_1 = E_0 \pm \hbar\Omega \tag{2. 27}$$

$$\hbar\overrightarrow{k_1} = \hbar\overrightarrow{k_0} \pm \hbar\overrightarrow{Q} \tag{2. 28}$$

Chacune des deux interactions peut être réalisée selon deux modes : longitudinal ou transverse. Dans le mode longitudinal, le mouvement des plans des atomes est parallèle à la direction de propagation de l'électron. Dans le mode transverse, le mouvement est perpendiculaire.

Dans les cristaux ayant plus d'un atome par maille élémentaire, pour chacun des deux modes, la relation de dispersion de $\hbar\Omega$ par rapport à $\hbar Q$ donne deux branches : les branches acoustiques et optiques. Dans les cristaux ayant un seul atome par maille élémentaire, il n'y a pas de branche optique. Par convention, nous notons les phonons acoustiques longitudinaux LA et transversaux TA, et les phonons optiques longitudinaux LO et transversaux TO.

Les phonons acoustiques correspondent à des modes de vibrations pour lesquels des atomes voisins vibrent en phase. En général, ils occasionnent des transferts d'énergie très faible, de l'ordre du meV, et peuvent être considérés comme des interactions quasi-élastiques **[AKK94]**.

Les phonons optiques se produisent dans les cristaux ioniques. Ils correspondent à des modes de vibration pour lesquels les ions positifs et négatifs situés sur des sites voisins du réseau se rapprochent et s'éloignent les uns des autres en créant un moment dipolaire électrique oscillant avec le temps.

Par ailleurs, la présence de défauts dans les cristaux peut créer des modes localisés pour lesquels seul le défaut et ses plus proches voisins vibrent.

Pour modéliser les interactions entre les électrons et les phonons dans les semiconducteurs et les isolants, nous pouvons citer les travaux de Schreiber et Fitting **[SCH02]** qui utilisent le modèle de Frohlich **[FRO52, LLA69]**, aussi utilisé par Akkerman et coll. **[AKK94]**, pour décrire les interactions avec les phonons optiques longitudinaux, et le modèle de Bradford et Woolf **[BRA91]** pour décrire les interactions avec les phonons acoustiques.

2.3.3. TRAVERSÉE DE LA SURFACE

Dans le vide, l'électron n'est soumis à aucun champ coulombien. Son énergie potentielle, que nous noterons E_p, est constante et nous pouvons choisir une référence en énergie de manière à la considérer comme nulle. L'énergie E de l'électron dans le vide est donc purement cinétique et nous la noterons alors E_c.

Lorsque l'électron arrive près de la surface du solide, il est tout d'abord soumis au champ coulombien des électrons de la surface qui constituent une discontinuité de la densité de charges. Son énergie potentielle E_p augmente et, par conservation de son énergie totale $E_p + E_c$, son énergie cinétique E_c diminue.

Lorsque l'électron se rapproche de la surface, celui-ci est ralenti et voit la surface comme une barrière de potentiel. La FIGURE 2.14 représente de manière schématique les transferts en énergie qui se produisent lorsque l'électron traverse la surface.

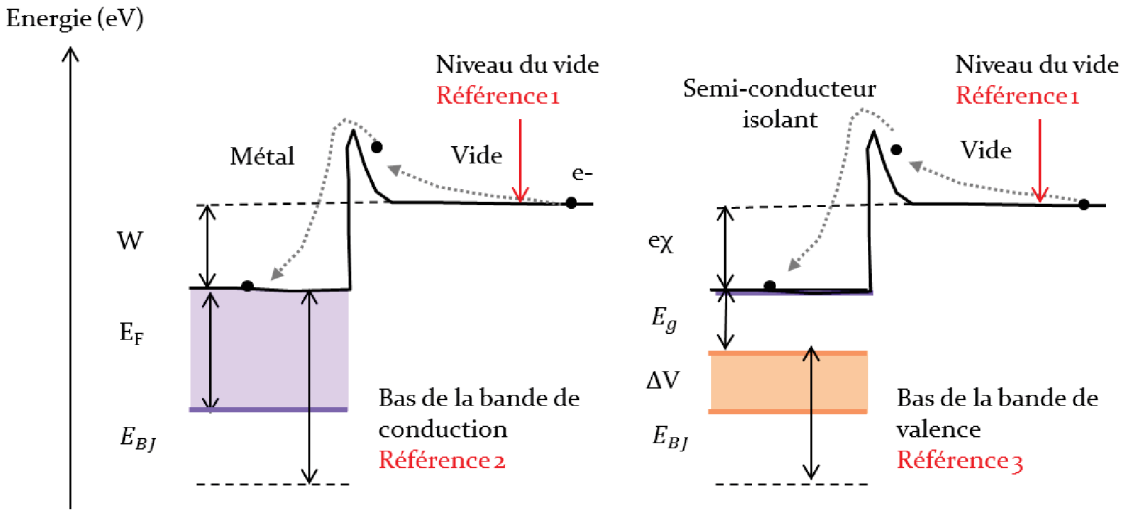


FIGURE 2.14. Représentation des références en énergie pour un métal et un semi-conducteur. Pour le transport des électrons, la référence en énergie choisie est le bas de la bande de conduction (métal) ou le bas de la bande de valence (semi-conducteur). Sur les schémas, la « pointe » de la barrière de potentiel entre le vide et le solide est exagérée.

Si l'électron a une énergie cinétique E_c supérieure à la barrière de potentiel de la surface, il pénètre dans le solide et est, en plus, soumis au champ coulombien des noyaux. Le passage du vide au solide se traduit par une perte de l'énergie potentielle E_p

de l'électron et donc un gain d'énergie cinétique. A l'inverse, le passage du solide au vide correspond à la perte de l'énergie précédente. Cette perte d'énergie correspond au travail de sortie W pour un métal et à l'affinité électronique $e\chi$ pour un semi-conducteur ou un isolant. Ces deux grandeurs sont définies comme l'énergie minimale nécessaire pour arracher un électron à un solide.

Dans le solide, l'électron ne peut occuper que les états accessibles qui sont situés au-dessus du niveau de Fermi pour un métal et dans la bande de valence pour un semi-conducteur ou un isolant. Selon la référence en énergie adoptée, le passage du vide au solide peut correspondre à un changement fictif d'énergie potentielle.

Le TABLEAU 2.1 regroupe les différents transferts d'énergie lors du passage de l'électron du vide à un métal (2. 29), du vide à un semi-conducteur ou un isolant (2. 30), d'un métal au vide (2 31), et d'un semi-conducteur ou un isolant au vide (2. 32).

TABLEAU 2.1. Equations pour le changement en énergie de l'électron lors de la traversée de la surface du solide. Lors de la traversée, l'électron gagne ou perd de l'énergie cinétique. Dans les deux cas, il y a, en plus, un changement de référentiel pour l'énergie potentielle.

Origine	**Arrivée**	
Dans le vide	Dans le solide	
	$E_c + E_p = (E + W) + E_F$	**(2. 29)**
$E_c + E_p = E$		
	$E_c + E_p = (E + e_\chi) + (\Delta V + E_g)$	**(2. 30)**
Dans le solide	Dans le vide	
	$E_c + E_p = E_{sol} - W - E_F$	**(2 31)**
$E_c + E_p = E_{sol}$		
	$E_c + E_p = E_{sol} + e_\chi - \Delta V - E_g$	**(2. 32)**

Dans le cas où l'électron s'échappe d'un solide, la perte d'énergie correspondante se retrouve sur les pics des électrons secondaires sur les spectres en énergie. Par exemple, un électron secondaire créé par désexcitation d'un plasmon de volume qui s'échappe d'un semi-conducteur a une énergie dans le vide $\mathrm{E} = \hbar\omega_{\mathrm{pv}} - e\chi$. Sur la FIGURE 2.3 qui présente le spectre en énergie du silicium, nous pouvons voir un épaulement à cette énergie.

La barrière de potentiel de la surface, de manière similaire aux photons, est également à l'origine de réflexions et de réfractions à la fois pour les électrons du vide et pour les électrons du solide. Dans le cas d'une réflexion (dans le vide ou le solide), un électron qui arrive sur la surface avec un angle d'incidence α est associé à un angle de déviation θ après l'interaction tel que $\theta = \pi - \alpha$. Dans le cas d'une réfraction, l'angle de déviation de l'électron obéit à la loi (2. 33) **[ROU13]**.

$$\sqrt{E_0 + E_{seuil}} \sin\theta = \sqrt{E_0} \sin\alpha \qquad \textbf{(2. 33)}$$

L'énergie E_{seuil} désigne le gain ou la perte en énergie de l'électron lors de la traversée de la surface définis dans le TABLEAU 2.1.

Afin de déterminer la probabilité de transmission de l'électron à travers la barrière de potentiel, à basse énergie, il est nécessaire d'utiliser la mécanique quantique. Des modèles simples, couramment utilisés dans les codes de transport d'électrons consistent à considérer une barrière de potentiel carrée **[COH94, KUH99, DIN01]** ou une barrière de potentiel exponentielle **[ROU13]**. Toutefois, ces modèles ne prennent pas en compte la perturbation de la distribution des électrons du solide lorsque l'électron incident s'approche de sa surface. Ce processus est pris en compte par des modèles plus réalistes, appelés modèles de la charge image **[CUT58]**. Toutefois, ces modèles sont compliqués à mettre en œuvre et coûteux en temps de calcul. Pour des raisons de simplicité, nous avons choisi de conserver la modélisation par une barrière de potentiel exponentielle qui était présente dans la version précédente du code OSMOSEE.

Dans ce modèle, l'expression du potentiel est donnée par la relation (2. 34) où a est le paramètre qui définit la constante de décroissance de l'exponentielle.

$$U(z) = \frac{U_0}{exp(-z/a) + 1} \qquad \textbf{(2. 34)}$$

Dans la version antérieure du code OSMOSEE **[ROU13]**, le paramètre a est pris égal à a_0=0,5.10^{-10} m. Il s'agit de la valeur du rayon de Bohr, qui correspond à la distance minimale entre le centre du noyau et un électron dans le cas de l'atome d'hydrogène dans son état fondamental. Il est possible d'utiliser des valeurs différentes, par exemple Palov **[PAL96]** utilise $2/3\ a_0$.

La probabilité de transmission $T(\theta, E)$ de l'électron dans le solide depuis le vide est donnée par la relation (2. 35). Les vecteurs d'onde k_{Vide} et k_{Metal} sont donnés en fonction de l'angle d'incidence de l'électron sur la surface θ et de son angle de réfraction θ_E après la traversée. Lors de la traversée de l'électron dans le vide depuis le solide, les vecteurs k_{Vide} et k_{Metal} sont inversés.

$$T(\theta, E) = 1 - \frac{\sinh^2\left(\pi a(k_{Vide} - k_{Metal})\right)}{sinh^2(\pi a(k_{Vide} + k_{Metal}))} \quad \textbf{(2. 35)}$$

$$k_{Metal} = \frac{\sqrt{(2m_e e)}}{\hbar}\sqrt{(E + E_{seuil})}cos(\theta_E) \quad \textbf{(2. 36)}$$

$$\theta_E = asin(\sqrt{E/(E + E_{seuil})}sin(\theta)) \quad \textbf{(2. 37)}$$

$$k_{Vide} = \frac{\sqrt{(2m_e e)}}{\hbar}\sqrt{(E_{Nvide})} \quad \textbf{(2. 38)}$$

$$E_{Nvide} = Ecos^2(\theta) \quad \textbf{(2. 39)}$$

Cette relation a été utilisée pour modéliser la traversée de la surface dans le cas de l'aluminium par Roupie **[ROU13]**. Nous pouvons voir que cette relation sera valide pour les métaux mais aussi les semi-conducteurs dans les références en énergie utilisées.

2.3.4. CONDITIONS D'EXISTENCE

Nous avons vu dans la section précédente que le transport des électrons mettait en jeu plusieurs sortes d'interactions : les déviations par les noyaux, les interactions individuelles avec les électrons faiblement liés, avec les plasmons de volume, avec les plasmons de surface, les interactions avec les électrons de cœur, et avec les phonons. Si nous récapitulons dans le TABLEAU 2.2 les conditions d'existence de ces différentes interactions, nous pouvons voir que certaines d'entre elles vont être inaccessibles au fur et à mesure que l'électron perd de l'énergie dans le solide.

À basse énergie, il est alors nécessaire de prendre en compte de manière individuelle chacune de ces interactions. Les codes discrets utilisant la méthode statistique de

Monte-Carlo, dont le principe est de suivre pas à pas le déplacement de l'électron dans le matériau, sont couramment utilisés à cette fin.

TABLEAU 2.2. Conditions d'existence des interactions avec les électrons dans un solide. L'énergie *E* désigne l'énergie de l'électron dans le solide.

Type d'interaction	Condition d'existence dans les références en énergie adoptées	
	Métal	Semi-conducteur/isolant
Interaction élastique	$E > E_F$	$E > 2E_g + \Delta V$
Interactions individuelles avec les électrons faiblement liés	$E > E_F$	$E > 2E_g + \Delta V$
Interactions avec les plasmons de volume. La formule est analogue pour les plasmons de surface.	$E > E_F + \hbar\omega_{pv}$	$E > E_g + \Delta V + \hbar\omega_{pv}$
Interactions avec les électrons de coeur	$E > E_F + E_{BJ}$	$E > 2E_g + \Delta V + E_{BJ}$
Interactions avec les phonons		Pour $E < 2E_g + \Delta V$ les phonons sont considérés comme la seule perte d'énergie
Traversée de la surface	$E > E_F + W$	$E > E_g + \Delta V + e\chi$

2.4. CODES DE TRANSPORT DE PARTICULES ET MÉTHODE DE MONTE-CARLO

Nous avons vu, dans le chapitre 1, qu'il existait plusieurs codes mis à disposition par la communauté scientifique. Dans cette section, nous nous contentons de décrire de manière générale le principe de fonctionnement du code de Monte-Carlo OSMOSEE **[ROU13]** et du module MicroElec **[VAL12]** que nous allons utiliser au cours de cette thèse.

2.4.1. PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DU CODE OSMOSEE ET DU MODULE MICROELEC

La FIGURE 2.15 présente l'algorithme simplifié du code OSMOSEE. Lorsqu'un électron incident arrive sur le solide, une première fonction détermine s'il franchit la surface et pénètre dans le matériau. Si l'électron n'est pas réfléchi par la surface, le code détermine la prochaine interaction qu'il va réaliser, ainsi que les caractéristiques de l'interaction (transferts en énergie et en moment, énergie d'origine de l'électron secondaire, angles de déviation). Le choix de l'interaction est décrit dans la section 2.4.1.1 et celui des grandeurs caractéristiques de l'interaction dans la section 2.4.1.2.

Afin de prendre en compte le caractère aléatoire des électrons, le choix de l'interaction, l'énergie et le moment transférés lors de l'interaction, et l'énergie d'origine de l'électron secondaire sont déterminés en utilisant des nombres aléatoires. S'il y a création d'un électron secondaire lors de l'interaction, ses caractéristiques d'origine sont conservées en mémoire. Cet électron est ensuite traité de manière analogue à un électron primaire.

La cascade électronique est traitée de manière récursive en suivant tous les électrons les uns après les autres. On commence bien évidemment par l'électron primaire, puis dès qu'un électron secondaire est créé, il est suivi jusqu'à ce qu'un électron ternaire soit créé. On stoppe alors le suivi du secondaire pour suivre le ternaire. Il est procédé ainsi jusqu'à épuisement de la cascade. On reprend alors le suivi des électrons parents laissés de côté au cours de la cascade. Un électron est suivi jusqu'à ce qu'il sorte du matériau après avoir traversé la surface, ou si son énergie atteint une énergie seuil dans le matériau.

Comme notre but est d'étudier l'émission électronique, nous avons choisi d'arrêter le transport des électrons dans le code lorsque les électrons n'ont plus assez d'énergie pour s'échapper du solide. Dans les références en énergie que nous avons adoptées, cette énergie seuil correspond à $E_F + W$ pour les métaux et $\Delta V + E_g + e\chi$ pour les semi-conducteurs. Ces références sont associées à une énergie nulle dans le vide. Nous pouvons anticiper que le choix de l'énergie seuil va avoir une grande influence sur le transport des électrons à basse énergie. Par exemple, si nous arrêtons le transport alors que certains électrons sont encore capables de s'échapper du solide, nous sous-estimerons les rendements d'émission électronique.

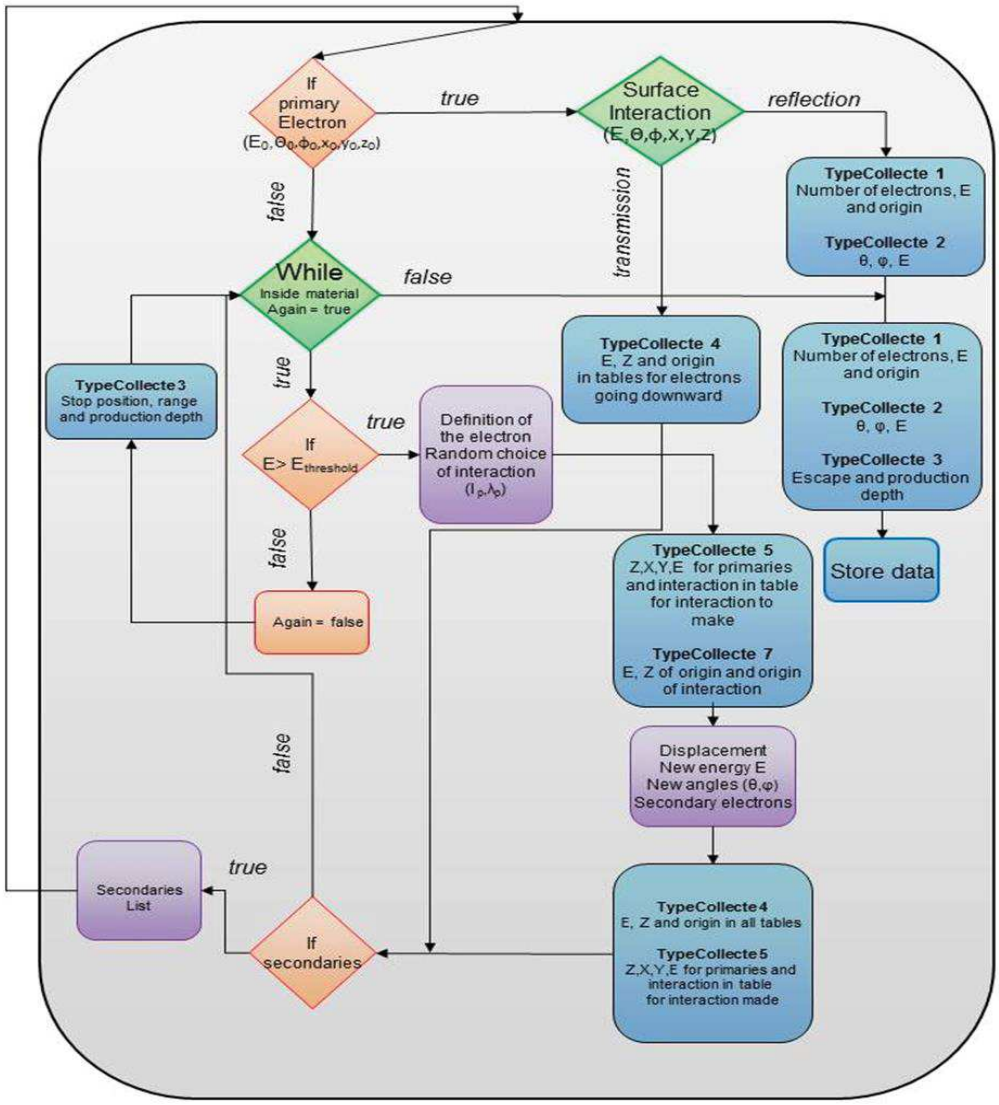


FIGURE 2.15. Algorithme simplifié du code Monte-Carlo OSMOSEE [ROU13]. L'algorithme du module MicroElec du code GEANT4 [AGO03, ALL16] est sensiblement le même.

2.4.1.1. CHOIX DE L'INTERACTION

Le choix de l'interaction dépend directement de la distance que peut parcourir un électron sans subir de collision avec un autre électron du solide, un noyau d'atome ou la surface du solide, c'est-à-dire du libre parcours moyen. Ce libre parcours moyen λ est qualifié de partiel et noté λ_p lorsqu'il est associé à un seul type d'interaction. Les libres parcours moyens partiels λ_p sont déterminés par des modèles théoriques. Pour

prendre en compte le caractère aléatoire des interactions dans un solide, on associe à chaque libre parcours λ_p un libre parcours moyen effectif l_p qui correspond à la distance effective que parcourra l'électron avant de subir l'interaction p. Pour un électron situé à une coordonnée x dans le solide, la probabilité théorique $P(x+dx)$ de continuer son déplacement de dx et d'atteindre la coordonnée $x+dx$ sans subir l'interaction p est $P(x)(1-\frac{dx}{\lambda_p})$. Nous avons alors la relation (2. 40) qui devient par intégration la relation (2. 41).

$$\frac{P(x+dx)-P(x)}{P(x)} = -\frac{dx}{\lambda_p} \quad \textbf{(2. 40)}$$

$$\ln\big(P(x)\big) = -\frac{x}{\lambda_p} \quad \text{(2. 41)}$$

La relation (2. 41) permet de définir le libre parcours moyen effectif l_p par la relation (2. 42) , en considérant que la probabilité d'interaction $P(x)$ correspond à un nombre aléatoire $R \in [0,1]$.

$$l_p = -\lambda_p . \ln(R) \quad \textbf{(2. 42)}$$

L'interaction sélectionnée dans le code est celle associée au plus petit libre parcours effectif l_p. Une fois l'interaction choisie, le code détermine l'énergie et le moment transférés lors de l'interaction, ainsi que l'énergie d'origine des électrons secondaires. Le choix de ces grandeurs est une étape récursive qui a lieu à chaque déplacement de l'électron et pour tous les électrons. Le transport des électrons dans un code de Monte-Carlo dépend directement de la manière dont est traitée la compétition entre les différentes interactions, c'est-à-dire du choix du libre parcours moyen.

2.4.1.2. DÉTERMINATION DES GRANDEURS CARACTÉRISTIQUES

Apres avoir sélectionné l'interaction de plus petit libre parcours effectif l_p, le code détermine les grandeurs caractéristiques de l'interaction. Dans le cas d'une interaction élastique, la grandeur à déterminer est l'angle de déviation θ de l'électron incident. Cette détermination est réalisée par le biais d'un tirage aléatoire sur la section efficace différentielle $d\sigma(\theta)/d\theta$. Dans le cas d'une interaction inélastique, il s'agit de détermi-

ner l'énergie $\hbar\omega$ et le moment $\hbar q$ transférés, ainsi que l'énergie d'origine de l'électron secondaire créé lors de l'interaction. Les lois de conservation en énergie et en moment permettant de relier l'énergie transférée au moment transféré (section 2.3), nous nous contenterons donc de déterminer une seule de ces grandeurs — en général $\hbar\omega$ — par le biais d'un tirage aléatoire sur la section efficace différentielle. L'énergie d'origine de l'électron secondaire est, quant à elle, obtenue par un tirage aléatoire dans la densité d'états de la bande de conduction (chapitre 3).

Afin de déterminer la valeur probable d'une grandeur u, il est possible d'utiliser la méthode des rejets sur la distribution $d\sigma(u)/du$. Considérons une fonction $F(u)$ représentant la distribution normée des sections efficaces différentielles $d\sigma(u)/du$ et un intervalle en u dont les valeurs autorisées sont comprises entre u_a et u_b. Ces notations sont illustrées sur la FIGURE 2.16. A titre d'exemple, les deux bornes de l'intervalle peuvent correspondre à 10 % du maximum de la fonction *F*.

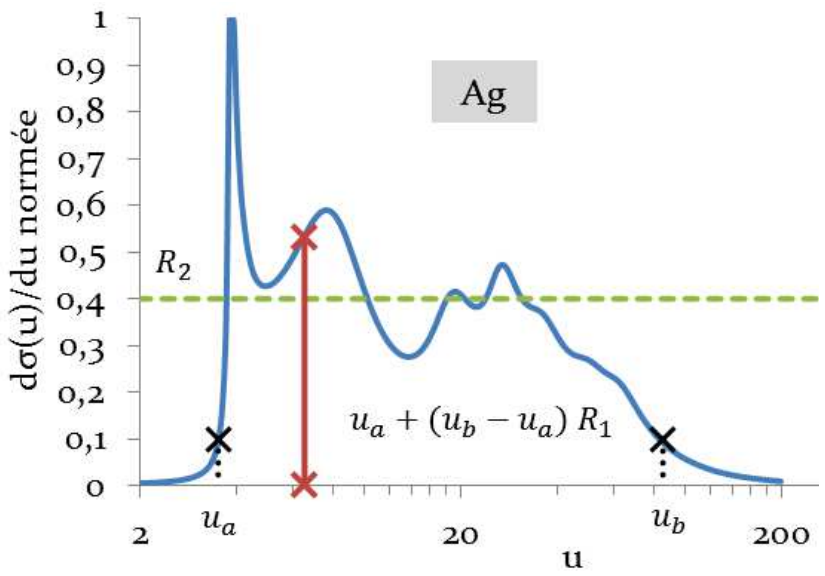


FIGURE 2.16. Illustration de la méthode des rejets sur la distribution normée $d\sigma(u)/du$. La distribution correspond à la section efficace différentielle en énergie transférée pour les électrons faiblement liés de l'argent pour une énergie d'incidence de 200 eV.

Considérons ensuite deux nombres aléatoires R_1 et R_2 compris entre 0 et 1. Si R_1 et R_2 vérifient l'équation (2. 43), la valeur de la grandeur u transférée lors de l'interaction est donnée par la relation (2. 44).

$$F(u_a + (u_b - u_a)R_1) \geq R_2 \quad \textbf{(2. 43)}$$

$$u = u_a + (u_b - u_a)R_1 \quad \textbf{(2. 44)}$$

Si le couple de points (R_1, R_2) ne permet pas de vérifier l'équation (2. 43), le code effectue un nouveau tirage sur les nombres aléatoires R_1 et R_2. Il en résulte que l'utilisation de la méthode des rejets, initialement implémentée dans le code OSMOSEE et le module MicroElec, est couteuse en temps de calculs. Pour diminuer ce temps de calcul, il est possible de réaliser un tirage aléatoire sur la section efficace différentielle cumulée et normée $G(u)$. Dans cette méthode, la valeur probable de u vérifie la relation $G(u) = R_2$.

2.4.2. GRANDEURS ACCESSIBLES PAR LES CODES

En reprenant la description du principe de fonctionnement d'un code de Monte-Carlo de la section 2.4.1, nous pouvons voir que ce type de code permet d'accéder à de nombreuses informations sur les électrons à l'intérieur du matériau : nombre et type d'interactions, profondeur de création des électrons secondaires, profondeur d'implantation des électrons dans le solide ; et sur les électrons émis : nombre et énergie, profondeur d'échappement, etc. A travers le début de ce manuscrit, nous avons déjà défini les grandeurs principales qui vont nous intéresser : les rendements d'émission électronique et les spectres en énergie. Les rendements ont été décrits dans le chapitre 1 à la section 1.3.1. Les spectres en énergie ont été décrits dans la section 2.1.2 de ce chapitre. Dans cette section, nous décrivons les grandeurs caractéristiques des électrons à l'intérieur du solide, telles que les profondeurs caractéristiques et la dose ionisante.

2.4.2.1. PROFONDEURS CARACTÉRISTIQUES

Afin d'obtenir une meilleure compréhension du transport des électrons à l'intérieur d'un solide, nous pouvons chercher à savoir quelle est la profondeur atteinte par un électron incident, depuis quelle profondeur un électron secondaire peut s'échapper d'un solide ou à quelle profondeur il est produit.

Pour caractériser le déplacement des électrons à l'intérieur d'un solide, la première grandeur que nous pouvons évaluer est la distance parcourue par les électrons. Cette grandeur, nommée « parcours », correspond à la somme des libres parcours moyens effectifs l_p définis dans la partie 2.4.1.1. Toutefois, le déplacement des électrons dans le matériau n'est pas rectiligne, car les électrons de basse énergie sont constamment déviés lors des interactions élastiques avec les noyaux des atomes du solide. En conséquence, la plupart des électrons atteignent une profondeur plus faible que leur parcours. Cette profondeur est nommée « profondeur de pénétration ».

À titre d'illustration, un électron primaire d'énergie d'incidence de 100 eV peut parcourir une distance d'environ 19 nm dans l'aluminium, mais en moyenne ne va que jusqu'à 2 nm. La profondeur de pénétration peut être mesurée par le biais de couches minces **[HOL59, ADA80]**. Toutefois, cette méthode de mesure est difficile à mettre en œuvre pour les basses énergies qui nécessitent des couches minces de très faible épaisseur.

Pour étudier l'émission électronique secondaire, c'est-à-dire les électrons qui s'échappent du solide, nous pouvons nous intéresser à deux autres distances caractéristiques :

- la profondeur à laquelle sont créés les électrons secondaires à l'intérieur du solide, nommée « profondeur de production » ;
- la profondeur jusqu'à laquelle les électrons peuvent s'échapper du solide, nommée « profondeur d'échappement ». Cette grandeur est particulièrement intéressante pour les applications d'analyse de surface. Elle peut être déterminée expérimentalement pour les électrons Auger **[KLA74]**.

Néanmoins, au cours de leur déplacement dans le matériau, les électrons subissent un nombre d'interactions différent, ce qui conduit à des distances caractéristiques distinctes, et parfois très différentes, pour chaque électron. Pour donner un sens aux grandeurs définies précédemment, nous devons alors considérer un grand nombre d'électrons. Nous pouvons faire la moyenne de ces distances pour tous les électrons et obtenir ainsi des parcours, profondeurs de pénétration, profondeurs d'échappement et profondeurs de production moyens.

Nous pouvons également uniquement considérer les électrons de plus grands parcours, profondeur de pénétration, profondeur d'échappement et profondeur de

production pour obtenir les distances caractéristiques maximales. Ces distances maximales, obtenues en utilisant un très faible nombre d'électrons, sont alors qualitatives. Afin de réaliser des comparaisons avec les mesures expérimentales, nous pouvons aussi considérer la profondeur atteinte par 1 % des électrons envoyés sur le solide **[KUH99]**.

Pour des raisons de reproductibilité expérimentale, un parcours extrapolé a été défini en prenant en compte les probabilités qu'ont les électrons d'atteindre ces distances caractéristiques. Il s'agit du parcours extrapolé, des profondeurs de pénétration, d'échappement et de production pratiques. Ces profondeurs caractéristiques sont représentées sur la FIGURE 2.17.

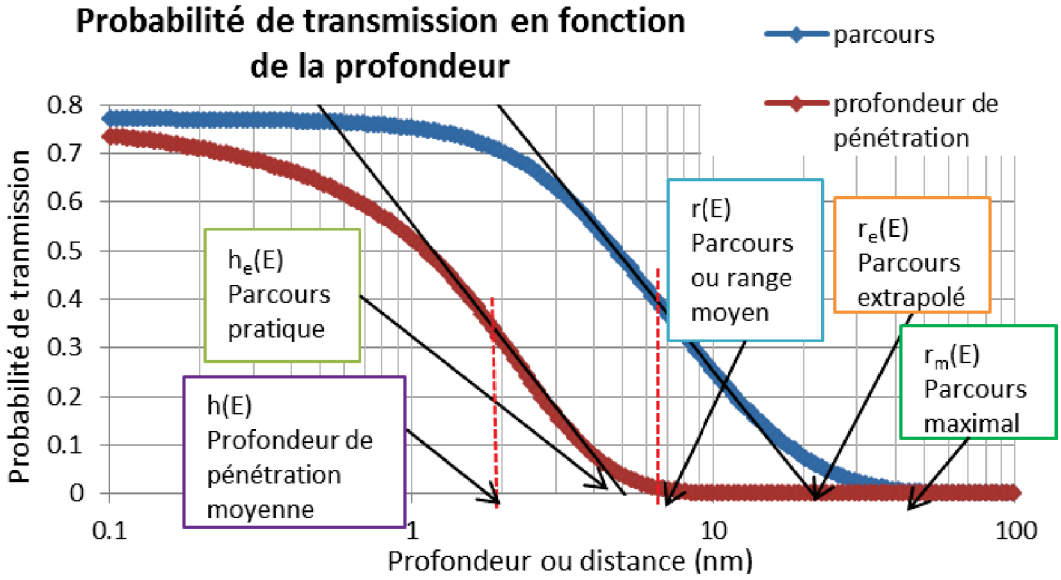


FIGURE 2.17. Probabilités de transmission obtenues via le code OSMOSEE pour des électrons primaires de 100 eV dans l'aluminium et définition des profondeurs caractéristiques.

Les probabilités de transmission sont définies pour chaque énergie du faisceau incident et sont équivalentes à la traversée de couches minces d'épaisseur variable. Pour la profondeur de pénétration, elles représentent le nombre d'électrons du faisceau incident ayant atteint la profondeur h par électron incident ; pour le parcours, elles représentent le nombre d'électrons du faisceau incident ayant parcouru la distance x. Les distances caractéristiques qui leur sont associées sont obtenues en prolongeant la tangente de ces probabilités jusqu'à l'axe des abscisses (comme indiqué sur la FIGURE 2.17).

2.4.2.2. DOSE IONISANTE

Lorsque les électrons d'énergie E_0 d'un faisceau incident pénètrent dans le solide, ils entraînent, en interagissant avec les électrons des atomes du solide, la création de paires électron-trous dans ce solide (ionisation). La dose ionisante est définie comme la somme des énergies déposées lors des processus d'ionisation par une particule incidente et par unité de masse.

Après leur passage dans le solide, les électrons incidents ont une énergie cinétique $E_0 + W$ dans le cas d'un métal et $E_0 + e\chi$ dans le cas d'un semi-conducteur ou un isolant (section 2.3.3). En interagissant avec les électrons du solide, les électrons incidents vont transmettre une partie de leur énergie aux électrons du solide. Une partie de cette énergie est dissipée par réémission des électrons incidents (électrons rétrodiffusés), alors que l'autre partie est transmise au solide par la création d'électrons secondaires lors des interactions inélastiques. Les électrons secondaires peuvent à leur tour s'échapper du solide avec une énergie $E_{secondaires\ émis}$ dans le vide ou transmettre leur énergie en excès au solide par la création de nouveaux électrons secondaires. Nous notons leur énergie dans le solide avant émission $E_{secondaires\ émis} + W$. La cascade électronique créée s'achève lorsque les différents électrons sont émis ou implantés dans le solide avec une énergie résiduelle que nous notons, pour les électrons primaires $E_{résiduelle\ primaires\ déposés}$ et pour les secondaires $E_{résiduelle\ secondaires\ déposés}$. Dans l'exemple d'un métal et en prenant pour référence le niveau de Fermi, nous obtenons la relation (2. 45).

$$\begin{aligned} N_{électrons\ incidents} \times (E_0 + W) &= \sum_{Nélectrons\ rétrodiffusés} (E_{rétro} + W) \\ &+ \sum_{Nélectrons\ secondaires\ émis} (E_{secondaires\ émis} + W) \\ &+ \sum_{Nélectrons\ secondaires\ déposés} (E_{résiduelle\ secondaires\ déposés}) \\ &+ \sum_{Nélectrons\ primaires\ déposés} (E_{résiduelle\ primaires\ déposés}) \end{aligned} \quad \textbf{(2. 45)}$$

Si l'on choisit de prendre pour référence le niveau du vide, il faut ajouter $-W$ à chacun des termes de la relation (2. 45). La dose ionisante, dans le référentiel du solide, est définie par la somme des deux derniers termes. En pratique, pour nos applications, la cascade électronique est arrêtée lorsque les électrons n'ont plus l'énergie suffisante pour franchir la barrière de potentiel de la surface et s'échapper du solide. Cette énergie seuil correspond à une énergie cinétique de W dans un métal et de $e\chi$ dans un semi-conducteur ou un isolant.

La notion d'énergie seuil de la cascade électronique est particulièrement intéressante pour les calculs de doses ionisantes. La FIGURE 2.17 montre qu'il existe un écart pour les basses énergies sur les calculs de dose ionisante pour les électrons dans le silicium lorsque l'énergie seuil est de $e\chi = 4{,}05\ eV$ et pour une énergie seuil élevée de 30 eV.

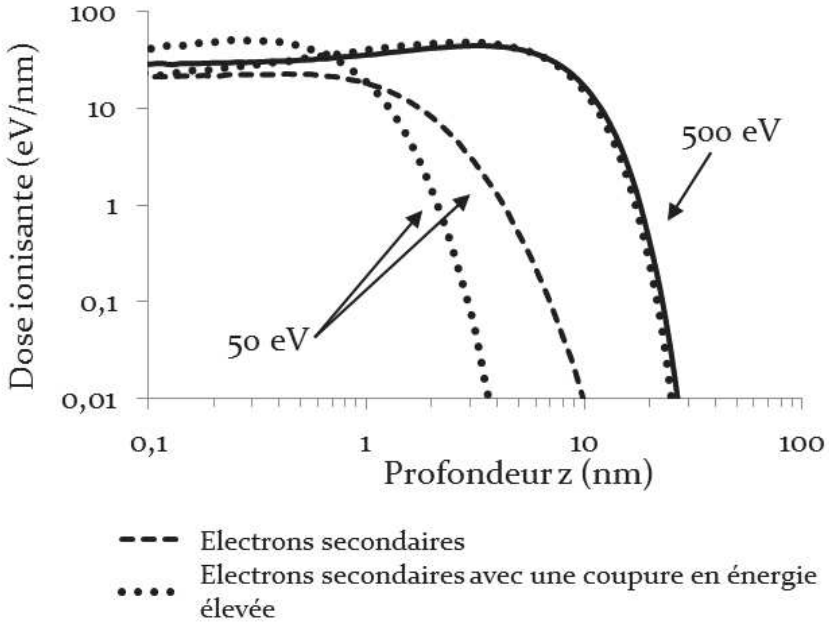


FIGURE 2.18. Calculs de doses ionisantes issus du code OSMOSEE [PIE17] pour les électrons secondaires en considérant une énergie seuil de $e\chi = 4{,}05\ eV$ pour la cascade et une énergie seuil élevée de 30 eV.

En théorie, la cascade électronique continue jusqu'à ce que les électrons n'aient plus assez d'énergie pour réaliser de nouvelles interactions inélastiques et créer des paires électrons-trous. Nous supposons qu'arrêter la cascade à l'énergie seuil W pour un métal ou $e\chi$ pour un semi-conducteur est une approximation valide, car d'une part, à

cette énergie, les électrons ne peuvent plus s'échapper du solide et d'autre part, ils sont continuellement déviés par les noyaux des atomes et restent donc à peu près à la même profondeur.

2.5. CONCLUSION

Nous avons présenté, dans ce deuxième chapitre, les points clefs du transport des électrons dans les matériaux. À basse énergie, nous avons vu que les propriétés d'émission électronique des solides sont le résultat d'une compétition entre différentes interactions : les interactions avec les noyaux, les interactions individuelles avec les électrons faiblement liés des atomes du solide, les interactions avec les plasmons de volume, les interactions avec les plasmons de surface, les interactions avec les électrons de cœur, les processus de désexcitation Auger, les interactions avec les phonons, et la traversée de la barrière de potentiel de la surface.

Afin de pouvoir décrire les interactions dans différents matériaux (métaux, semi-conducteurs, isolants) avec un unique modèle, nous avons choisi de traiter les interactions inélastiques, autre que les phonons, avec le modèle des fonctions diélectriques qui sera décrit plus en détail dans le chapitre suivant. Dans cette optique, nous avons, dès ce deuxième chapitre, identifié les énergies transférées minimale et maximale, ainsi que les conditions d'existence, de ces différentes interactions inélastiques. Nous avons également décrit le principe de fonctionnement du code OSMOSEE et du module MicroElec qui utilisent la méthode statistique de Monte-Carlo. Cette description nous a permis d'identifier les grandeurs que nous devons déterminer afin de modéliser les interactions.

La première grandeur est le libre parcours moyen λ qui correspond à la distance théorique que va parcourir un électron dans le solide avant de réaliser l'interaction. Cette grandeur permet de sélectionner l'interaction à chaque déplacement de l'électron dans un code de Monte-Carlo.

Les deuxième et troisième grandeurs que nous devons déterminer sont la section efficace différentielle en énergie transférée et la section efficace différentielle en angle de déviation. La section efficace différentielle en angle de déviation est utilisée pour déterminer l'angle de déviation dans le cas des interactions élastiques via la méthode des rejets. La section efficace différentielle en énergie transférée est utilisée pour

déterminer l'énergie transférée lors de l'interaction dans le cas des différentes interactions inélastiques entre les électrons, via la méthode des rejets également. Nous allons, dans le chapitre 3, décrire plus en détail ces différentes grandeurs.

CHAPITRE 3 : MODÉLISATION DU TRANSPORT DES ÉLECTRONS DANS LES CODES OSMOSEE ET MICROELEC

3.1. INTRODUCTION

Dans le cadre de cette thèse, nous allons tout particulièrement nous intéresser à trois matériaux : l'aluminium, l'argent et le silicium. Comme mentionné dans le chapitre 2, l'aluminium est un métal simple à modéliser, car il possède une unique population d'électrons faiblement liés. Ce matériau, déjà implémenté dans le code OSMOSEE par le biais de modèles analytiques, nous a servi de référence pour implémenter le modèle des fonctions diélectriques.

L'argent est un matériau couramment utilisé pour les applications spatiales, comme nous avons pu le voir dans le chapitre 1. Toutefois, il s'agit d'un métal de transition qui possède une structure de bandes électroniques plus complexe que l'aluminium. Pour ce matériau, nous pouvons distinguer deux populations d'électrons faiblement liés : les électrons de la bande 5s et les électrons de la bande 4d. Les électrons de la bande 4d sont plus fortement liés aux noyaux des atomes que les électrons de la bande 5s **[SEK10]**. À des fins de simplification, il est courant de modéliser les métaux par un gaz d'électrons libres. Si cette hypothèse est vérifiée pour l'aluminium, pour l'argent, elle est discutable pour les électrons de la bande 4d. En ce sens, l'argent est un métal très intéressant pour étudier les limites de notre modélisation.

Le silicium est un semi-conducteur qui possède un plasmon de volume bien défini sur les spectres en pertes d'énergie. Les électrons faiblement liés de sa bande de valence peuvent être modélisés par un gaz d'électrons libres **[STI78]**. Ce matériau, déjà implémenté en partie dans le module MicroElec, nous a permis, par comparaison avec le code OSMOSEE, d'étendre la validité du module MicroElec à plus basse énergie.

3.2. MODÉLE DES FONCTIONS DIÉLECTRIQUES

Nous avons choisi de décrire les interactions entre les électrons dans les trois matériaux étudiés par le modèle des fonctions diélectriques. Dans ce modèle, la section efficace différentielle en énergie transférée $\hbar\omega$ et en moment transféré $\hbar q$ est directement proportionnelle à la fonction diélectrique $\varepsilon(\hbar\omega, \hbar q)$ selon une relation relativement simple (section 3.2.2). Pour obtenir une expression de la fonction diélectrique, nous allons utiliser le modèle initialement décrit par Ritchie et Howie **[RIT77]**, aussi appelé modèle de « Drude étendu ». Son avantage est qu'il permet, en décrivant la fonction diélectrique à partir de données expérimentales, de s'affranchir des structures des bandes électroniques des matériaux. Ce modèle permet de décrire séparément les interactions avec les électrons de cœur et les électrons faiblement liés du solide, et dans l'hypothèse d'un gaz d'électrons libres, permet de séparer la contribution des interactions individuelles des électrons faiblement liés et la contribution des plasmons de volume **[GAN79]**. Comme mentionné dans le chapitre 2, en modifiant la fonction diélectrique décrivant les interactions de volume, ce modèle permet également de décrire les interactions avec les plasmons de surface **[DAP08]**.

Le modèle des fonctions diélectriques s'appuie sur la mécanique quantique. Avant d'écrire les principales équations utilisées dans la section 3.2.2, nous allons, dans un premier temps, rappeler le problème étudié et ses principales hypothèses. La démonstration peut être trouvée dans les travaux de Pines **[PIN64]**. Les grandes lignes sont rappelées en annexe 2. Une description plus appliquée des équations et de leur signification physique peut être trouvée dans l'ouvrage de Nikjoo et coll. **[NIK12]**.

3.2.1. ORIGINE ET LIMITES DU MODÈLE

Nous avons vu, dans le chapitre 2, comment l'impact d'un électron incident sur un solide va perturber les électrons de ce solide, en interagissant avec un électron de cœur, ou avec un électron faiblement lié de la bande de conduction (métal) ou de la bande de valence (semi-conducteur). Afin de déterminer la section efficace différentielle $d\sigma/d(\hbar\omega)d(\hbar q)$ associée à l'interaction, nous pouvons établir plusieurs hypothèses dans le cas où nous nous intéressons aux interactions entre l'électron incident et un électron de cœur, et dans le cas où nous nous intéressons aux interactions entre l'électron incident et les électrons faiblement liés du solide.

3.2.1.1. UN PROBLEME SANS SOLUTION EXACTE

A des fins de simplifications, nous supposons qu'avant l'interaction, à un temps $t = -\infty$, l'électron est situé suffisamment loin du solide pour être considéré comme libre. Avant l'interaction, le solide est situé dans son état fondamental (noté $|0\rangle$) et le système au repos est formé par l'électron isolé et le solide. Lorsque l'électron incident se rapproche du solide à un instant $t = t_0$, il est soumis à un potentiel d'interaction V. Nous supposons également qu'après l'interaction, à un temps $t = +\infty$, l'électron est situé suffisamment loin du solide pour être considéré à nouveau comme libre. Après l'interaction, le solide est situé dans un état noté $|n\rangle$.

Le potentiel d'interaction V dépend de la distance entre l'électron et les électrons du solide et, en conséquence, est dépendant du temps. La fonction d'onde qui décrit l'ensemble du système électron-solide en interaction est alors solution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps. Dans notre problème, cette équation ne possède pas de solution exacte — puisque l'état final dépend du potentiel qui lui-même dépend de la position de l'électron incident et de l'ensemble des électrons du solide. Afin de la résoudre avec une solution approximative, nous allons nous placer dans le cadre de la première approximation de Born. Cette hypothèse nous permet d'utiliser la théorie de la faible perturbation, et ainsi, d'obtenir une expression approchée de la fonction d'onde — et donc du taux de transition de l'état initial $|0\rangle$ à l'état final $|n\rangle$ qui est directement lié à la section efficace différentielle.

3.2.1.2. APPROXIMATION DE BORN ET THÉORIE DE LA FAIBLE PERTURBATION

La première approximation de Born, nous permet de considérer que l'électron incident peut être décrit par des ondes planes. Cette première hypothèse est cohérente avec le fait qu'avant et après l'interaction, l'électron est suffisamment éloigné du solide pour ne plus être soumis au potentiel de l'interaction. Cela signifie, de manière similaire au problème décrit pour définir les sections efficaces dans la section 2.2.2.2. du chapitre 2, qu'un électron ne réalise qu'une seule interaction avec le solide.

La première approximation de Born, nous permet également de formuler l'hypothèse que la perturbation induite par l'électron incident sur le solide peut être considérée comme faible. Cette hypothèse signifie que l'électron incident a une vitesse

suffisamment élevée pour être peu perturbé par l'interaction inélastique. Cela implique, d'une part, que l'état final de l'électron incident est assez proche de son état initial, et d'autre part, que l'électron incident doit avoir une vitesse beaucoup plus grande que les électrons du solide. Pour les électrons les plus énergétiques situés sur les orbitales K des atomes, une condition de validité peut être exprimée d'après le modèle de Bohr par $T \gg 13{,}6\, Z^2$ où T (en eV) est l'énergie cinétique de l'électron incident **[NIK12]**. Pour l'aluminium, le silicium et l'argent, nous obtenons une énergie limite respectivement de 2,3 ; 2,6 et 30 keV. Cependant, la limite de validité de l'approximation de Born n'est pas définie précisément. Les pertes d'énergies étant principalement le fait des électrons faiblement liés aux atomes, nous nous attendons à ce que l'erreur commise sur les interactions avec les électrons de cœur soit faible.

En pratique, l'approximation de Born est considérée valide pour des énergies de l'ordre de 300 eV **[NIK12]**. Pour des énergies inférieures à 100 eV, l'hypothèse d'une faible perturbation peut être remise en question, notamment à cause des effets d'échange et de corrélation qui peuvent se produire entre deux électrons de vitesse comparable. L'effet d'échange correspond à la prise en compte du principe d'exclusion de Pauli. Cet effet signifie qu'un électron va être entouré d'une région où la densité d'électrons de même spin est réduite à cause de sa présence. La corrélation traduit le fait que dans un solide, le mouvement d'un électron dépend de celui des autres électrons. Cet effet est davantage marqué pour les matériaux ayant des couches d et f partiellement remplies comme les lanthanides. Il est possible qu'à basse énergie les effets d'échange et de corrélation se compensent pour les matériaux ayant des couches d entièrement remplies.

Certains auteurs, tels que Ashley et coll. **[ASH91]** et Fernandez-Varea et coll. **[FERN05]** utilisent des corrections pour prendre en compte les effets d'échange. La prise en compte de ces effets a été discutée par Powell et Jablonski **[POW99]**, et Tanuma et coll. **[TAN11]**. L'ajout d'une correction prenant en compte les effets d'échange dans les modèles introduit une différence d'environ 10-15 % pour le libre parcours moyen inélastique entre 50 et 100 eV **[POW99]**. A des fins de simplifications, nous n'avons pas considéré de corrections pour ces effets, d'autant plus qu'il est possible que ces effets soient masqués par les incertitudes des mesures expérimentales sur lesquelles notre modèle s'appuie.

La première approximation de Born permet de trouver une expression simplifiée du potentiel V caractérisant l'interaction entre l'électron incident et un

électron de cœur d'un atome du solide, ou entre l'électron incident et les électrons faiblement liés du solide.

Dans le cas d'une interaction avec un électron de cœur, l'interaction de la particule incidente avec les électrons du milieu va être traitée comme la diffusion de l'onde incidente associée à l'électron sur le potentiel d'interaction V défini par un unique centre diffuseur. Cela signifie, qu'à des fins de simplifications, nous supposons, de manière similaire à la définition de la section efficace du chapitre 2, que les atomes du solide sont suffisamment éloignés les uns des autres pour que l'électron incident n'interagisse qu'avec un seul atome. En ce sens, nous négligeons les phénomènes de diffusion multiple. Dans ces hypothèses, le potentiel de l'interaction peut être décomposé en fonction d'un facteur d'oscillation noté $df_n/d\omega$ qui symbolise la force de l'oscillation (voir l'équation (3. 4)).

Dans le cas d'une interaction avec les électrons faiblement liés du solide, pour simplifier le problème, nous supposons que le solide peut être modélisé par un gaz d'électrons libres. Les noyaux des atomes forment alors un fond uniforme de charges positives. L'électron incident entraîne une modification de la densité des électrons du solide. Cette densité est donc dépendante du temps. Dans le cas d'une faible perturbation, nous considérons que cette modification de la densité de charges du gaz d'électrons libres est suffisamment faible pour être traitée comme une perturbation linéaire. Nous pouvons écrire le potentiel V de l'interaction en fonction de la densité électronique $\rho(\vec{r})$ du gaz d'électrons libres à la position $\vec{r}$. Les hypothèses que nous avons formulées, nous permettent, en résolvant l'équation de Schrödinger dépendante du temps, d'obtenir le taux de transition mais aussi une expression approchée de la fluctuation $\langle\rho_k(t)\rangle$ de la densité de charges électroniques. Cette description microscopique traduit bien le fait qu'un électron incident va perturber les orbitales des électrons de l'atome lors d'une unique interaction entraînant le passage de l'atome de son état fondamental à un état excité $|n\rangle$. L'intérêt est qu'il est possible de relier la densité de la charge électronique $\langle\rho_k(t)\rangle$ à la fonction diélectrique $\varepsilon(k,\omega)$.

D'un point de vue macroscopique, la fonction diélectrique $\varepsilon(k,\omega)$ correspond à la réponse de l'ensemble des électrons d'un solide lorsque ce solide est perturbé par une onde électromagnétique, par exemple un flux de photons ou d'électrons dont le champ électrique de pulsation ω et de vecteur d'onde k est noté $\vec{E}(k,\omega)$. Dans l'hypothèse d'un milieu linéaire, homogène et isotrope, la fonction diélectrique est

définie dans le système d'unité SI par la relation (3. 1) où $\vec{D}(k,\omega)$ correspond au vecteur déplacement.

$$\vec{D}(k,\omega) = \varepsilon_0 \varepsilon(k,\omega)\vec{E}(k,\omega) \quad \textbf{(3. 1)}$$

Les équations de Maxwell et de Poisson nous indiquent que cette fonction peut être directement reliée à la fluctuation de la densité de charges électroniques induite par l'électron incident, et donc au taux de transition. Nous pouvons alors déduire une expression simplifiée de la section efficace différentielle de l'interaction avec la fonction diélectrique (voir l'équation (3. 2)). Dans la suite de ce manuscrit, en utilisant des approximations supplémentaires, nous verrons qu'il est possible d'obtenir une expression approchée de la fonction diélectrique $\varepsilon(k,\omega)$ (section 3.2.3).

3.2.2. ÉQUATIONS PRINCIPALES

Dans le modèle des fonctions diélectriques, la section efficace différentielle $d^2\sigma/d(\hbar\omega)d(\hbar q)$, qui correspond à l'interaction entre un électron incident et les électrons faiblement liés du solide au cours de laquelle l'électron incident d'énergie E transfère une énergie $\hbar\omega$ et un moment $\hbar q$, peut être décrite par la fonction diélectrique $\varepsilon(\hbar\omega, \hbar q)$ via l'équation (3. 2).

$$\frac{d^2\sigma}{d(\hbar\omega)d(\hbar q)} = \frac{1}{N\pi a_0 E} Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\hbar\omega,\hbar q)}\right]\frac{1}{\hbar q} \quad \textbf{(3. 2)}$$

Dans cette équation, a_0 désigne le rayon de Bohr, et N correspond à la densité atomique du solide. Le rayon de Bohr est donné par la relation (3. 3) en unité SI :

$$a_0 = \frac{4\pi\hbar^2\varepsilon_0}{me^2} \quad \textbf{(3. 3)}$$

La partie imaginaire de l'inverse de la fonction diélectrique, appelée « fonction de perte d'énergie » (ou ELF pour « Energy Loss Function » en anglais), représente les processus de polarisation qui sont en déphasage avec le champ extérieur introduit par l'électron incident et est donc directement associée aux transferts en énergie.

Dans les codes de transport d'électrons à basse énergie, le traitement des interactions avec les électrons de cœur est séparé de celui des électrons faiblement liés. Au lieu d'utiliser la fonction diélectrique, il est possible d'utiliser le modèle du « Generalized Oscillator Strength » (GOS) **[ASH91]**. Ce modèle, qui considère des atomes isolés, met en avant le fait que les électrons de cœur sont davantage liés aux noyaux que les électrons faiblement liés, et considère les électrons comme des oscillateurs. Dans ce modèle, la section efficace différentielle $d^2\sigma/d(\hbar\omega)d(\hbar q)$ est décrite par l'équation (3. 4) où $df_n/d\omega$ correspond à la force de l'oscillation.

$$\frac{d^2\sigma}{d(\hbar q)d(\hbar\omega)} = \frac{2\pi e^2}{a_0 E\hbar q\, m\omega}\frac{df_n(\hbar\omega, q=0)}{d(\omega)} \qquad \textbf{(3. 4)}$$

L'équation (3. 5) du GOS peut être identifiée à l'équation de la fonction diélectrique (3. 2) en utilisant la relation (3. 5) **[ASH75]**.

$$Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\hbar\omega, \hbar q)}\right] \approx Im[\varepsilon(\hbar\omega, \hbar q)] \approx \frac{2\pi^2 Ne^2}{m\omega}\frac{df_n(\hbar\omega, q=0)}{d(\omega)} \qquad \textbf{(3. 5)}$$

En conséquence, de même qu'Akkerman et coll. **[AKK05]** et Valentin et coll. **[VAL12]**, nous utiliserons le modèle de la fonction diélectrique décrit par l'équation (3. 2) à la fois pour les électrons faiblement liés et pour les électrons de cœur. Comme mentionné dans le chapitre 2, l'utilisation du modèle des fonctions diélectriques pour les électrons de cœur est valable dans l'hypothèse où les interactions avec les électrons faiblement liés sont majoritaires devant les interactions avec les électrons de cœur.

Par définition, la section efficace différentielle en énergie s'obtient par intégration de l'équation (3. 2) sur les moments transférés $\hbar q$:

$$\frac{d\sigma(E, \hbar\omega)}{d(\hbar\omega)} = \int_{q_{min}}^{q_{max}} \frac{1}{N\pi a_0 E} Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\hbar\omega, \hbar q)}\right]\frac{dq}{q} \qquad \textbf{(3. 6)}$$

Le libre parcours moyen λ s'obtient par intégration de l'équation (3. 6) sur les énergies transférées :

$$\lambda^{-1}(E) = \int_{\hbar\omega_{min}}^{\hbar\omega_{max}} \int_{q_{min}}^{q_{max}} \frac{1}{\pi a_0 E} Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\hbar\omega, q)}\right]\frac{1}{\hbar q} d(\hbar q)d(\hbar\omega) \qquad \textbf{(3. 7)}$$

Afin de calculer ces grandeurs, nous devons déterminer la fonction diélectrique $\varepsilon(\hbar\omega, \hbar q)$ ainsi que les énergies et les moments transférés qui définissent les bornes de l'intégrale. Il est possible d'utiliser le modèle des fonctions diélectriques pour décrire les interactions entre les protons et les électrons, et les interactions entre les ions et les électrons. Pour les protons, les équations précédentes sont modifiées en jouant sur les bornes des moments et des énergies transférés de l'intégrale (3. 7) **[VAL12]**. La section efficace des interactions inélastiques entre les ions et les électrons est déduite de celle des protons en ajoutant un facteur correctif qui prend en compte la charge et la masse de l'ion.

3.2.3. MODÉLISATION DE LA FONCTION DE PERTE D'ÉNERGIE

Deux approches sont couramment utilisées pour modéliser la fonction de perte d'énergie. La première approche consiste à déterminer une expression théorique de cette fonction en utilisant un certain nombre d'approximations. C'est l'approche des modèles de Lindhard **[LIND54]**, de Mermin **[MER70]**, et de Vashishta et Singwi **[VAS72]**. La deuxième approche consiste à modéliser cette fonction à partir de données expérimentales. Une méthode couramment utilisée a été proposée par Ritchie et Howie **[RIT77]** à partir de la mesure des indices optiques.

3.2.3.1. EXPRESSION APPROCHÉE DE LA FONCTION DIÉLECTRIQUE

Les modèles de Lindhard **[LIND54]** et de Mermin **[MER70]** sont les plus couramment utilisés pour obtenir une expression approchée de la fonction diélectrique. Ces deux modèles reposent sur l'hypothèse d'un gaz d'électrons libres et l'approximation de la phase aléatoire. Dans cette première hypothèse, les cœurs ioniques forment un fond uniforme de charges positives. Les électrons faiblement liés aux atomes du solide sont soumis à un potentiel constant de la part des cœurs ioniques. Dans l'approximation de la phase aléatoire (RPA pour « Random Phase Approximation » en anglais), chaque électron interagit avec un champ coulombien moyen généré par tous les autres électrons. Cela revient à prendre en compte une unique interaction à longue portée.

Dans ces approximations, le modèle de Lindhard **[LIND54]** permet de modéliser les matériaux tels que l'aluminium ou les halogénures alcalins, qui peuvent être considé-

rés comme des gaz d'électrons libres. Ces matériaux ont la propriété d'avoir un plasmon de volume bien défini. L'avantage du modèle de Lindhard est qu'il inclut directement une dépendance en moment transféré $\hbar q$ dans la fonction de perte d'énergie. Toutefois, ce modèle ne prend pas en compte l'amortissement du plasmon de volume. Cela signifie que le plasmon de volume a une durée de vie infinie. Pour améliorer le traitement de Lindhard, Mermin **[MER70]** ajoute une constante d'amortissement. Pour aller au-delà de l'approximation RPA, Vashishta et Singwi **[VAS72]** ont modifié l'expression de la fonction diélectrique de Lindhard en introduisant la polarisabilité électronique, ainsi que les effets de corrélation et d'échange (spin de l'électron) induits par l'électron incident. Vashishta et Singwi considèrent donc que les électrons ne sont pas distribués de manière homogène dans le matériau.

Le principal inconvénient des modèles de Lindhard, de Mermin, et de Vashista et Singwi est qu'ils ne sont pas adaptés à des matériaux complexes, comme l'argent ou le cuivre, qui possèdent plusieurs pics associés à des plasmons. Des améliorations de ces modèles existent, notamment le modèle étendu de Mermin **[DA14]** qui correspond à une somme de fonctions de Mermin et permet ainsi de traiter les matériaux complexes. Le modèle étendu de Mermin est optimisé avec l'aide de mesures expérimentales et est, en ce sens, similaire au modèle de Ritchie et Howie **[RIT77]** que j'ai choisi d'utiliser. Toutefois, les modèles du gaz d'électrons libres ne sont pas censés être valides pour les basses énergies, car ils ne prennent pas en compte la structure des bandes électroniques des matériaux qui devient très importante en dessous de 100 eV **[ZIA06]**.

3.2.3.2. MODÉLISATION PAR DES DONNÉES EXPÉRIMENTALES

La fonction de perte d'énergie peut être déterminée expérimentalement par des mesures d'électrons ou des mesures de photons. La mesure par les photons présente l'avantage de ne pas prendre en compte les phénomènes de diffusion multiple. La méthode couramment utilisée à haute énergie consiste à déterminer les indices optiques par l'envoi d'un faisceau de photons sur le solide. Toutefois, l'inconvénient de cette méthode est que les photons ont un moment transféré très faible. En conséquence, la mesure des indices optiques permet d'obtenir uniquement la fonction de perte d'énergie pour $q \approx 0$, appelée « fonction de perte d'énergie optique » (OELF en anglais pour « Optical Energy Loss Function »). La méthode de Ritchie et Howie **[RIT77]** consiste à modéliser cette fonction et à l'étendre à $q \neq 0$ en utilisant des relations de dispersion.

La mesure par les électrons, notamment via les spectres de réflexion (REELS en anglais pour « Reflection Electron Energy-Loss Spectroscopy ») est complexe à mettre en œuvre. Cette méthode consiste à mesurer un spectre puis à le traiter mathématiquement pour enlever la contribution des phénomènes de diffusion multiple. Contrairement aux mesures de photons, qui ne prennent en compte que la contribution des interactions ayant lieu dans le volume, les mesures par électrons présentent l'avantage de donner des informations sur la contribution de la surface qui devient plus importante à basse énergie **[ZHA06]**. La séparation de ces deux contributions est également complexe à mettre en œuvre. Que ce soit pour les mesures avec des photons ou des électrons, la principale difficulté de la modélisation par des données expérimentales consiste à obtenir un jeu de données fiables pour la fonction de perte d'énergie optique **[DA14]**.

3.2.3.2.1. FONCTION DE PERTE D'ÉNERGIE OPTIQUE

INDICES OPTIQUES

Si nous reprenons la définition de la fonction diélectrique, nous comprenons pourquoi cette fonction est accessible par des mesures de photons. En effet, la lumière peut être considérée comme une onde électromagnétique oscillant périodiquement, ce qui va entraîner une fluctuation de la densité de charges des électrons du solide. Le champ électrique de l'onde lumineuse à l'intérieur du solide peut s'écrire sous la forme (3. 8) :

$$\vec{E}(\vec{k}\vec{r},\omega t) = E_0\, e^{-i(\vec{k}\vec{r}-\omega t)} = E_0 e^{-i(\vec{k'}\vec{r}-\omega t)} e^{\vec{k''}\vec{r}} \qquad \textbf{(3. 8)}$$

Dans cette notation, le vecteur d'onde $\vec{k}$ est complexe et son amplitude se décompose en $k = k' + ik''$. Les équations de Maxwell montrent que la relation de dispersion de la lumière dans le solide s'écrit :

$$\frac{\omega}{k} = \frac{c}{\sqrt{\varepsilon(\hbar\omega, \hbar q = 0)}} \qquad \textbf{(3. 9)}$$

En posant :

$$\varepsilon(\hbar\omega, \hbar q = 0) = (n + i\kappa)^2 \qquad \textbf{(3. 10)}$$

nous voyons que l'indice n associé à la partie réelle du vecteur d'onde k' rend compte de la modification de la vitesse de la lumière dans le matériau, alors que l'indice κ associé à la partie imaginaire du vecteur d'onde k'' rend compte de l'absorption de l'onde par le milieu.

La fonction de perte d'énergie optique est accessible via la mesure des indices de réfraction $n(\omega)$ et d'absorption $\kappa(\omega)$ par l'équation (3. 11).

$$Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\hbar\omega, \hbar q = 0)}\right] = \frac{2n(\hbar\omega)\kappa(\hbar\omega)}{(n(\hbar\omega)^2 + \kappa(\hbar\omega)^2)^2} \quad \textbf{(3. 11)}$$

Il existe des bases de données regroupant ces mesures pour les basses énergies, ce qui permet de traiter un grand nombre de matériaux (métaux, semi-conducteurs ou isolants). La plus connue est celle du Handbook de Palik **[PALI97]**. Toutefois, ces données sont une compilation des mesures de plusieurs auteurs. Leur précision diffère selon l'état ou le traitement de la surface des échantillons (oxydation de la surface, occlusion de gaz, défauts cristallins) et selon les méthodes expérimentales utilisées (mesures sur des films obtenus par évaporation, solides massifs), ce qui explique que les incertitudes sur ces données sont difficiles à évaluer. Cela est particulièrement vrai à basse énergie où les incertitudes sont davantage marquées **[POW69]** et où il est parfois nécessaire de réaliser une interpolation sur plusieurs jeux de données.

Lorsqu'un photon interagit avec un électron du solide, il va transférer l'ensemble de son énergie à l'électron (effet photoélectrique). Ce dernier, en quittant son niveau d'énergie initial, accède à un niveau d'énergie plus élevé accessible. Pour les électrons faiblement liés, l'énergie de liaison correspond à l'énergie nécessaire pour que l'électron passe de la bande de conduction ou de la bande de valence à un état accessible du continuum de la bande de conduction. Les interactions qui s'en suivent sont alors similaires à celles d'un électron avec les autres électrons de l'atome. Les photons ayant un moment très faible, nous comprenons pourquoi la fonction de perte d'énergie optique correspond à la probabilité qu'un électron perde une énergie transférée $\hbar\omega$ pour un moment transféré $\hbar q \approx 0$. Il en résulte qu'elle va présenter des pics, qui sont directement liés aux énergies de liaison des atomes, et qui vont donc être propres au matériau étudié.

MODÈLE DE DRUDE ÉTENDU

Pour modéliser chacun des k pics de la fonction de perte d'énergie optique, j'ai utilisé l'expression de Ritchie et Howie **[RIT77]** qui correspond à une somme de fonctions de Drude **[VAL12, NIK12]**, et est aussi appelé « modèle de Drude étendu ». Dans ce modèle, les électrons faiblement liés sont considérés comme des oscillateurs harmoniques soumis un amortissement $\beta = m\Gamma$. Dans la mécanique classique, le déplacement moyen $\vec{\xi}$ de ces électrons est donné par l'équation (3. 12) où $\vec{E}$ désigne le champ électrique.

$$m\ddot{\vec{\xi}} + \beta\dot{\vec{\xi}} = -e\vec{E} \qquad \textbf{(3. 12)}$$

La résolution de l'équation du mouvement (3. 12), dans l'hypothèse d'un champ électrique de la forme $\vec{E}(t) = \overrightarrow{E_0}e^{-i\omega t}$, nous amène à l'expression de $\vec{\xi}$ (3. 13) à partir de laquelle nous pouvons déduire l'expression de la fonction diélectrique $\varepsilon_D(\omega)$ (3. 14). Le terme ω_p désigne la pulsation du plasmon de volume dans la théorie du gaz d'électrons libres **[NIK12]** (voir section 3.2.3.2.2).

$$\vec{\xi} = \frac{e\vec{E}}{m\omega^2 + i\omega m\Gamma} \qquad \textbf{(3. 13)}$$

$$\varepsilon_D(\omega) = 1 - \frac{{\omega_p}^2}{\omega^2 + i\omega\Gamma} \qquad \textbf{(3. 14)}$$

Nous pouvons remarquer que lorsque $\omega = \omega_p$, nous avons la relation pour le plasmon de volume $\varepsilon_D(\omega_p) = \frac{\Gamma}{\Gamma - i\omega_p} \approx 0$ dans l'hypothèse où Γ est très faible.

La fonction diélectrique $\varepsilon_D(\omega)$ obtenue dans le modèle de Drude ne prend pas en compte les électrons de cœur fortement liés aux noyaux des atomes et les transitions interbandes. Pour prendre en compte ces électrons, nous considérerons une fonction de Drude modifiée $\varepsilon_{DM}(\omega)$ dont l'expression est donnée par (3. 15) :

$$\varepsilon_{DM}(\omega) = 1 + \sum_n f_n \frac{{\omega_p}^2}{{\omega_n}^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma} \qquad \textbf{(3. 15)}$$

Dans cette expression, le coefficient f_n représente l'amplitude de l'oscillation associée à la transition n, au cours de laquelle, l'électron est soumis à une constante de rappel $k_n = m{\omega_n}^2$. Par analogie, nous pouvons réécrire l'expression de la fonction de perte d'énergie optique (3. 16) à partir de l'expression de la fonction de Drude modifiée **[VAL12]**.

$$Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\hbar\omega, q=0)}\right] = \sum_k \frac{A_j(k)\Gamma_j(k)\hbar\omega.\Theta(\hbar\omega - E_{bj}(k))}{(E_j(k)^2 - \hbar\omega^2)^2 + (\hbar\omega)^2\Gamma_j(k)^2} \qquad \textbf{(3. 16)}$$

Les coefficients $A_j(k)$ en eV², $\Gamma_j(k)$ en eV et $E_j(k)$ en eV correspondent respectivement à l'amplitude, la largeur et l'abscisse des pics de la fonction de perte d'énergie optique. L'enjeu consiste à déterminer ces coefficients à partir des indices optiques et de la relation (3. 11). La fonction Θ représente une fonction de Heaviside et permet d'introduire dans l'expression une énergie seuil $E_{bj}(k)$ à partir de laquelle la transition k devient possible. Cette fonction est particulièrement utile pour décrire les ionisations (pics asymétriques) où les énergies $E_{bj}(k)$ correspondent aux énergies de liaison des niveaux de cœur. Comme il s'agit d'énergies transférées, les abscisses des pics associés à ces interactions correspondent directement aux énergies de liaison par rapport au niveau de Fermi dans un métal et par rapport au haut de la bande de valence dans un semi-conducteur ou un isolant.

La principale limite de ce modèle est que la dépendance en moment transféré $\hbar q$ n'est pas directement incluse dans la fonction de perte d'énergie. Afin d'inclure cette dépendance, nous allons utiliser des relations de dispersion en remplaçant $E_j(k)$ par $E_j(k,q)$ et $\Gamma_j(k)$ par $\Gamma_j(k,q)$. Ce point est décrit dans la section 3.2.3.2.2.

IDENTIFICATION DES PICS

Les fonctions de perte d'énergie optique de l'aluminium, de l'argent et du silicium sont données respectivement par la FIGURE 3.1, la FIGURE 3.2 et la FIGURE 3.3. Sur ces figures, les pics de haute énergie correspondent aux transitions des niveaux de cœur. Nous pouvons distinguer clairement la séparation entre les couches K et L pour l'aluminium et le silicium, et entre les couches M et N pour l'argent. Toutefois, nous pouvons remarquer que la séparation entre les couches N1 et N2,3 de l'argent et les électrons faiblement liés de la bande de conduction n'est pas évidente **[KUH99]**.

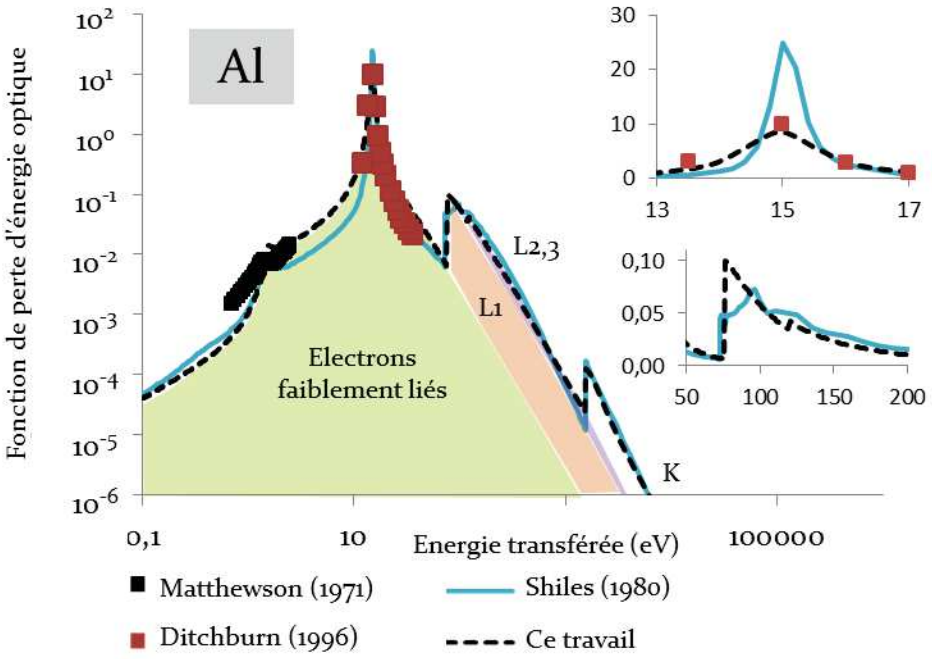


FIGURE 3.1. Fonction de perte d'énergie optique pour l'aluminium. Les données de la littérature proviennent de la base de données de Palik [PALI97] et sont des mesures sur des échantillons polycristallins. Nous pouvons observer un bon accord avec les mesures de Ditchburn. La séparation des contributions des différentes interactions est donnée à titre d'illustration à partir d'une fonction de perte d'énergie optique reconstruite avec un fit des données optiques par l'équation (3. 16).

Lorsque les pics associés aux électrons de cœur sont clairement distincts, nous pouvons considérer que chaque sous-couche électronique est directement associée à un unique pic. Dans notre modèle, nous intégrons donc l'équation (3. 2) sur le pic correspondant pour obtenir le libre parcours moyen associé à la sous-couche électronique **[VAL12]**.

A plus basse énergie, nous pouvons voir pour l'aluminium et le silicium un large pic qui correspond à la réponse de l'ensemble des électrons faiblement liés (plasmon de volume et interactions individuelles). Certains matériaux, notamment les métaux de transitions comme l'argent, le cuivre ou l'or, présentent de nombreux pics sur leur fonction de perte d'énergie optique à basse énergie. Ces pics sont caractéristiques, soit des plasmons de volume, soit de transitions interbandes. Ces transitions désignent le passage pour un électron d'un état occupé à un état inoccupé au sein de la même bande électronique.

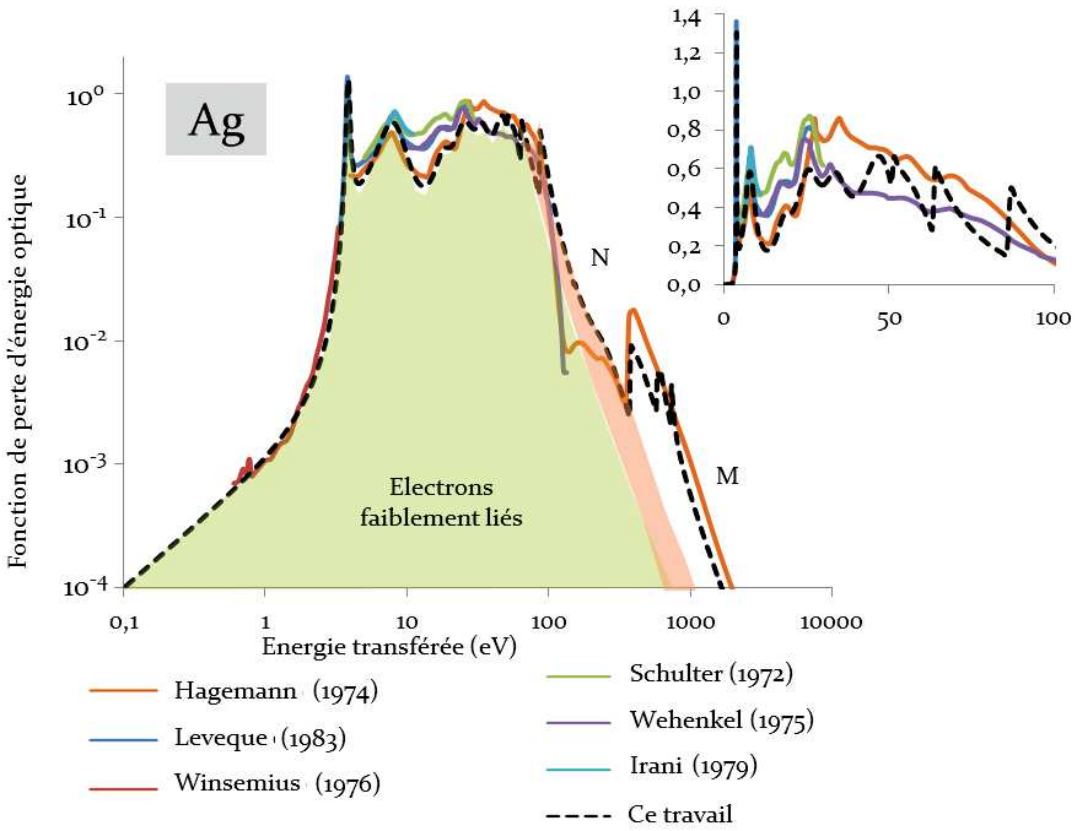


FIGURE 3.2. Fonction de perte d'énergie optique pour l'argent. Les données proviennent de [PALI97, LEV83, WEH75] et sont des mesures sur des échantillons polycristallins.

Pour un métal, les transitions interbandes correspondent au passage d'un électron faiblement lié situé au niveau de Fermi au prochain niveau de plus haute énergie accessible dans la bande de conduction, ou au passage d'un électron faiblement lié situé dans un niveau occupé de la bande de conduction (par exemple la bande d) au niveau de Fermi. Afin d'obtenir la contribution des électrons faiblement liés au libre parcours moyen, nous intégrons l'équation (3. 2) sur l'ensemble des pics à basse énergie correspondant aux plasmons et aux transitions interbandes.

Pour l'aluminium, la FIGURE 3.1 montre un large pic à 15 eV qui correspond au plasmon de volume et un pic de faible amplitude à 1,5 eV qui est associé à une transition interbande **[EHR63]**.

La FIGURE 3.2 pour l'agent montre un pic à 3,8 eV et un pic à 7,5 eV fortement marqués sur la fonction de perte d'énergie optique. Ces pics correspondent à des plasmons de volume. Le pic à 7,5 eV est associé à l'oscillation des électrons de la couche 5s **[WEN08]**. Le pic à 3,8 eV est associé à l'oscillation des électrons de la couche 5s et des

électrons de la couche 4d **[EHR62].** La fonction de perte d'énergie optique de l'argent présente également des pics à 17,5 ; 25,4 et 33 eV. Ces pics correspondent à des transitions interbandes dont l'origine n'est pas clairement identifiable dans la littérature.

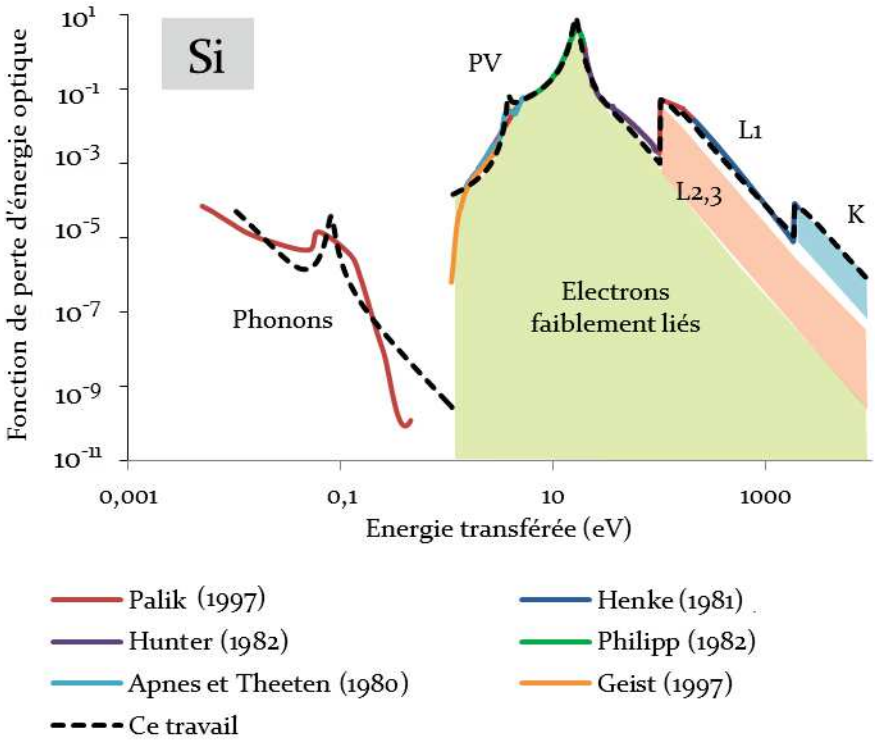


FIGURE 3.3. Modélisation de la fonction de perte d'énergie optique du silicium. Les données sont issues de la base de données de Palik [PALI97]. La courbe notée « Geist » est une analyse de ces données et est disponible dans [GEI97]. La courbe notée « Palik » pour les très basses énergies transférées a été obtenue par interpolation des données de [PALI97].

La FIGURE 3.3 pour le silicium montre un pic à 16,8 eV qui correspond à un plasmon de volume. Nous retrouvons également sur la FIGURE 3.3 le pic associé à l'émission d'un phonon optique à 0,05 eV **[NAR12]**. Les pics correspondants aux phonons ne sont pas inclus lors de l'intégration de l'équation (3. 2).

En dehors des pics clairement associés à des transitions connues, la discrimination des pics pour l'intégration de l'équation (3. 2) reste assez subjective et est sujette à discussion. Selon les auteurs, on peut suivre différentes approches. Par exemple, afin de modéliser le plus précisément possible la fonction de perte d'énergie optique, d'un point de vue mathématique, Da et coll. **[DA14]** utilisent une somme d'un grand nombre

de pics et ajoutent des contributions négatives. Nous n'allons pas procéder ainsi car ce genre d'approche manque de justification physique. En utilisant un nombre de pics limité aux transitions connues, nous pouvons nous éloigner des données optiques mais conserver une bonne précision sur les libres parcours moyens tout en restant en cohérence avec les transitions connues des matériaux. Cette méthode, qui semble être un compromis raisonnable, m'a permis d'obtenir des résultats de rendements et de spectres en énergie en bon accord avec les mesures expérimentales (chapitre 4).

COHÉRENCE DE LA MODÉLISATION

La cohérence de la modélisation de la fonction de perte d'énergie optique peut être vérifiée sur certains paramètres que l'on peut calculer avec trois relations **[PIN64, NIK12]**.

La première relation, appelée « f-sum-rule » ou « Z-sum-rule » s'écrit (3. 17) :

$$\frac{2}{\pi E_{pl}^2}\int_0^\infty \hbar\omega Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\hbar\omega, q=0)}\right] d\hbar\omega = Z \qquad \textbf{(3. 17)}$$

$$E_{pl} = \sqrt{\frac{\hbar^2 e^2 N n_{vz}}{\varepsilon_0 m}} \qquad \textbf{(3. 18)}$$

Dans cette expression, Z représente le nombre total d'électrons par atome du solide et E_{pl} correspond à l'énergie du plasmon de volume (en eV) dans l'hypothèse où le matériau peut être considéré comme un gaz d'électrons libres. Cette énergie est donnée par la relation (3. 18) dans laquelle n_{vz} désigne le nombre d'électrons de valence et N la densité atomique du matériau. La relation (3. 17) signifie que la fonction de perte d'énergie optique contient la réponse de tous les électrons du solide lorsque l'on prend en compte l'ensemble des énergies transférées $\hbar\omega$. Afin de vérifier la modélisation, il est possible de décomposer la fonction de perte d'énergie optique par sous-couche électronique et de vérifier ainsi que chaque sous-couche contient le bon nombre d'électrons. Cette vérification est approximative dans le cas des matériaux où les sous-couches ne sont pas bien identifiables. C'est le cas par exemple des électrons des couches N1 et N2,3.

La FIGURE 3.5 montre cette modélisation pour l'aluminium. Nous pouvons voir que le nombre d'électrons de chacune des sous-couches électroniques est vérifié. Pour obtenir le *Z* total, nous pouvons nous arrêter à 10 keV pour l'aluminium et le silicium, ce qui semble être suffisant d'après les travaux de Gumus et Kabayadi **[GUM10]**. A des fins de simplification, nous pouvons également aller jusqu'à une énergie de 10 keV pour modéliser l'argent, et ne pas prendre en compte la contribution des électrons des couches L et K ($Z_{eff} = 37$). Pour l'aluminium, le silicium et l'argent, l'écart obtenu est respectivement de 11,15 ; 12,78 et de 2,85 %.

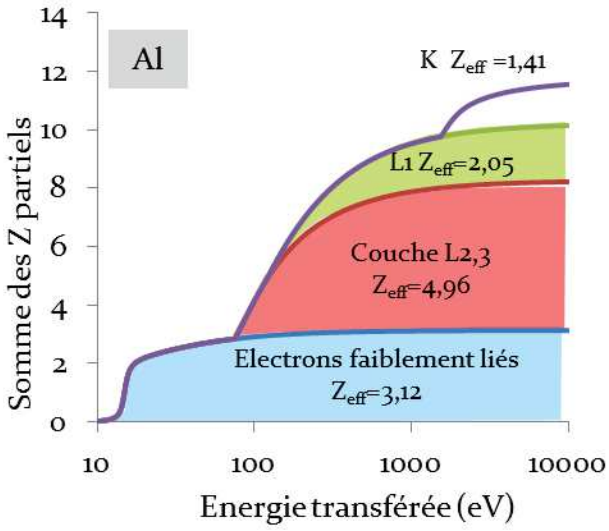


FIGURE 3.4. somme des Z partiels de l'aluminium. Pour une énergie transférée de 10 keV, l'écart est d'environ 11,15 % (Z=13).

La deuxième somme, appelée «perfect screening sum rule » correspond à l'effet d'écrantage de l'électron incident par les électrons faiblement liés. Elle est donnée par la relation (3. 19).

$$\frac{2}{\pi}\int_0^{\infty} Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\hbar\omega, q=0)}\right]\frac{d(\hbar\omega)}{\hbar\omega} = 1 \qquad \textbf{(3. 19)}$$

Pour cette somme, l'écart obtenu est respectivement pour l'aluminium, le silicium et l'argent, de 4,42 ; 2,85 et 15 %.

L'expression de la troisième somme est donnée par la relation (3. 20) où *I* représente l'énergie moyenne d'excitation, ou énergie d'ionisation, des électrons dans le maté-

riau. Cette valeur est accessible expérimentalement et les mesures pour de nombreux matériaux sont regroupées dans la base de données du NIST **[ICR84]**.

$$\ln(I) = \frac{\int_0^\infty \hbar\omega \ln(\hbar\omega)\, Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\hbar\omega, q=0)}\right] d(\hbar\omega)}{\int_0^\infty \hbar\omega Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\hbar\omega, q=0)}\right] d(\hbar\omega)} \qquad \textbf{(3. 20)}$$

La FIGURE 3.5 montre les différentes contributions des électrons faiblement liés et des électrons de cœur à l'énergie I dans le cas de l'aluminium. Nous pouvons voir que l'allure est identique à la somme Z. Pour cette somme, l'écart obtenu pour l'aluminium, le silicium et l'argent, de respectivement 8 ; 0,4 et 7 % (à 10 keV).

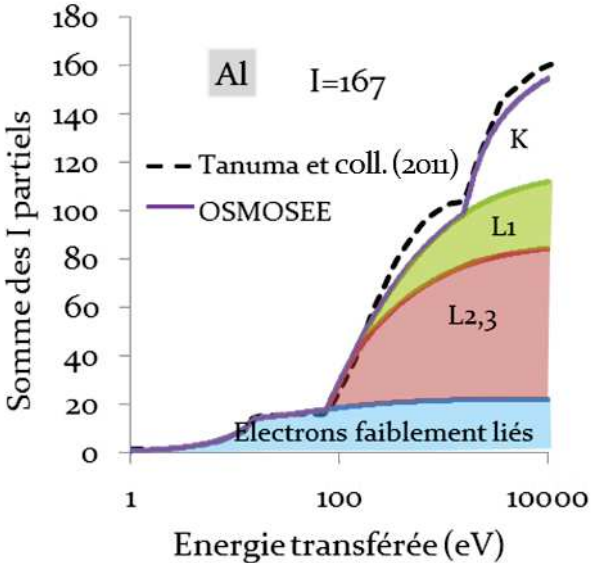


FIGURE 3.5. Somme des *I* partiels de l'aluminium [TAN11]. Pour une énergie transférée de 10 keV, l'écart est d'environ 8 %, la valeur de référence pour *I* étant de 167 [ICR84].

3.2.3.2.2. EXTENSION À Q≠0

Une méthode couramment utilisée consiste à étendre la fonction de perte d'énergie optique à $q \neq 0$ en utilisant des relations de dispersion **[NIK12]**. Toutefois, il n'existe pas d'expression exacte pour ces relations de dispersion, et la plupart des approximations existantes utilisent la théorie du gaz d'électrons libres **[LIND54, PIN64]**.

THÉORIE DU GAZ D'ÉLECTRONS LIBRES

Dans la somme (3. 17) servant à vérifier la cohérence de la modélisation, nous avons utilisé l'expression du plasmon de volume dans l'hypothèse d'un gaz d'électrons libres. Dans cette hypothèse, les cœurs ioniques forment un fond uniforme de charges positives. Il en résulte que les électrons faiblement liés aux atomes du solide sont soumis à un potentiel constant de la part des cœurs ioniques.

Dans la théorie du gaz d'électrons libres, l'énergie de Fermi est donnée (en eV) par la relation (3. 21). Pour le silicium, nous obtenons une énergie de 12,5 eV, proche de la somme $\Delta V + E_g$=12 eV. L'énergie du plasmon de volume a été définie dans la section précédente par l'équation (3. 18). Ces relations ne dépendent que de la densité électronique NZ du gaz d'électrons. L'énergie du plasmon de surface est liée au plasmon de volume par la relation (3. 22) où ε est la constante diélectrique du matériau de la couche adjacente. Pour le vide, $\varepsilon = 1$.

$$E_F = \hbar^2 \frac{(3\pi^2 NZ)^{2/3}}{2m} \qquad \textbf{(3. 21)}$$

$$\hbar\omega_{ps} = \hbar\omega_{pv}/\sqrt{1+\varepsilon} \qquad \textbf{(3. 22)}$$

Nous pouvons voir, d'après le TABLEAU 3.1 que cette approximation donne des résultats en accord avec les mesures expérimentales de la littérature pour l'aluminium et le silicium. Cela est cohérent avec le fait que pour ces deux matériaux, le pic du plasmon est bien marqué sur la fonction de perte d'énergie optique, ce qui signifie que les électrons faiblement liés ont un caractère fortement marqué. En revanche, le modèle du gaz d'électrons libres est moins pertinent pour l'argent.

TABLEAU 3.1. Energie des plasmons de volume et de surface. Comparaison entre les calculs du modèle du gaz d'électrons libres et les mesures expérimentales.

	Energie du plasmon de volume (eV)		Energie du plasmon de surface (eV)	
Aluminium	E_{pth}=15,76	E_{exp}=14,8 **[ZAC14]**	E_{pth}=11,14	E_{exp}=10,6 **[ROC95]**
Silicium	E_{pth}=16,8	E_{exp}=16,8 **[STI78]**	E_{pth}=11,87	
Argent	E_{pth}=9,09	E_{exp}=3,8 **[ZAC16]**	E_{pth}=6,42	E_{exp}=3,7

Sur la FIGURE 3.2, nous avons pu voir que l'argent présente un plasmon à 3,8 eV dû aux électrons des couches 4d et 5s et un plasmon à 7,5 eV dû aux électrons de la couche 5s. Dans la théorie du gaz d'électrons libres, la valeur attendue pour le pic à 3,8 eV est de 9,09 eV. L'écart observé est dû à la présence des électrons de la bande 4d qui entraînent des transitions interbandes **[EHR62]**. Ces transitions ont pour conséquence d'amortir les plasmons de volume et de surface et de décaler leur position en énergie. Les mesures expérimentales montrent que l'argent possède en réalité moins d'un électron libre par atome **[ZAC76]**. Cela signifie que seuls les électrons de la couche 5s peuvent être considérés comme libres. S'il n'existe pas de séparation visible entre ces deux groupes d'électrons, comme le montre la structure des bandes détaillée de l'argent **[LYN68]**, il semblerait que la contribution des électrons de la couche 4d aux propriétés électroniques de l'argent est minoritaire devant la contribution de la couche 5s **[SEK10]**. Cette propriété explique que l'argent présente un pic de plasmon de volume à 3,8 eV fortement marqué. Dans la suite de ce manuscrit, à des fins de simplifications, nous considérons que l'hypothèse d'un gaz d'électrons libres est également valide pour l'argent. Néanmoins, nous devons garder en mémoire que cette approximation est discutable pour les autres métaux de transitions, notamment l'or et le cuivre qui ne présentent pas de pic de plasmon de volume aussi marqué que l'argent **[PALI97]**.

RELATIONS DE DISPERSION

Le passage de la fonction de perte d'énergie optique $(q = 0)$ à la fonction de perte d'énergie $(q \neq 0)$ est réalisé en introduisant des relations de dispersion dans l'équation (3. 2) **[NIK12]**. J'ai choisi d'implémenter les deux relations de dispersion utilisées dans les travaux de Kuhr et Fitting **[KUH99]**. La première relation consiste à remplacer les énergies des k pics $E_j(k)$ par $E'_j(k,q)$ en utilisant l'expression (**3. 23**). Il s'agit d'une approximation qui est discutable pour les électrons de cœur, mais qui peut se justifier par le fait que ces interactions sont minoritaires en comparaison avec les interactions avec les plasmons de volume.

$$E'_j(k,q) = E_j(k) + \frac{\alpha(\hbar q)^2}{2m} \qquad \textbf{(3. 23)}$$

$$\alpha = \frac{6\,E_F}{5\,E_{pl}} \qquad \textbf{(3. 24)}$$

Cette expression provient directement de la résolution de la condition d'existence du plasmon de volume $\varepsilon(\hbar\omega(q), q) \approx 0$ en utilisant le modèle de Lindhard **[LIND54]** qui, dans l'approximation RPA (section 3.2.3.1), décrit la partie réelle de la fonction diélectrique par l'expression (3. 25) :

$$\varepsilon_L(\hbar\omega, q) \approx 1 - \frac{E_{pl}^2}{(\hbar\omega)^2} - \frac{6}{5}\frac{E_{pl}^2 E_F}{(\hbar\omega)^4}\frac{\hbar^2 q^2}{m} + \cdots \qquad \textbf{(3. 25)}$$

Le coefficient α de l'équation (**3. 23)** utilise le plasmon de volume E_{pl} calculé dans la théorie du gaz d'électrons libres. Nous obtenons respectivement une valeur α de 0,883 pour l'aluminium, de 0,867 pour le silicium et de 0,73 pour l'argent. Ces valeurs sont proches de 1 qui est la valeur attendue pour un gaz d'électrons.

La FIGURE 3.6 montre une comparaison pour l'aluminium entre la relation de dispersion calculée avec l'équation (**3. 23)** et les mesures expérimentales de la littérature **[ZAC74, STI78]**. Nous pouvons voir que le coefficient α dépend de la direction cristalline.

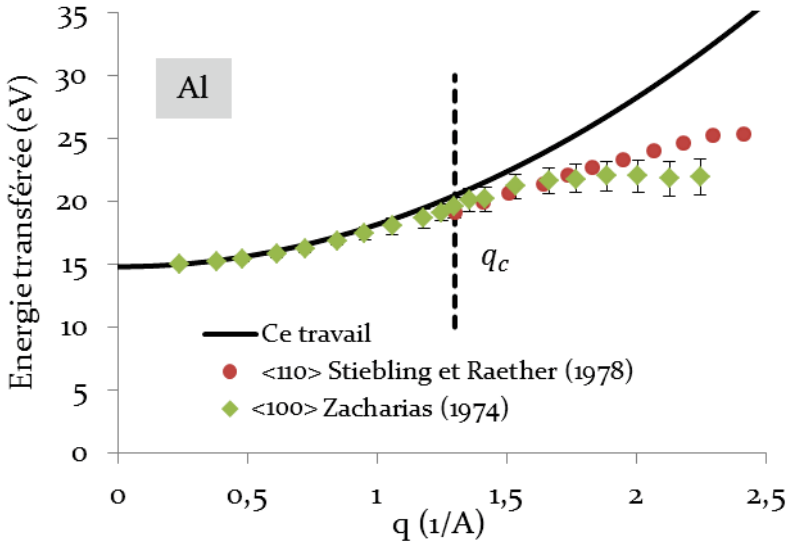


FIGURE 3.6. Relation de dispersion du plasmon de volume pour l'aluminium à 14,8 eV. Les données proviennent de [ZAC74, STI78].

Stiebling et Raether **[STI78]** ont calculé à partir de mesures expérimentales un coefficient $\alpha = 0{,}92$ pour la direction cristalline <110>, et un coefficient $\alpha = 0{,}8$ pour la direction <100>. Nous pouvons constater sur la FIGURE 3.6 que la séparation entre les relations de dispersion associées à ces deux directions devient davantage mar-

quée pour une valeur $q > q_c = 1{,}3\ \text{Å}^{-1}$ **[ZAC74]**. Cette valeur correspond au moment de coupure défini dans le chapitre 2 qui permet de séparer le domaine des plasmons de volume et celui des interactions individuelles avec les électrons faiblement liés. Stiebling et Raether **[STI78]** ont observé des résultats similaires pour le silicium. D'après leurs travaux, pour la direction cristalline <100> (respectivement <111>), la valeur du coefficient est $\alpha = 0{,}82$ (respectivement $\alpha = 0{,}64$).

Lorsque nous avons $q < q_c$, pour l'aluminium et le silicium, la modélisation de la relation de dispersion du plasmon de volume par l'équation (**3. 23)** est en bon accord avec les mesures expérimentales de la littérature **[STI78]**.

Pour la dispersion du plasmon de volume de l'argent à 3,8 eV, les mesures expérimentales de Zacharias et Kliewer **[ZAC76]** montrent que le coefficient α a pour valeur 1,6. Nous voyons là une limite du modèle du gaz d'électrons libres. Toutefois, comme il n'existe pas de mesures du coefficient α pour les autres plasmons de l'argent, et à des fins de simplification, nous utiliserons la relation de dispersion obtenue dans l'hypothèse d'un gaz d'électrons libres $(\alpha = 0{,}73)$ pour l'ensemble des pics associés aux plasmons de l'argent. D'autres auteurs, tels que Kuhr et Fitting **[KUH99]** considèrent une valeur $\alpha = 1$.

La relation de dispersion du plasmon de volume donnée par l'équation (**3. 23)** est obtenue à partir des premiers termes de la fonction diélectrique de Lindhard **[LIND54]** (3. 25). La FIGURE 3.6 montre, pour l'aluminium, que cette loi n'est vérifiée expérimentalement qu'aux faibles valeurs de q. Pour des valeurs plus élevées, en particulier lorsque $q > q_c$, certains auteurs tiennent compte du terme suivant de la fonction diélectrique de Lindhard, ce qui amène à l'ajout d'un terme en q^4 dans la relation de dispersion (**3. 23)**. Toutefois, ce terme correspond aux interactions individuelles avec les électrons faiblement liés, et dans l'hypothèse où le plasmon de volume est suffisamment amorti pour un moment de coupure q_c, nous pouvons considérer que la relation de dispersion pour $q < q_c$ est une loi en q^2. Les travaux de Calliari et coll. **[CAL14]** ont montré que, si l'ajout du terme en q^4 permet de gagner en précision sur les spectres en énergie, la relation en q^2 décrit le transport des électrons dans les matériaux avec une précision suffisante.

La relation de dispersion (**3. 23)** entraîne le déplacement du pic du plasmon vers les valeurs de plus hautes énergies. Pour modéliser l'élargissement de ce pic, qui correspond à la désexcitation du plasmon par la création de paires électrons-trous, Kuhr et

Fitting **[KUH99]** introduisent une deuxième relation de dispersion dans l'équation (3. 16) en remplaçant le coefficient $\Gamma_j(k)$ par le coefficient $\Gamma'_j(k,q)$:

$$\Gamma'_j(k,q) = \Gamma_j(k)(1+\beta q^2) \qquad \textbf{(3. 26)}$$

Ces auteurs **[KUH99]** considèrent un coefficient β de 10^{-16} cm² pour l'aluminium et l'argent, et de $6\text{x}10^{-16}$ cm² pour le silicium. J'ai choisi de conserver ces valeurs pour l'aluminium et l'argent. Pour le silicium, un meilleur accord a été trouvé avec $\beta = 2 \times 10^{-16}$ cm². En général, seule la première relation de dispersion est couramment utilisée pour le calcul des libres parcours moyens **[AKK09, VAL12]**. Toutefois, nous avons pu constater que le choix du coefficient de la deuxième relation de dispersion (3. 26) a une grande influence sur le libre parcours moyen à basse énergie, en particulier en dessous de 50 eV. C'est ce que nous pouvons clairement observer sur la FIGURE 3.7 pour le silicium.

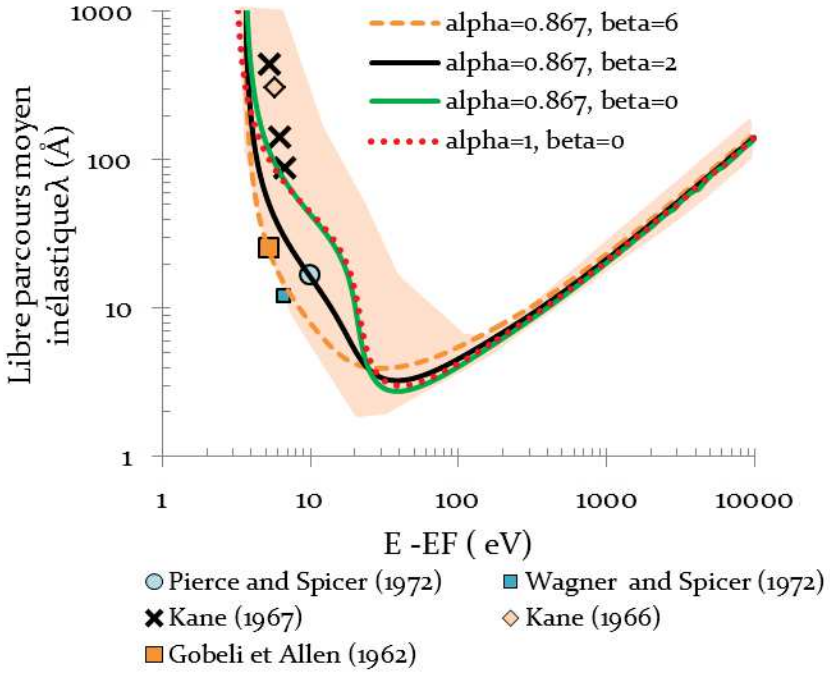


FIGURE 3.7. Libre parcours moyen inélastique du silicium calculé avec différents coefficients α et β (en 10^{-16} cm²) pour les relations de dispersion. Les valeurs α=1 et β=0 correspondent aux valeurs d'Akkerman et coll. [AKK09] et de Valentin et coll. [VAL12]. Les valeurs α=0,867 et β=6 correspondent aux valeurs de Fitting et coll. [FIT01]. Les données expérimentales sont disponibles dans [TUN79, VAL12]. L'aire orange symbolise la dispersion des données de la littérature [TUN79, FIT01, COL06, AKK09, VAL12, SHI15].

La FIGURE 3.7 montre les calculs du libre parcours moyen inélastique pour différents coefficients α et β. Selon les paramètres choisis, le libre parcours moyen en dessous de 50 eV peut être très rapidement multiplié par un facteur 2 ou 3. Si nous considérons les coefficients $\alpha = 1$ et $\beta = 0$, nous retrouvons un épaulement similaire aux résultats d'Akkerman et coll. **[AKK09]** et de Valentin et coll. **[VAL12]** qui ne prennent en compte que la première relation de dispersion. Si nous considérons des coefficients $\alpha = 0{,}867$ et $\beta = 6$, nous retrouvons un libre parcours moyen cohérent avec celui de Fitting et coll. **[FIT01]**.

COMPARAISON AVEC DES DONNÉES EXPERIMENTALES

Afin de vérifier notre modélisation de la fonction de perte d'énergie pour $q \neq 0$, j'ai réalisé une comparaison avec les mesures de Batson et Silcox **[BATS83]** pour l'aluminium, et avec les mesures de Chen et coll. **[CHE75]** pour le silicium. Nous pouvons tracer en 3D la fonction de perte d'énergie de l'aluminium et du silicium, puis considérer la projection dans le plan $(\hbar\omega, \hbar q)$. La FIGURE 3.8 présente la fonction de perte d'énergie du silicium en 3D. La figure 3D de l'aluminium peut être trouvée dans la section 3.2.4.2.2.

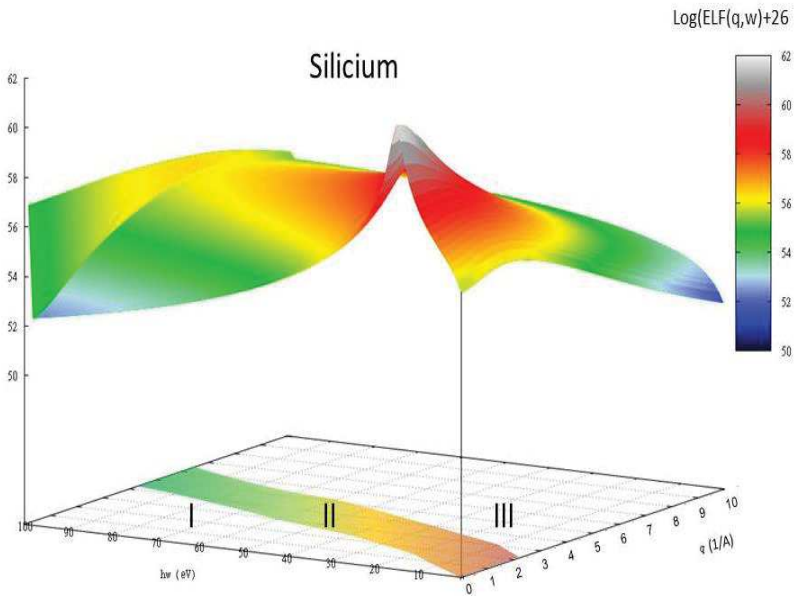


FIGURE 3.8. Représentation de la fonction de perte d'énergie en 3D pour le silicium en fonction de l'énergie $\hbar\omega$ et du moment $\hbar q$ transférés. Le domaine I correspond aux interactions individuelles avec les électrons faiblement liés, et le domaine II aux interactions collectives (section 3.2.4.2.2).

La FIGURE 3.9 et la FIGURE 3.10 présentent la projection de la fonction de perte d'énergie dans le plan $(\hbar\omega, \hbar q)$ respectivement pour le silicium et l'aluminium.

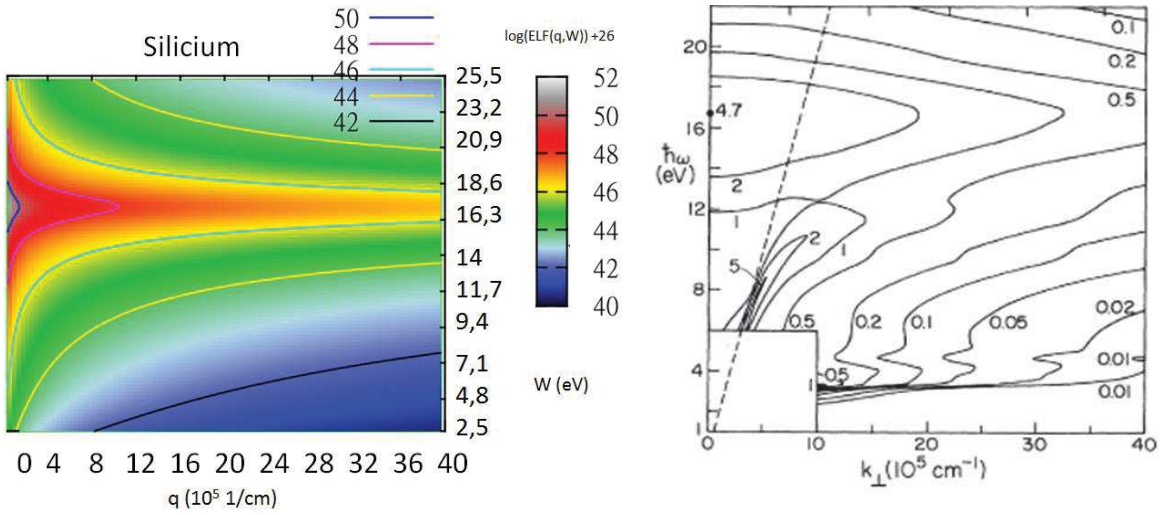


FIGURE 3.9. Comparaison de (gauche) la projection de la fonction de perte d'énergie dans le plan $(\hbar\omega, q)$ pour le silicium avec (droite) les données expérimentales de Chen et coll. [CHE75]. Les équipotentielles sont sans correspondance entre les deux figures.

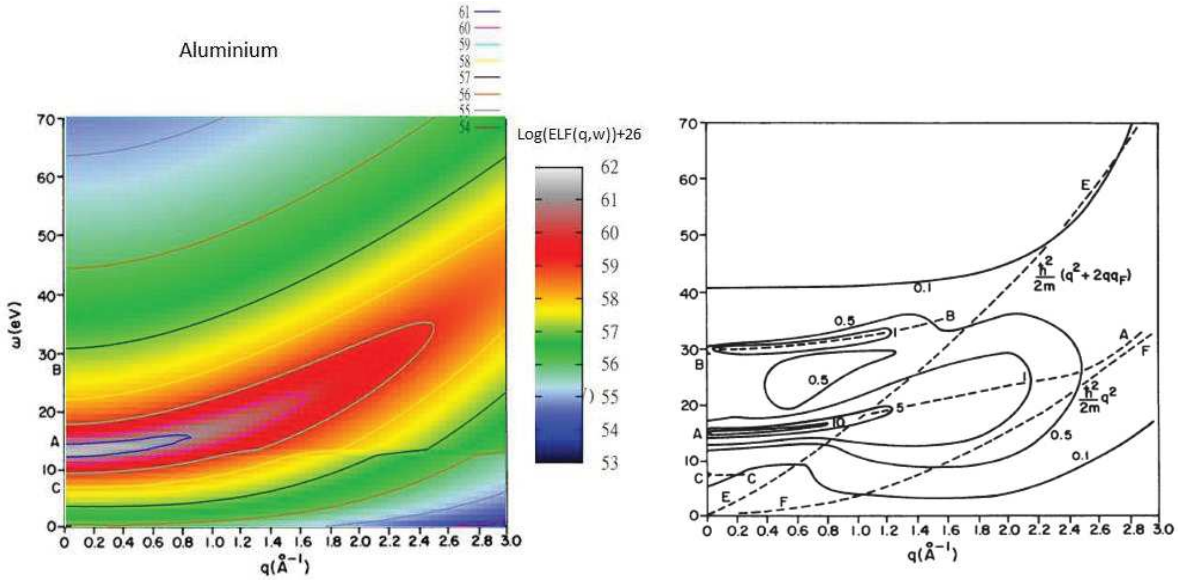


FIGURE 3.10. Comparaison de (gauche) la projection de la fonction de perte d'énergie dans le plan $(\hbar\omega, q)$ pour l'aluminium avec (droite) les données expérimentales de Batson et Silcox [BATS83]. Les mesures initiales présentent des phénomènes de diffusion multiple qui ont été enlevés par traitement mathématique. Les équipotentielles de la figure droite à 0,5 et 0,1 correspondent respectivement aux équipotentielles à 57,5 et 53,9 sur la figure gauche. Le plasmon de volume est noté A sur la figure de droite.

Comme nous pouvons le voir en comparant les parties gauches et droites de la FIGURE 3.9 et de la FIGURE 3.10, où l'on retrouve respectivement nos simulations et les données expérimentales de la littérature **[CHE75, BATS83]**, nous retrouvons un comportement similaire pour la fonction de perte d'énergie. En particulier, nous trouvons un bon accord pour la modélisation du plasmon de volume situé à environ 16 eV pour le silicium et à environ 15 eV pour l'aluminium.

Jusqu'à présent, nous avons considéré uniquement les interactions des électrons ayant lieu dans le volume du solide, ce qui explique que nos simulations ne montrent pas la relation de dispersion du plasmon de surface sur la FIGURE 3.9 et la FIGURE 3.10. Afin de prendre en compte le plasmon de surface, nous allons considérer une fonction de perte d'énergie modifiée.

3.2.3.2.3. CAS DU PLASMON DE SURFACE

Dans le chapitre 2, nous avons vu que la surface correspond à une discontinuité de la densité des charges électroniques. Un plasmon de surface est défini comme une oscillation transversale de la densité des électrons à la surface du solide. Le potentiel $\phi(\vec{r})$ associé à cette oscillation au point $\vec{r}$ peut être défini, en première approximation, par la relation (3. 27) **[ROC95]** :

$$\phi(\vec{r}) = \phi_0 e^{i\vec{q}_{||}\cdot\vec{r}_{||}} e^{-q_{||}|z|} \qquad \textbf{(3. 27)}$$

Dans cette expression, $\vec{r}_{||}$ désigne le vecteur position dans le plan de la surface, $\vec{q}_{||}$ est la composante du moment du plasmon de surface parallèle à la surface et z est la distance normale à la surface. La condition d'existence de l'oscillation implique pour la composante selon z de son champ électrique E_z :

$$E_z\,(z = 0^+) = \phi_0 q_{||} e^{i\vec{q}_{||}\cdot\vec{r}_{||}} \qquad \textbf{(3. 28)}$$

$$E_z\,(z = 0^-) = -\phi_0 q_{||} e^{i\vec{q}_{||}\cdot\vec{r}_{||}} \qquad \textbf{(3. 29)}$$

Les relations (3. 28) et (3. 29) montrent que la composante E_z est discontinue à la surface. Dans le cas où le matériau est un métal, les charges étant mobiles, il n'existe

pas de déséquilibre de charges à la surface. Cela implique que la composante selon z de son vecteur déplacement $D_z(\omega) = \varepsilon(\omega)E_z(\omega)$ doit être continue à l'interface métal/vide. D'après les équations de Maxwell, cette condition est satisfaite lorsque $\varepsilon(\omega_{ps}, q) + 1 = 0$, ω_{ps} étant la pulsation du plasmon de surface.

En première approximation, la surface modifie donc la relation de dispersion $\varepsilon(\omega, q) = 0$ du plasmon dans le volume en $\varepsilon(\omega, q) + 1 = 0$ **[ROC95]**.

Si nous reprenons l'expression simplifiée de la fonction diélectrique dans le modèle de Drude donnée par la relation (3. 14), dans l'hypothèse où la constante d'amortissement Γ est considérée comme faible, nous avons vu que $\varepsilon_D(\omega) \approx 0$ lorsque $\omega = \omega_p$. Sur la fonction de perte d'énergie optique, cette condition correspond à un pic fortement marqué à l'énergie du plasmon de volume $\hbar\omega_p$ et ayant une amplitude de $Im\left[\frac{-1}{\varepsilon_D(\omega_p)}\right] = \frac{\omega_p}{\Gamma}$.

Pour la fonction de Drude (3.15), la condition $\varepsilon(\omega, q) + 1 \approx 0$ est vérifiée lorsque $\omega = \omega_s$ avec $\omega_s = \omega_p/\sqrt{2}$. Nous retrouvons la valeur du plasmon de surface dans la théorie du gaz d'électrons libres. En première approximation, l'idée est d'obtenir une nouvelle fonction de perte d'énergie optique qui présente une condition de résonnance pour le plasmon de surface similaire à celle du plasmon de volume. En remplaçant $\varepsilon_D(\omega)$ par $\varepsilon_D(\omega_s) + 1$ dans la fonction de perte d'énergie optique, nous obtenons en ω_s l'amplitude $Im\left[\frac{-1}{\varepsilon_D(\omega_s)+1}\right] = \frac{\omega_s}{2\Gamma}$. Nous voyons que l'utilisation de l'expression $Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega,q)+1}\right]$ permet d'obtenir une fonction de perte d'énergie optique qui met en relief la contribution de la surface et donne les valeurs attendues pour les énergies du plasmon de surface.

Nous pouvons alors estimer la contribution du plasmon de surface en remplaçant dans les équations précédentes la fonction de perte d'énergie optique $Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega,q)}\right]$ par une fonction de perte d'énergie modifiée $Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega,q)+1}\right]$ **[KUH99, DAP08]**.

La FIGURE 3.11. montre que pour la fonction de perte d'énergie optique associée à la surface pour l'aluminium, nous retrouvons un pic à 10,72 eV pour le plasmon de surface, la valeur attendue étant de 10,6 eV environ **[CHE96, DAP11].** La fonction de perte d'énergie optique du silicium présente également un unique pic associé au plasmon de surface à une énergie de 11,64 eV, la valeur attendue étant de 11,6 eV environ **[DAP11, CAL14]**.

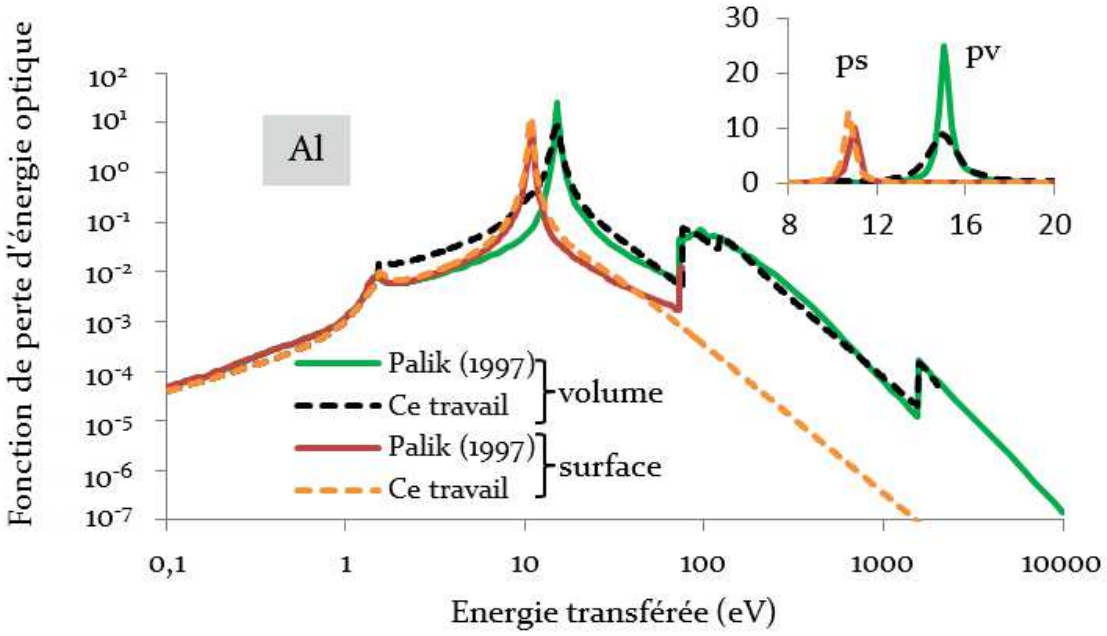


FIGURE 3.11. Fonction de perte d'énergie optique pour la contribution du volume et de la surface pour l'aluminium. Les données que nous avons modélisées proviennent de la base de données de Palik [PALI97]. Les notations ps et pv désignent respectivement le plasmon de surface et le plasmon de volume.

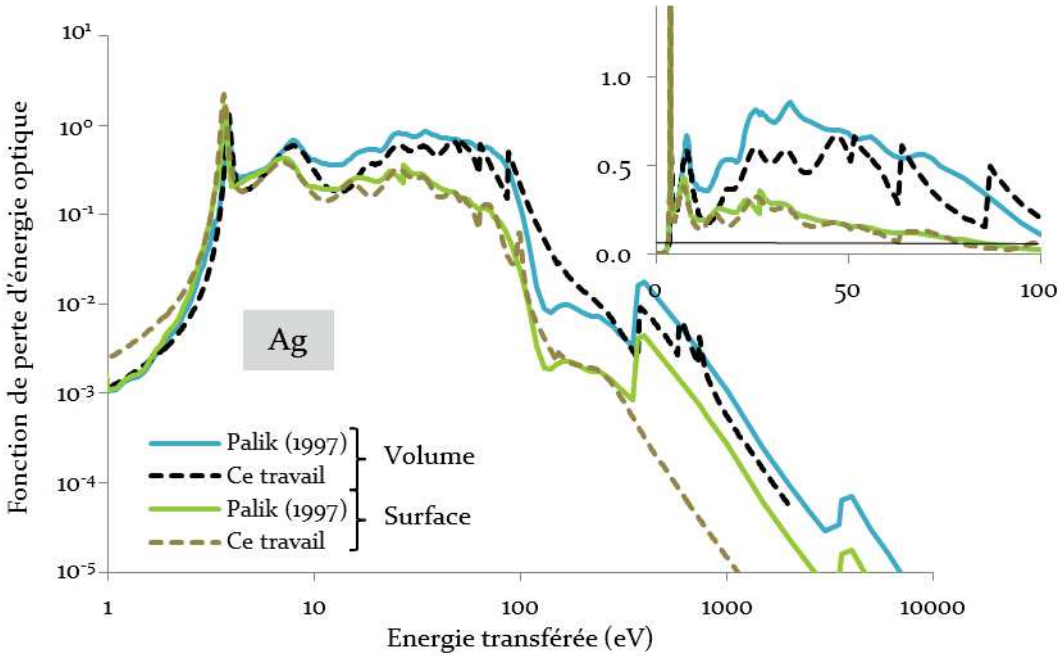


FIGURE 3.12. Fonction de perte d'énergie optique pour la contribution du volume et de la surface pour l'argent. Les données que nous avons modélisées proviennent de Palik [PALI97]. La contribution de la surface est calculée à partir de l'expression $Im[(-1)/(\varepsilon(\omega, q) + 1)]$.

Pour l'argent, de manière similaire à notre discussion sur les plasmons de volume et les transitions interbandes dans la section 3.2.3.2.1, nous pouvons voir que la

fonction de perte d'énergie optique de la FIGURE 3.12. associée à la surface présente des pics à 3,6 ; 6,9 ; 14,9 et 25,6 eV. Ces pics sont en accord avec les calculs de Kuhr et Fitting **[KUH99]**.

J'ai choisi, afin de simplifier l'implémentation des interactions avec les plasmons de surface dans les codes, d'utiliser la même relation de dispersion pour le plasmon de surface que pour le plasmon de volume. Certains auteurs **[CAL14, DIN98, CHE96]** ne prennent pas en compte le moment transféré total $\hbar q$ mais sa composante parallèle à la surface $q_{||}$ comme décrit par Raether **[RAE65]**. Récemment, Calliari et coll. **[CAL14]** ont étudié l'influence de la relation de dispersion utilisée pour obtenir la fonction de perte d'énergie lorsque $q \neq 0$ et ont conclu que la composante normale de la surface peut être négligée.

En incluant une relation de dispersion identique pour le plasmon de surface et le plasmon de volume, notre modélisation permet de trouver un résultat cohérent. Cette approximation est justifiée dans la mesure où le plasmon de surface ne semble pas avoir beaucoup d'influence sur le transport des électrons. Par exemple, l'utilisation d'un coefficient d'ajustement sur l'amplitude du plasmon de surface n'a pas donné de résultats probants.

Dans la FIGURE 3.13, de manière similaire à la FIGURE 3.9, nous avons tracé pour le silicium la projection de la fonction de perte d'énergie dans le plan $(\hbar\omega, \hbar q)$ en incluant le plasmon de surface. Nous retrouvons désormais sur cette figure les dispersions liées au plasmon de volume et au plasmon de surface. Cette modélisation revient à réaliser une combinaison linéaire des fonctions de perte d'énergie de volume et de surface.

Si la forme de la section efficace différentielle totale inélastique peut être raisonnablement décrite par une combinaison linéaire **[YUB92]**, il existe des modèles plus précis pour décrire les excitations de la surface, en particulier dans les spectres en énergie. Nous pouvons citer les travaux Chen et Kwei **[CHE96]**, qui considèrent un potentiel plus complexe que celui défini dans l'équation (3. 27) et obtiennent la fonction de perte d'énergie optique de surface $Im\left[\frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon\,(1+\varepsilon)}\right]$. Néanmoins, en accord avec des travaux précédents **[DAP08, DIN98]** et, étant donné que notre principale intérêt est de calculer des rendements d'émission électronique, nous considérerons que ce modèle simple est suffisant.

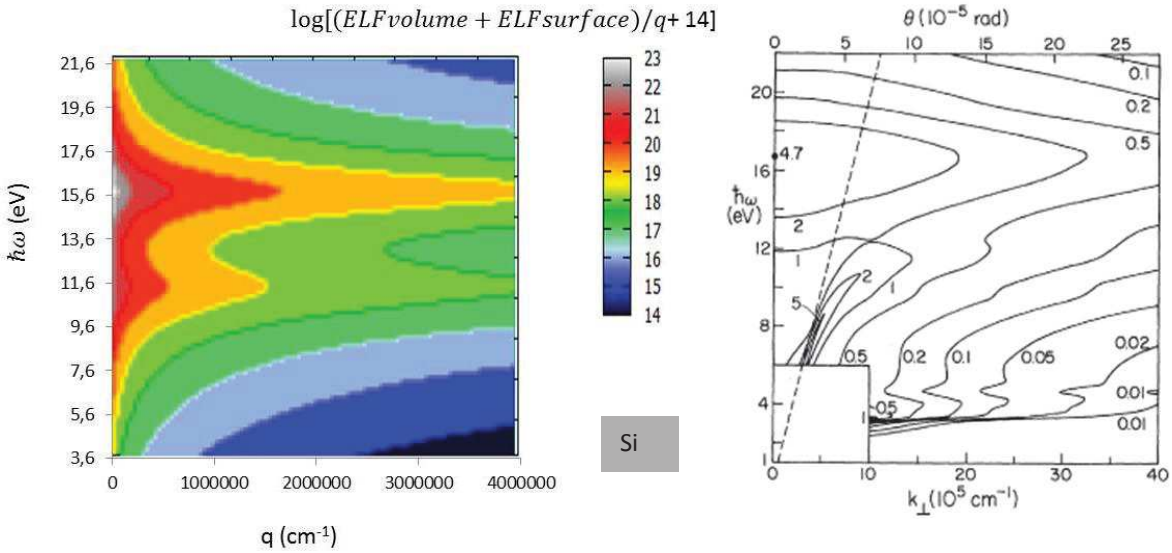


FIGURE 3.13. (Gauche) Modélisation de la fonction de perte d'énergie en prenant en compte la contribution de la surface. (Droite) mesure de la fonction de perte d'énergie pour des électrons de 75 keV dans un film de silicium de 1000 Å d'épaisseur [CHE75]. Les contours sont en 10^5 $eV^{-1}sr^{-1}$. La ligne en pointillés correspond à la relation de dispersion de la lumière.

3.2.4. DÉTERMINATION DES LIBRES PARCOURS MOYENS

Dans le chapitre 2, nous avons décrit les différentes interactions et notamment les transferts d'énergie minimale et maximale autorisées qui leur sont associées. Dans le TABLEAU 3.2 nous rappelons ces transferts autorisés.

TABLEAU 3.2. Énergies transférées minimales et maximales autorisées pour les différentes interactions des électrons dans un solide

		Energie minimale transférée $\hbar\omega_{min}$	Energie maximale autorisée $\hbar\omega_{max}$
Electron de cœur	Métaux	E_{BJ}	$E - E_F$
	Semi-conducteur/isolant	$E_{BJ} + E_g$	$E - (\Delta V + E_g)$
Interaction électron faiblement liés	Métaux	0	$E - EF$
	Semi-conducteur/ isolant	E_g	$E - (\Delta V + E_g)$

Après avoir déterminé les transferts en énergie et la fonction de perte d'énergie, il nous reste à déterminer les moments transférés pour obtenir les libres parcours moyens.

3.2.4.1. LIBRE PARCOURS MOYEN TOTAL INÉLASTIQUE

Considérons une interaction entre un électron d'énergie E et de moment $\hbar k_0$ avant l'interaction, et d'énergie $E_1 = E - \hbar\omega$ et de moment $\hbar\overrightarrow{k_1} = \hbar\overrightarrow{k_0} - \hbar\vec{q}$ après l'interaction. Reprenons la relation de conservation du moment que nous avons déterminée dans le chapitre 2 :

$$q^2 = {k_0}^2 + {k_1}^2 - 2k_0k_1cos\theta \qquad \textbf{(2. 4)}$$

Lors de l'interaction, l'angle de déviation étant compris entre 0 et π, nous obtenons, en remplaçant les moments par les énergies correspondantes, les relations limites :

$$qp_-(E,\hbar\omega) = \frac{\sqrt{2m}}{\hbar}\left[\sqrt{E} - \sqrt{E-\hbar\omega}\right] \qquad \textbf{(3. 30)}$$

$$qp_+(E,\hbar\omega) = \frac{\sqrt{2m}}{\hbar}\left[\sqrt{E} + \sqrt{E-\hbar\omega}\right] \qquad \textbf{(3. 31)}$$

Ces relations correspondent aux bornes inférieure (3. 30) et supérieure (3. 31) en moment transféré $\hbar q$ lors de l'interaction. Cela signifie que l'ensemble des énergies et des moments transférés $(\hbar\omega, \hbar q)$ accessibles à l'électron primaire lors de l'interaction sont situés à l'intérieur de la parabole définie par $qp_-(E,\hbar\omega)$ et par $qp_+(E,\hbar\omega)$.

Dans la théorie du gaz d'électrons libres, les électrons vérifient la même relation de conservation en moment et en énergie dans le solide et dans le vide **[ASH75]**. Toutefois, cette relation n'est pas supposée valide aux très basses énergies pour les métaux de transition tels que l'argent — à cause des bandes d qui ne sont pas totalement remplies — cependant, tant que l'on reste à des énergies supérieures à quelques dizaines d'eV au-dessus du niveau de Fermi, l'erreur est supposée faible **[PEN87]**. L'équation (2. 4) a été formulée dans le cas d'électrons non relativistes. Une formule plus générale peut être trouvée dans la littérature **[RAI14]**.

Nous pouvons préciser l'équation du libre parcours moyen inélastique total pour les électrons dans le volume du solide :

$$\lambda^{-1}(E) = \frac{1}{\pi a_0 (E - E_F)} \int_{Ebj}^{E-E_F} \int_{q_{p-}(E,\hbar\omega)}^{q_{p+}(E,\hbar\omega)} Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\hbar\omega, \hbar q)}\right] \frac{1}{\hbar q} d(\hbar q) d(\hbar\omega) \qquad \textbf{(3. 32)}$$

Afin de modéliser le libre parcours total, cette équation s'applique sur l'ensemble des pics de la fonction de perte d'énergie de volume. Dans un semi-conducteur ou un isolant, la bande interdite est prise en compte en remplaçant E par $E - E_g$ **[AKK96, AKK05]** dans les relations de conservation en énergie et en moment (3. 30) et (3. 31). Nous obtenons alors l'expression du libre parcours moyen (3. 33). Dans ces relations E_{bj} correspond à l'énergie de la bande interdite pour les interactions avec les électrons faiblement liés.

$$\lambda^{-1}(E) = \frac{1}{\pi a_0 (E - E_g - \Delta V)} \int_{Ebj}^{E-E_g-\Delta V} \int_{q_{p-}(E-Eg,\hbar\omega)}^{q_{p+}(E-Eg,\hbar\omega)} Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\hbar\omega, q)}\right] \frac{1}{q} dq\, d(\hbar\omega) \qquad \textbf{(3. 33)}$$

La FIGURE 3.14 montre les libres parcours moyens inélastiques obtenus par les équations (3. 32) et (3. 33) dans le cas de l'aluminium (FIGURE 3.14 a), de l'argent (FIGURE 3.14 b) et du silicium (FIGURE 3.14 c). Pour une énergie $E - E_F > 50$ eV, les libres parcours moyens sont en bon accord les uns avec les autres. Comme dans les travaux de Ziaja et coll. **[ZIA06]**, ils peuvent être modélisés par une formule de type Bethe de la forme $\lambda(E) = E/[A \ln(E/E_0) + B]$ où $E_0 = 1$ eV est un coefficient dimensionnant, et A et B sont des coefficients en eV/Å dépendants du matériau.

Cependant, pour $E - E_F < 50$ eV, nous pouvons voir qu'il existe selon les calculs des auteurs de la littérature un écart important entre les libres parcours. Cet écart est particulièrement visible pour le silicium. A ces énergies, la structure des bandes électroniques du solide a une forte influence et est probablement à l'origine des épaulements à basse énergie que nous pouvons voir pour l'aluminium, l'argent et le silicium.

Dans la FIGURE 3.14, les données de Fitting et Kurh **[KUH99, FIT01]**, d'Akkerman et coll. **[AKK09]**, de Valentin et coll. **[VAL12]**, de Ding et Shimizu **[DIN89]**, de Shinotsuka et coll. **[SHI15]** ont été calculées avec des modèles fondés sur les fonctions diélectriques. Nous trouvons un bon accord avec les calculs de Fitting et Kurh **[KUH99, FIT01]** et de Ding et Shimizu **[DIN89]**. Les écarts entre ces libres parcours à basse énergie peuvent s'expliquer par la différence des données optiques ou les modèles

et les approximations utilisés (fonction diélectrique de Lindhard **[LIND54]**, relations de dispersion, etc.).

Par ailleurs, en utilisant la formule (3. 33), et suivant les travaux de Schreiber et coll. **[SCH02]** nous trouvons un bon accord pour le libre parcours moyen inélastique du dioxyde de silicium (voir section 3.3.3.).

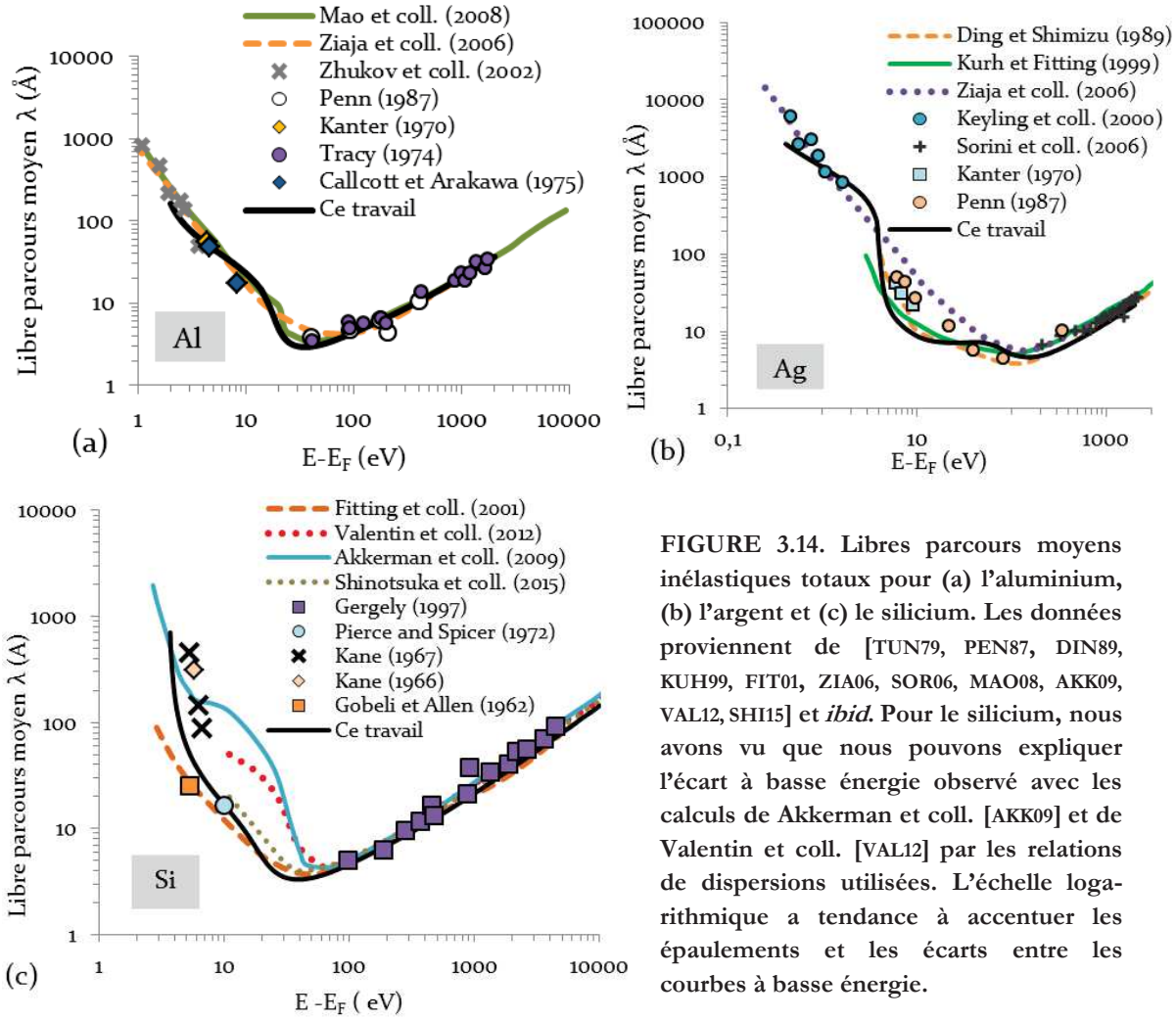


FIGURE 3.14. Libres parcours moyens inélastiques totaux pour (a) l'aluminium, (b) l'argent et (c) le silicium. Les données proviennent de [TUN79, PEN87, DIN89, KUH99, FIT01, ZIA06, SOR06, MAO08, AKK09, VAL12, SHI15] et *ibid*. Pour le silicium, nous avons vu que nous pouvons expliquer l'écart à basse énergie observé avec les calculs de Akkerman et coll. [AKK09] et de Valentin et coll. [VAL12] par les relations de dispersions utilisées. L'échelle logarithmique a tendance à accentuer les épaulements et les écarts entre les courbes à basse énergie.

Au cours de leur parcours dans le solide, les électrons perdent peu à peu leur énergie. On désigne par « pouvoir d'arrêt » la perte moyenne d'énergie des électrons en fonction de la distance qu'ils ont parcourue. Le pouvoir d'arrêt est une grandeur intéressante pour vérifier la cohérence de la modélisation des libres parcours moyens, et est donné par l'expression :

$$SP(E) = \int_{Ebj}^{(E+Ebj)/2} \hbar\omega \frac{d\lambda^{-1}(\hbar\omega)}{d(\hbar\omega)} d\hbar\omega \qquad \textbf{(3. 34)}$$

La FIGURE 3.15 présente les pouvoirs d'arrêt des électrons à basse énergie pour l'aluminium, l'argent et le silicium. Nous pouvons voir que nous avons un bon accord entre nos calculs et les données de la littérature.

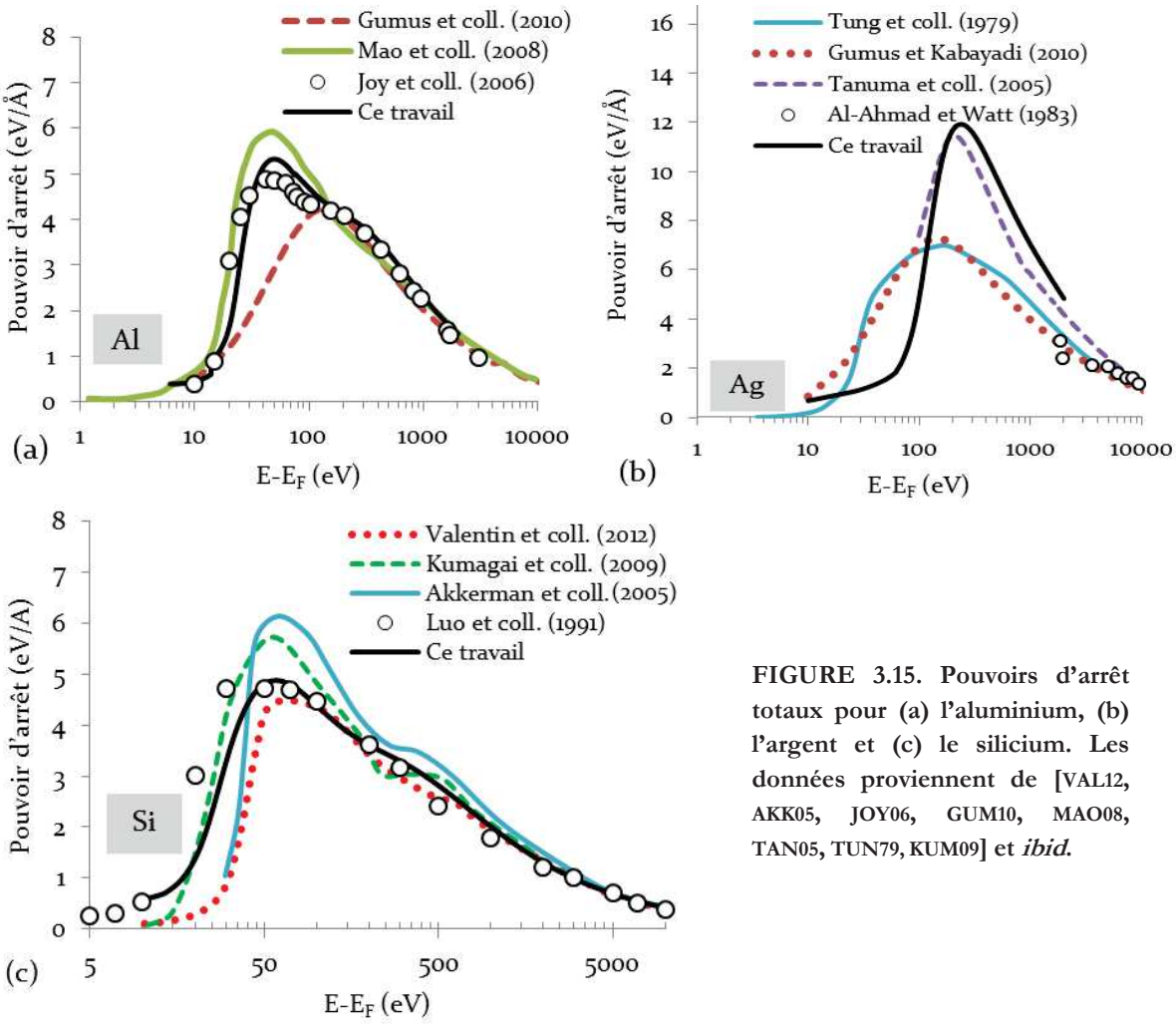


FIGURE 3.15. Pouvoirs d'arrêt totaux pour (a) l'aluminium, (b) l'argent et (c) le silicium. Les données proviennent de [VAL12, AKK05, JOY06, GUM10, MAO08, TAN05, TUN79, KUM09] et *ibid.*

3.2.4.2. SÉPARATION DES DIFFÉRENTES CONTRIBUTIONS

En utilisant des critères sur l'énergie incidente, l'énergie transférée et le moment transféré, nous pouvons séparer les différentes contributions au libre parcours moyen

inélastique total et au pouvoir d'arrêt. Nous pouvons ainsi obtenir la contribution des interactions avec les électrons faiblement liés (individuelles et collectives) et la contribution des interactions avec les électrons de cœur. La séparation de ces contributions présente un intérêt pour étudier l'influence relative des différentes interactions. Plus particulièrement, nous avons dans le chapitre 2 formulé l'hypothèse que les interactions avec les électrons de cœur pouvaient être modélisées par le modèle des fonctions diélectriques car ces interactions sont moins probables que les interactions avec les électrons faiblement liés. Nous verrons, à travers cette section, que cette hypothèse est vérifiée.

3.2.4.2.1. CONTRIBUTION DES ÉLECTRONS DE CŒUR

Dans la section 3.2.3.2.1. décrivant la fonction de perte d'énergie optique, nous avons vu qu'il était possible, en première approximation, d'associer à chaque sous-couche électronique des niveaux des cœurs un unique pic. L'utilisation des fonctions diélectriques pour modéliser les interactions avec les électrons de cœur a été également utilisée récemment par **[AKK09, VAL12, DA14]**. Dans cette hypothèse, le libre parcours moyen associé à la sous-couche électronique correspond à l'intégrale de la fonction de perte d'énergie associée à cet unique pic. Afin de prendre en compte le fait qu'un électron incident ayant suffisamment perdu d'énergie est indiscernable d'un électron secondaire, lors des interactions avec les électrons de cœur, l'énergie transférée maximale est $\hbar\omega_{max} = (E + E_{BJ})/2$ **[AKK05, VAL12]**.

La FIGURE 3.16 et la FIGURE 3.17 présentent les libres parcours moyens des couches de cœur pour le silicium et l'aluminium. Nous pouvons voir que notre modélisation est en bon accord avec le modèle classique de Gryzinski **[GRY65]** et le modèle de Bote et Salvat **[LLO14]**. L'approximation de Born que nous avons utilisée dans le modèle des fonctions diélectriques suppose que les états initiaux et finaux de l'électron incident peuvent être décrits par des ondes planes. Cette approximation est adéquate pour décrire les collisions inélastiques pour des faibles énergies de liaison, cependant, cette approximation est moins adaptée pour décrire les énergies près des énergies seuils des ionisations, car elle néglige la déformation de la fonction d'onde de l'électron incident durant la collision. Cette déformation est prise en compte par Salvat et Bote dans leur code **[LLO14]**.

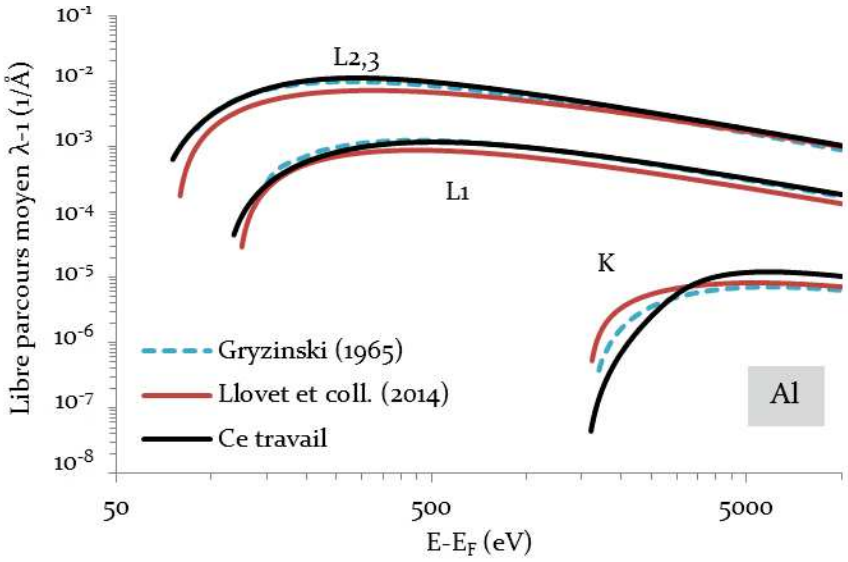


FIGURE 3.16. Libres parcours des électrons de cœur dans l'aluminium. Les données proviennent de [GRY-65, LLO14].

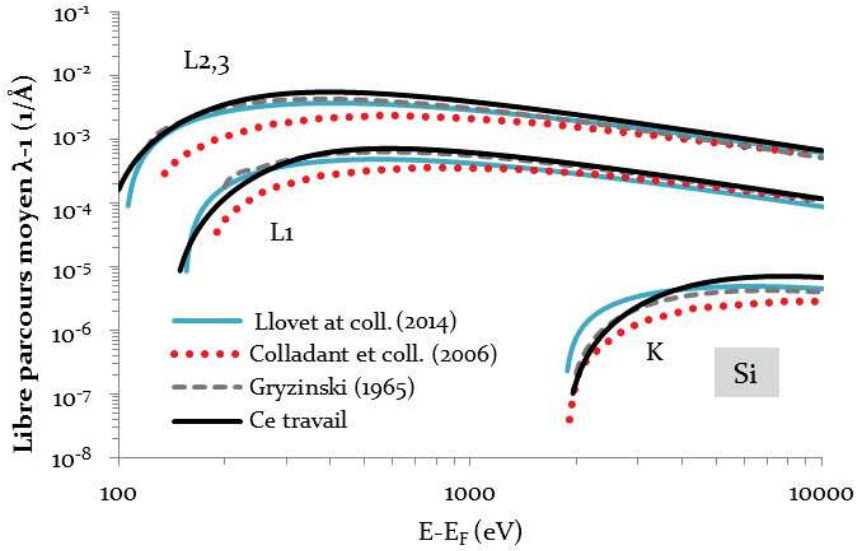


FIGURE 3.17. Libres parcours des électrons de cœur dans le silicium. Les données proviennent de [GRY 65, LLO14, COL06].

3.2.4.2.2. CONTRIBUTION DES ÉLECTRONS FAIBLEMENT LIÉS

Pour les électrons faiblement liés, il n'est pas possible de séparer directement la contribution individuelle de la contribution collective sur la fonction de perte d'énergie. Dans l'hypothèse d'un gaz d'électrons libres, un électron qui interagit avec un unique électron libre, transfère un moment $\hbar q$ compris entre les moments $qs_+(\hbar\omega)$ et $qs_-(\hbar\omega)$ définis par les relations (3. 35) et (3. 36) **[GAN79]**.

$$qs_+(\hbar\omega) = \frac{\sqrt{2mE_F}}{\hbar} + \frac{\sqrt{2m}}{\hbar}(E_F + \hbar\omega)^{\frac{1}{2}} \qquad \textbf{(3. 35)}$$

$$qs_{-}(\hbar\omega) = -\frac{\sqrt{2mE_F}}{\hbar} + \frac{\sqrt{2m}}{\hbar}(E_F + \hbar\omega)^{\frac{1}{2}} \quad \textbf{(3. 36)}$$

En traçant les relations donnant les bornes en moment transférés $qp_{-}(E, \hbar\omega)$ et $qp_{+}(E, \hbar\omega)$ pour le libre parcours moyen total inélastique et les relations (3. 35) et (3. 36) dans le plan $(\hbar\omega, q)$, nous obtenons, dans le cas de l'aluminium, la FIGURE 3.18.

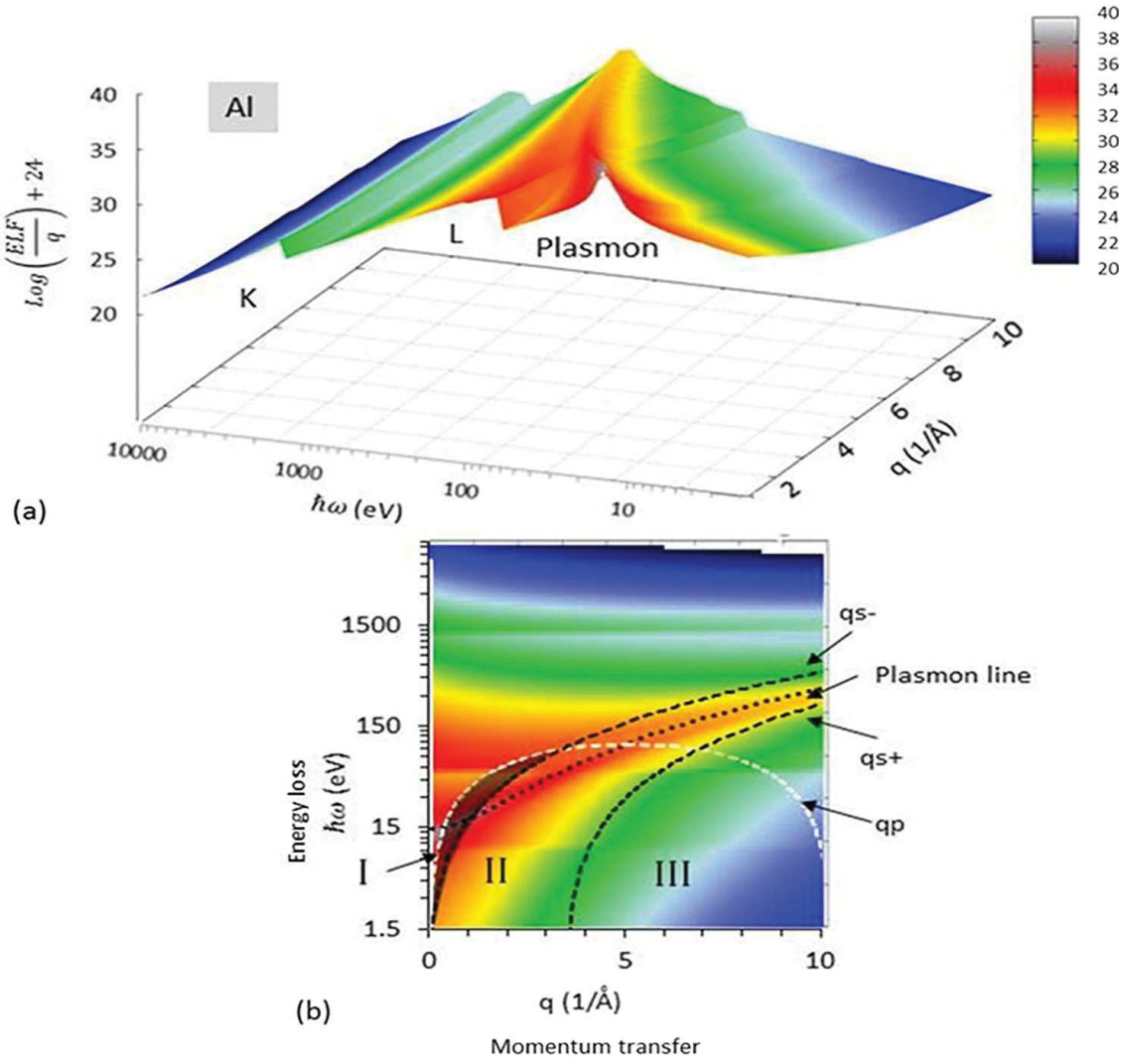


FIGURE 3.18. Fonction de perte d'énergie optique de l'aluminium et projection dans le plan $(\hbar\omega, q)$.

L'ensemble des valeurs $(\hbar\omega, \hbar q)$ accessibles à l'électron primaire pour l'interaction avec un électron secondaire est contenue à l'intérieur de la parabole en

pointillés blancs définie par les relations $qp_-(E,\hbar\omega)$ et $qp_+(E,\hbar\omega)$. La hauteur de cette parabole dépend de l'énergie E de l'électron primaire. Il est intéressant de remarquer que l'intégration en énergie transférée se fait de 0 jusqu'à une énergie $E - E_F$ qui prend en compte le principe de Pauli. En ce sens, l'intégration en $(\hbar\omega, \hbar q)$ ne se fait pas sur l'ensemble de la parabole de la FIGURE 3.18.

Si nous souhaitons réaliser une intégration par partie sur l'ensemble des $(\hbar\omega, \hbar q)$ accessibles, nous voyons sur la FIGURE 3.18 qu'il existe trois domaines différents pour l'intégration de la fonction de perte d'énergie. Le domaine II compris entre $qs_-(\hbar\omega)$ et $qs_+(\hbar\omega)$ correspond au domaine des interactions individuelles avec les électrons faiblement liés. Les domaines I et III respectivement entre $qp_-(E,\hbar\omega)$ et $qs_-(\hbar\omega)$ et entre $qs_+(\hbar\omega)$ et $qp_-(E,\hbar\omega)$ correspondent aux domaines d'existence des plasmons de volume. Nous pouvons, en effet, distinguer la ligne du plasmon de volume dans le domaine I. La relation de dispersion du plasmon de volume et la courbe $qp_-(E,\hbar\omega)$ se croisent pour une énergie seuil qui correspond à la condition d'existence des interactions avec les plasmons de volume. Nous avons reporté ces valeurs dans le TABLEAU 3.3.

TABLEAU 3.3. Comparaison des moments de coupure et des énergies seuils pour le plasmon de volume dans les références en énergie adoptées (bas de la bande de conduction ou de valence).

	Moment de coupure		Energie de seuil du plasmon de volume (notre modélisation)
	Notre modélisation	Valeurs de la littérature	
Aluminium	$q_c = 1{,}07\ \text{Å}^{-1}$	$q_c = 1{,}3\ \text{Å}^{-1}$ **[ZAC74]**	30,6 eV
Argent	$q_c = 0{,}38\ \text{Å}^{-1}$	Plasmon non visible $q > 0{,}35\ \text{Å}^{-1}$ **[ZAC76]**	13,59 eV
Silicium	$q_c = 1{,}06\ \text{Å}^{-1}$	$q_c = 1{,}1\ \text{Å}^{-1}$ **[STI78]**	32,0 eV

La séparation entre les domaines I et II signifie que dans le domaine II le plasmon de volume est suffisamment amorti pour ne plus être distingué des interactions individuelles avec les électrons faiblement liés. Dans le domaine II, le plasmon peut se désexciter en transférant toute son énergie à un unique électron, qui peut ensuite réaliser une excitation interbande et générer une paire électron-trou. Ce point est cohérent avec l'existence d'un moment de coupure $\hbar q_c$, qui est alors défini comme l'intersection entre la relation de dispersion du plasmon de volume et la relation $qs_-(\hbar\omega)$. Les valeurs du moment $\hbar q_c$ obtenues dans notre modélisation sont données par le TABLEAU 3.3.

Nous pouvons remarquer que notre modèle est cohérent avec les données expérimentales de Zacharias et coll. **[ZAC74, ZAC76]** pour l'aluminium et l'argent, et avec les mesures de Stiebling et Raether **[STI78]** pour le silicium.

Cette séparation en trois domaines est semblable à celle implémentée par la fonction diélectrique de Lindhard **[LIND54]**. Dans ce modèle, le plasmon n'est pas amorti pour $q < q_c$, mais l'est totalement pour $q > q_c$. Dans le cas de solides réels, les plasmons de faible q (domaine I) peuvent également se désexciter en paire électrons-trous via les transitions interbandes **[ZIA06]**.

Par ailleurs, dans le modèle de Lindhard, le domaine III peut être négligé pour l'aluminium. Nous retrouvons ce résultat pour l'aluminium sur la FIGURE 3.18, où nous pouvons voir que l'amplitude de la fonction de perte d'énergie est beaucoup plus faible pour le domaine III que pour les domaines I et II. Un résultat similaire a été obtenu pour le silicium. Néanmoins, afin de considérer des matériaux plus complexes comme l'argent, nous considérerons que le domaine des interactions individuelles s'étend du domaine II au domaine III. En effet, les simulations avec l'argent ont montré que le domaine III n'était pas négligeable pour ce matériau. En ce sens, dans notre modélisation, l'intégrale sur le domaine I donne le libre parcours moyen partiel associé au plasmon de volume, et l'intégrale sur l'ensemble des domaines II et III donne le libre parcours moyen associé aux interactions individuelles avec les électrons faiblement liés.

La FIGURE 3.19 et la FIGURE 3.20 présentent les libres parcours moyens associés à ces intégrales pour l'aluminium. Nous pouvons voir sur ces figures que nous retrouvons des libres parcours moyens en bon accord avec ceux de Lindhard **[LIND54]**, Mermin **[MER70]** et Vashista-Singwi **[VAS72]** pour l'aluminium.

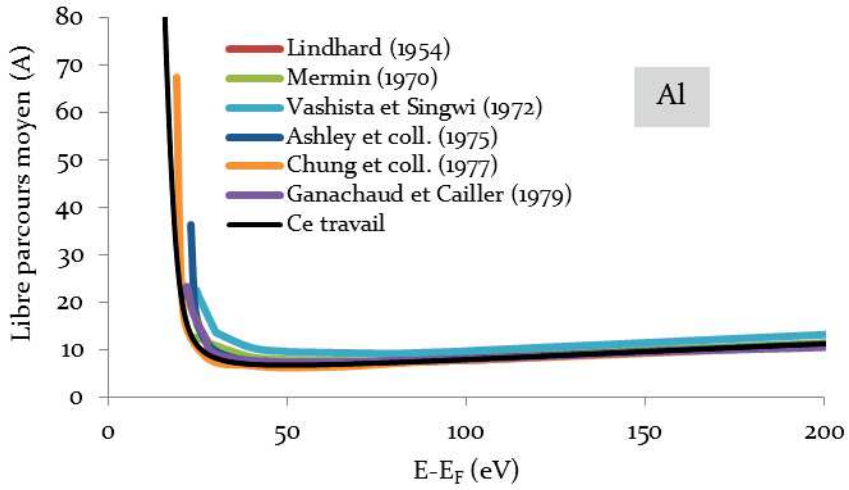


FIGURE 3.19. Libre parcours moyen de l'aluminium pour les interactions avec les plasmons de volume. Les calculs dans le modèle de Lindhard, Mermin, Vashista et Singwi et Chung et coll. proviennent de [ROU13]. Les autres courbes proviennent de [ASH75, GAN79].

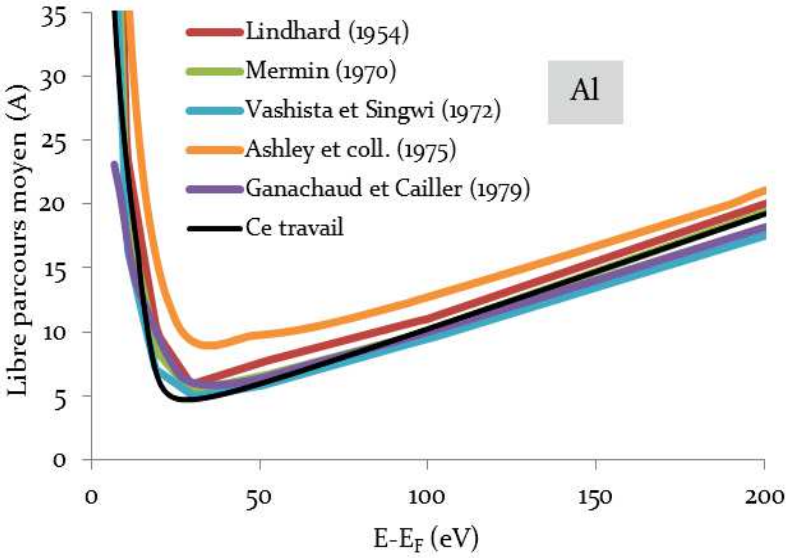


FIGURE 3.20. Libre parcours moyen de l'aluminium pour les interactions individuelles avec les électrons faiblement liés. Les calculs dans le modèle de Lindhard, Mermin, et Vashista et Singwi proviennent de [ROU13]. Les autres courbes proviennent de [ASH75, GAN79].

Pour les deux contributions, nous pouvons observer une remontée du libre parcours moyen. Pour les interactions avec les plasmons de volume, la remontée est située peu avant l'énergie d'excitation du plasmon de volume. Pour les interactions individuelles avec les électrons de la bande de conduction, cette remontée est située à l'énergie de Fermi (qui correspond à l'origine de l'axe des abscisses dans la notation $E - E_F$). Ce point est mis en avant dans la FIGURE 3.21. La remontée du libre parcours moyen signifie que l'électron peut parcourir une très grande distance avant d'interagir avec un autre électron faiblement lié du solide.

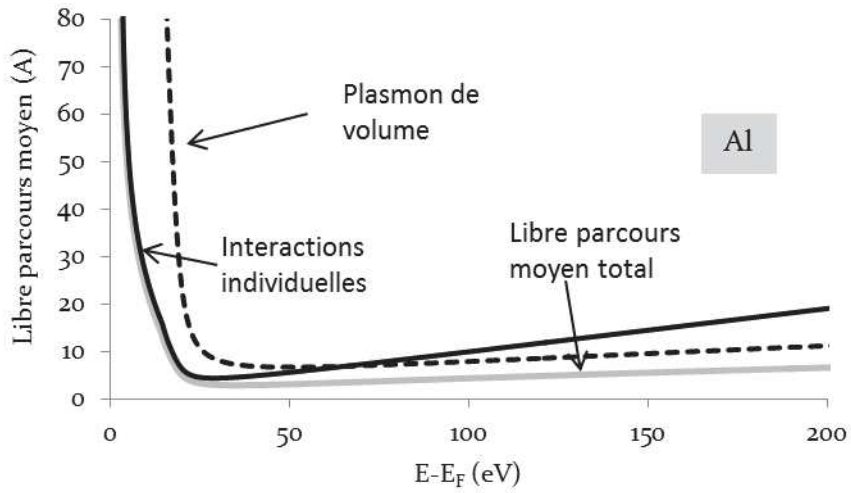


FIGURE 3.21. Comparaison des contributions des électrons faiblement liés au libre parcours moyen de l'aluminium.

Nous pouvons retrouver la séparation que nous avons effectuée sur les libres parcours moyens inélastiques sur les pouvoirs d'arrêt (FIGURE 3.22). Nous voyons qu'à basse énergie, les électrons sont davantage freinés par les interactions avec les plasmons de volume et les interactions individuelles avec les électrons faiblement liés.

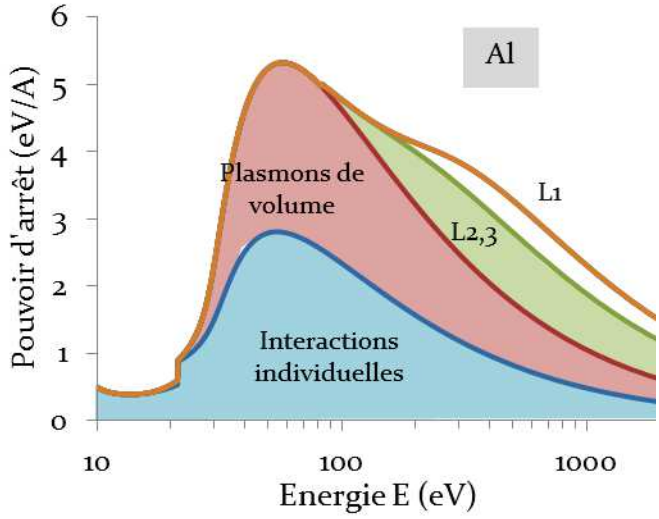


FIGURE 3.22. Pouvoir d'arrêt des électrons dans l'aluminium et contribution des différentes interactions.

Toutefois, la FIGURE 3.22 montre, pour l'aluminium, qu'à partir de 100 eV, la contribution des électrons de cœur de la couche L devient également non négli-

geable. Cette contribution est à l'origine de l'épaulement visible vers 100 eV sur la courbe du pouvoir d'arrêt. Le résultat est identique pour le silicium.

3.2.4.3. EFFET BEGRENZUNG

Jusqu'à présent, nous avons déterminé les libres parcours associés aux interactions dans le volume du matériau. Près de la surface, il est possible d'exciter des oscillations collectives qui se propagent le long de l'interface vide/matériau. Ces oscillations ou « plasmons de surface » présentent une composante évanescente qui s'estompe rapidement dès que l'on s'éloigne de l'interface (section 3.2.3.2.3). Cet amortissement est connu sous le nom d'effet Begrenzung. De manière classique, l'amortissement de l'onde prend la forme d'une exponentielle. La probabilité d'exciter un plasmon de surface diminue avec la profondeur de l'électron dans le matériau. A l'opposé, la probabilité d'exciter un plasmon de volume augmente lorsque l'électron s'éloigne de la surface. Pour prendre en compte cet effet, nous pouvons ajouter les relations de dépendance (3. 37) et (3. 38), où z désigne la profondeur à laquelle se situe l'électron dans le solide **[CHE96]**.

$$\lambda_{vp}^{-1}(z,E) = \lambda_{vp}^{-1}(E) \times \left[1 - \exp\left(-\frac{z}{z_{0(\hbar\omega_p)}}\right)\right] \quad \textbf{(3. 37)}$$

$$\lambda_{sp}^{-1}(z,E) = \lambda_{sp}^{-1}(E) \times \left[\exp\left(-\frac{z}{z_{0(\hbar\omega_s)}}\right)\right] \quad o\grave{u}\ z_0(\hbar\omega) = \frac{v}{2\omega} \quad \textbf{(3. 38)}$$

Les conditions d'atténuation et d'amplification des plasmons de surface et de volume ne sont pas directement corrélées. Les épaisseurs effectives d'atténuation et d'amplification utilisées dans les modèles sont différentes pour les deux phénomènes. J'ai donc choisi de conserver l'utilisation d'une profondeur effective différente pour le plasmon de volume et le plasmon de surface, telle que celle décrite par Roupie **[ROU13]** et implémentée dans la version existante du code OSMOSEE.

La FIGURE 3.23 présente les calculs de sections efficaces différentielles de l'argent pour une énergie de 292 eV et à différentes profondeurs z en prenant en compte l'effet Begrenzung. Les sections efficaces de la FIGURE 3.23 sont une combinai-

son des fonctions de perte d'énergie optique de volume et de surface présentées sur la FIGURE 3.12. Nous pouvons constater que lorsque l'électron est proche de la surface, les pics associés à la contribution de la surface sont davantage marqués. Au fur et à mesure que l'électron s'éloigne de la surface, l'amplitude des pics de la contribution du volume augmente et l'amplitude des pics de la contribution de la surface diminue.

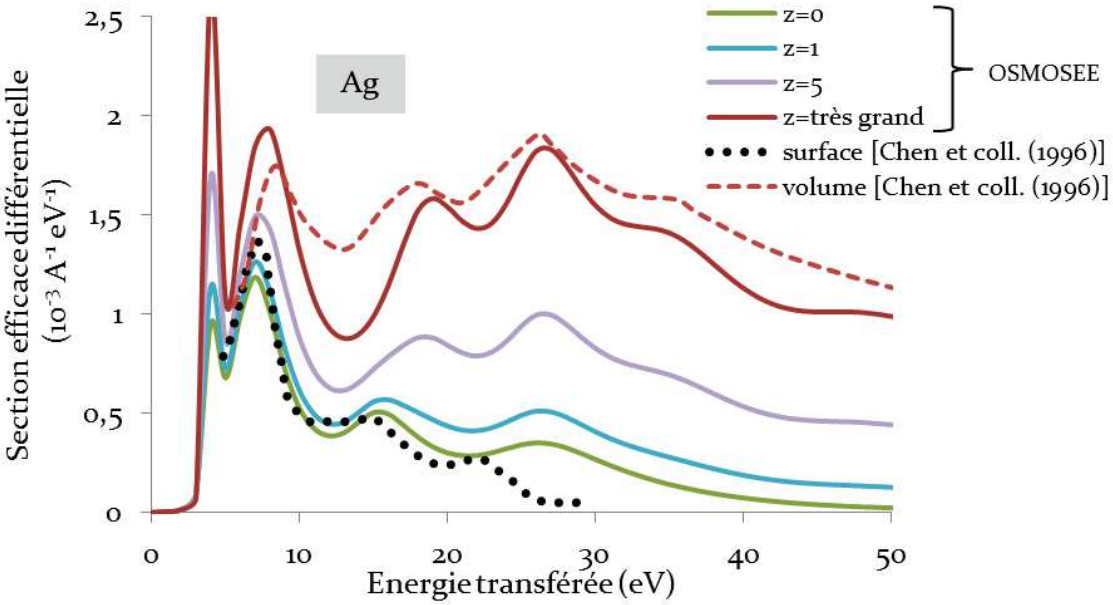


FIGURE 3.23. Variation de la section efficace différentielle de l'argent en fonction de la profondeur z de l'électron pour une énergie de 292 eV. Les calculs de Chen et coll. [CHE96] correspondent à une énergie de 300 eV pour la contribution du volume et de 250 eV pour la contribution de la surface. Les pics associés à la contribution du volume ont une énergie de 3,8 (pv) ; 7,5 ; 17,5 ; 25,4 et 33 eV. Ceux associés à la contribution de la surface sont situés à 3,6 (ps) ; 6,9 ; 14,9 et 25,6 eV.

Nous retrouvons une position et une amplitude pour les pics en assez bon accord avec les calculs de Chen et coll. **[CHE96]** qui considèrent une expression plus complexe pour la fonction de perte d'énergie optique de surface.

Pour l'aluminium et le silicium, matériaux pour lesquels, le plasmon de volume et le plasmon de surface sont définis par un unique pic, le résultat est similaire : lorsque l'électron s'éloigne de la surface, le pic associé au plasmon de surface diminue et le pic associé du plasmon de volume augmente **[CHE96]**.

3.3. MODÉLISATION DU TRANSPORT DES ÉLECTRONS

Jusqu'à présent, nous avons calculé les libres parcours moyens associés aux différentes interactions entre les électrons et les sections efficaces différentielles. Les premiers nous permettent de choisir l'interaction que va subir l'électron primaire, et les seconds, l'énergie transférée par l'électron primaire à l'électron secondaire lors de l'interaction (chapitre 2). Cependant, d'autres phénomènes physiques doivent être pris en compte pour la précision de la modélisation :

- A basse énergie notamment, les électrons du matériau ont des vitesses du même ordre de grandeur que les électrons incidents et ne peuvent donc plus être considérés comme des cibles immobiles.
- Dans l'hypothèse d'un gaz d'électrons libres, l'énergie des électrons est distribuée dans la bande de conduction selon la loi de Fermi **[KIT71]**, que nous avons dû prendre en compte.
- Les cascades d'électrons Auger qui résultent des interactions avec les électrons de cœur doivent également être prises en compte dans leur ensemble.
- A très basse énergie, en dessous des seuils d'ionisation, le ralentissement des électrons se fait essentiellement par l'intermédiaire de l'excitation de vibration du réseau : les phonons.
- Pour finir, le passage de la surface est aussi un mécanisme important qui influence directement les rendements d'émission électronique.

3.3.1. MODÈLE POUR L'ÉNERGIE D'ORIGINE DES ÉLECTRONS SECONDAIRES

Dans un métal, un grand nombre d'interactions se produira avec les électrons de la bande de conduction. Nous avons vu dans le chapitre 2 que si l'électron primaire transfère une énergie $\hbar\omega$ à l'électron secondaire telle que $\hbar\omega > E_F$ alors l'électron secondaire peut provenir de l'ensemble de la bande de conduction. A l'inverse, si nous avons $\hbar\omega < E_F$ alors l'électron secondaire ne peut provenir uniquement que du haut de la bande de conduction. De manière similaire pour un isolant ou un semi-conducteur, lorsque l'électron primaire transfère une énergie $\hbar\omega$ telle que $\hbar\omega < \Delta V + E_g$, l'électron secondaire ne peut provenir qu'uniquement du haut de la bande de valence. Nous notons E_i l'énergie d'origine de l'électron secondaire, tel qu'illustré sur la

FIGURE 3.24. A basse énergie les transferts d'énergie seront contraints par ces conditions de quantification dont il faut tenir compte dans notre modélisation.

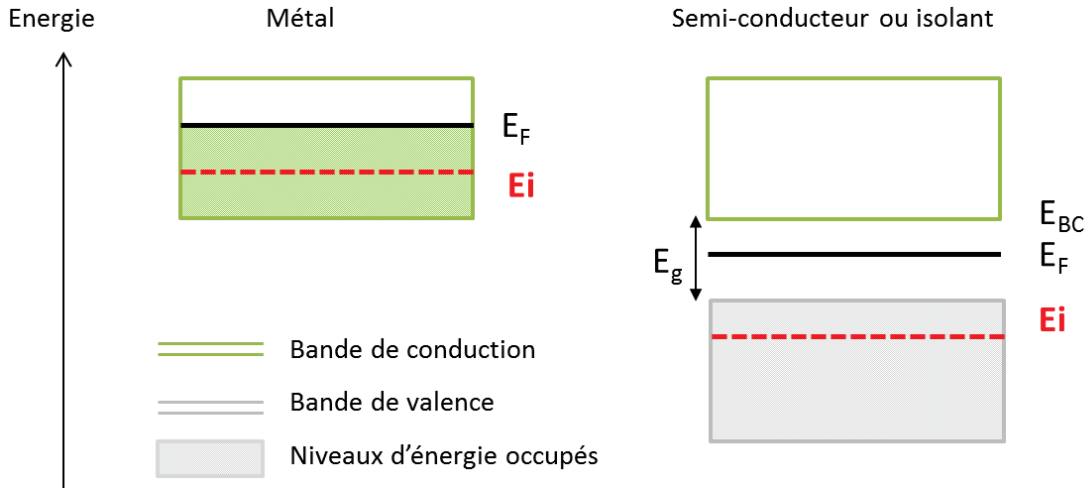


FIGURE 3.24. Schéma simplifié des structures des bandes d'un métal et d'un diélectrique. L'énergie E_i indique l'énergie d'origine de l'électron secondaire lors de l'interaction entre un électron primaire et un électron faiblement lié du solide.

3.3.1.1. CAS DE L'ALUMINIUM ET L'ARGENT

De manière générale, la probabilité R qu'un électron soit situé à un niveau initial d'énergie E_i dans la bande de conduction (ou de valence) est définie par le rapport du nombre d'états accessibles depuis le haut de la bande sur le nombre total d'états occupés dans la bande. Nous notons $g(E)$ la densité d'états accessibles.

$$Si\ \hbar\omega \geq E_F, R = \frac{\int_{Ei}^{E_F} g(E)dE}{\int_{0}^{E_F} g(E)dE} \quad \textbf{(3. 39)}$$

$$Si\ \hbar\omega < E_F, R = \frac{\int_{Ei}^{E_F} g(E)dE}{\int_{E_F-\hbar\omega}^{E_F} g(E)dE} \quad \textbf{(3. 40)}$$

A des fins de simplifications, nous nous plaçons pour les métaux dans le cadre de la théorie du gaz d'électrons libres. Dans ce contexte, la densité d'états $g(E)$ est donnée par la relation (3. 41) où n_{vz} désigne le nombre d'électrons de valence.

$$g(E) = \frac{3}{2}\frac{n_{vz}}{E_F}\sqrt{\frac{E}{E_F}} \qquad \textbf{(3. 41)}$$

Dans cette hypothèse, nous obtenons :

$$Si\ \hbar\omega \geq E_F, \mathrm{Ei} = (1-R)^{2/3}E_F \qquad \textbf{(3. 42)}$$

$$Si\ \hbar\omega < E_F, Ei = \left[(1-R)E_F{}^{\frac{3}{2}} + R(E_F - \hbar\omega)^{\frac{3}{2}}\right]^{2/3} \qquad \textbf{(3. 43)}$$

Comme nous l'avons discuté précédent, cette approximation est vérifiée pour l'aluminium, mais est discutable pour l'argent. Les FIGURE 3.25 et FIGURE 3.26 présentent les densités d'états de ces deux matériaux.

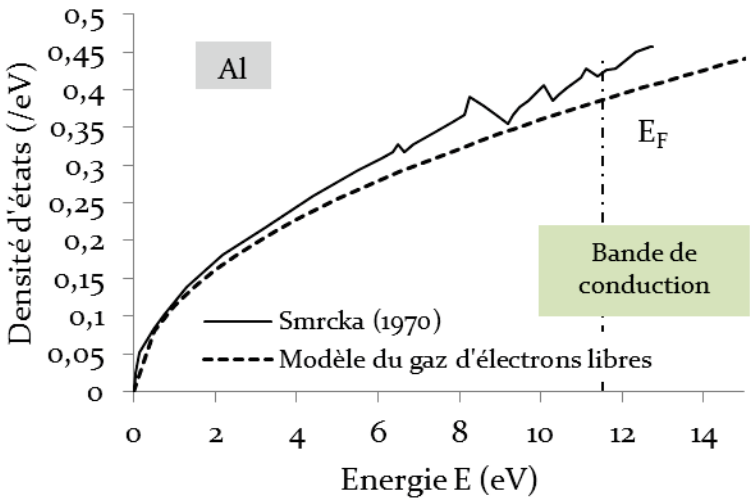


FIGURE 3.25. Densités d'états pour la bande de conduction de l'aluminium [SMR70]. La référence en énergie est prise au bas de la bande de conduction.

Nous pouvons voir que la fonction $\boldsymbol{g(E)}$ permet de modéliser très correctement la densité d'états de l'aluminium. En revanche, pour l'argent, cette fonction ne permet de modéliser que la contribution des électrons faiblement liés de la couche 5s. Nous voyons que les électrons de la bande 4d ont une contribution supplémentaire. Pour l'argent nous avons émis l'hypothèse que les électrons des bandes d contribuent moins au transport que les électrons de la bande s, et avons conservé la modélisation par un gaz d'électrons libres pour ce matériau.

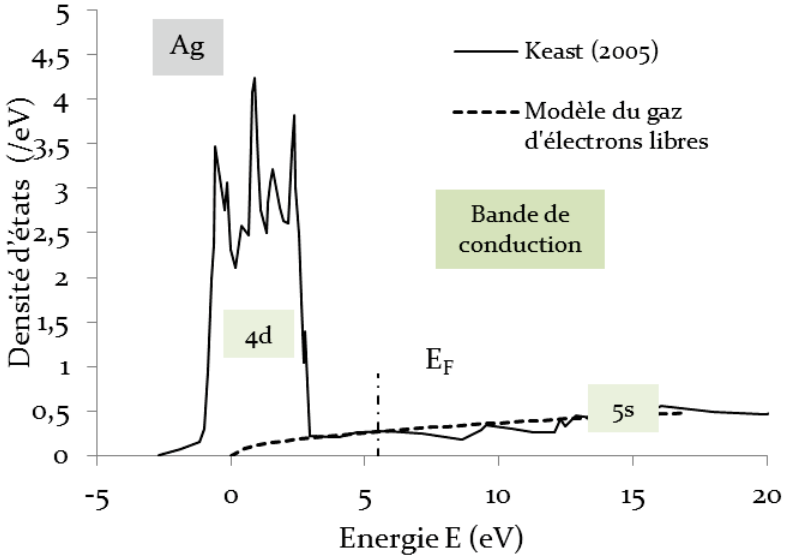


FIGURE 3.26. Densités d'états pour la bande de conduction de l'argent [KEA05]. La référence en énergie est prise au bas de la bande de conduction.

3.3.1.2. CAS DU SILICIUM

Nous avons vu dans la section sur les plasmons de volume que le silicium pouvait être modélisé avec une assez bonne approximation par un gaz d'électrons libres. La FIGURE 3.27 montre la densité d'états pour la bande de valence et la bande de conduction du silicium.

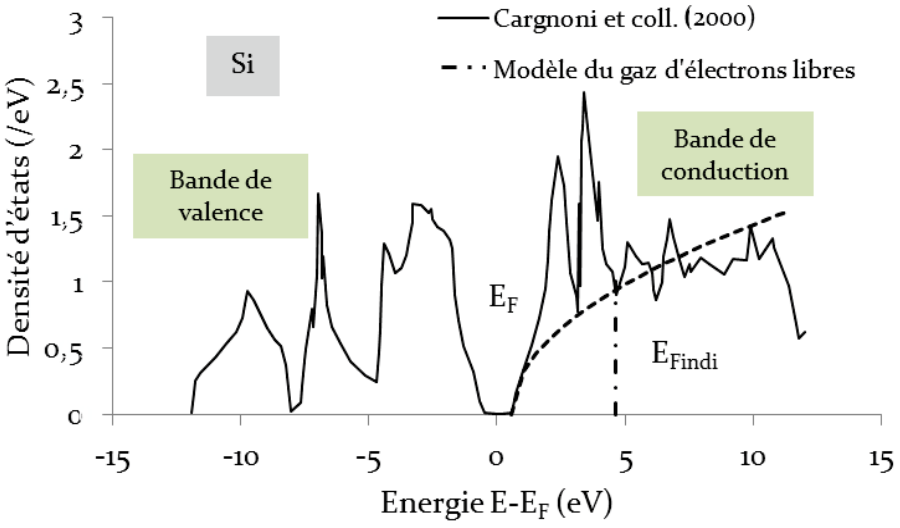


FIGURE 3.27. Densites d'états pour la bande de conduction et la bande de valence du silicium. La référence en énergie est prise au niveau de Fermi. Les données sont issues de [CAR00].

La FIGURE 3.27 montre que la bande de valence du silicium ne peut pas être modélisée de manière simple en $\sqrt{E}$. Nous avons choisi de tirer directement l'énergie initiale E_i de l'électron secondaire dans la distribution de la bande de conduction. Dans ce modèle, nous avons défini un niveau de Fermi E_{Findi} qui correspond à l'espace occupé par les électrons dans la bande de conduction par analogie avec un métal. Pour le silicium, notre modélisation est optimale pour $E_{Findi} = 4{,}65\ \text{eV}$. Cette valeur correspond à peu près à la valeur de la première section de la bande de valence.

En prenant le bas de la bande de conduction comme référence en énergie pour le tirage aléatoire, nous obtenons l'énergie initiale Ei' définie par les équations (3. 44) et (3. 46). Dans les références en énergie adoptées — bas de la bande de valence pour un semi-conducteur — nous obtenons l'énergie initiale Ei définie par la relation $Ei = \Delta V + Eg + Ei'$ et par les équations (3. 45) et (3. 47).

$$Si\ \hbar\omega \geq E_{Findi}, R = \frac{\int_0^{Ei'} g(E)dE}{\int_0^{E_{Findi}} g(E)dE} \quad \textbf{(3. 44)}$$

D'où

$$Ei = \Delta V + Eg + (1-R)^{\frac{2}{3}} E_{Findi} \quad \textbf{(3. 45)}$$

$$Si\ \hbar\omega < E_{Findi}, R = \frac{\int_{Ei'}^{E_{Findi}} g(E)dE}{\int_{E_{Findi}-\hbar\omega}^{E_{Findi}} g(E)dE} \quad \textbf{(3. 46)}$$

D'où

$$Ei = \Delta V + Eg + \left[(1-R){E_{Findi}}^{\frac{3}{2}} + R(E_{Findi} - \hbar\omega)^{\frac{3}{2}}\right]^{\frac{2}{3}} \quad \textbf{(3. 47)}$$

En tenant compte de la bande interdite, nous devons ajouter une limite supplémentaire telle que $\hbar\omega \geq 3Eg$ où $3Eg$ représente l'énergie moyenne minimale pour le passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction d'après les calculs d'Alig et Bloom **[ALI75]**. Nous obtenons finalement l'énergie de l'électron secondaire par la relation :

$$Es = Ei + \hbar\omega - 3Eg \quad \textbf{(3. 48)}$$

La méthode utilisée pour obtenir l'énergie d'origine des électrons secondaires s'appuie sur l'hypothèse d'un gaz d'électrons libres. Cependant, il est possible d'utiliser une méthode plus précise mais plus complexe pour déterminer la densité d'états. En ce sens, la théorie de la fonctionnelle densité **[NAR12]** (DFT en anglais pour « Density Function Theory ») permettrait d'obtenir la densité d'états pour un plus grand nombre de matériaux.

3.3.2. MODÉLISATION DE LA CASCADE AUGER

Nous avons vu dans le chapitre 2 que les interactions entre les électrons primaires et les électrons de cœur des atomes du solide donnaient lieu à des réarrangements électroniques avec notamment la création d'une cascade d'électrons Auger. Un exemple d'algorithme pour traiter l'ensemble de la cascade Auger est donné dans les travaux d'Allison et coll. **[ALL16]** dans le cas du code GEANT4. J'ai implémenté un algorithme similaire pour les matériaux étudiés dans le code OSMOSEE. Toutefois, seules les transitions Auger les plus probables sont prises en compte, contrairement à l'algorithme implémenté dans GEANT4 qui tient compte de l'ensemble des transitions Auger et des transitions radiatives.

Pour les matériaux légers comme l'aluminium et le silicium, les simulations ont montré que considérer uniquement la première étape de la cascade Auger était suffisant pour obtenir des rendements en bon accord avec les mesures expérimentales. Dans le code OSMOSEE, pour l'argent, la cascade ne prend en compte que les transitions les plus probables pour chacune des sous-couches électroniques. Contrairement à l'aluminium et au silicium, afin de modéliser correctement les rendements d'émission, les simulations ont montré qu'il faut prendre en compte l'ensemble de la cascade Auger. C'est ce que montre la FIGURE 3.28 pour l'argent. Dans le cas où on ne prend pas en compte la cascade Auger, nous pouvons voir que la modélisation s'éloigne de manière significative des données expérimentales pour environ 300 eV, énergie à partir de laquelle où les contributions des couches N1 et N2,3 deviennent plus importantes.

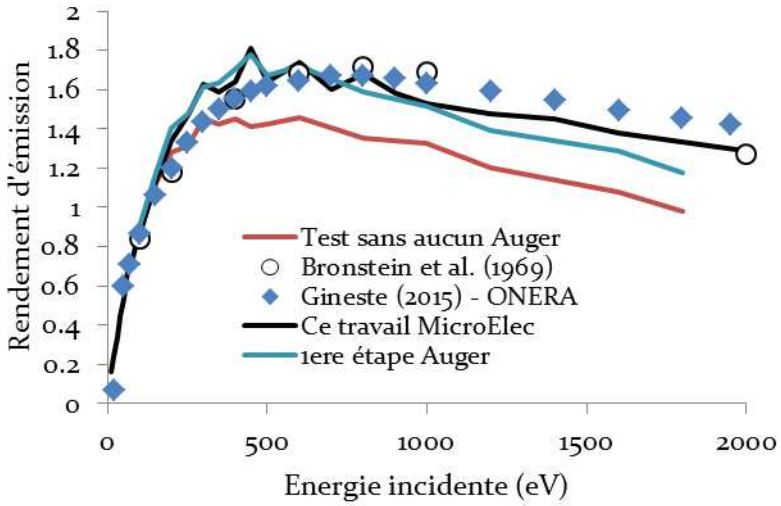


FIGURE 3.28. Rendement d'émission électronique de l'argent sans prendre en compte la cascade Auger, en prenant en compte la première étape de la cascade ou l'ensemble de la cascade.

3.3.3. MODÉLISATION DES PHONONS

Dans les métaux, la population importante des électrons de la bande de conduction implique, qu'à basse énergie, les interactions avec les électrons de la bande de conduction constituent donc un processus de perte d'énergie dominant. Dans les isolants mais également les semi-conducteurs les règles de quantification font, qu'en dessous de quelques eV, il n'est plus possible d'interagir avec les électrons de la bande de valence pour les emmener dans un état accessible de la bande de conduction. Les interactions avec les phonons deviennent alors le principal processus pour faire ralentir les électrons incidents.

Dans le cas du silicium, en dessous de quelques eV, l'interaction la plus probable est l'émission d'un phonon optique par l'électron **[AKK15]**. Lors de cette interaction, l'électron perd une énergie d'environ 0,05 eV **[NAR12]** qui est dissipée par le réseau cristallin. De manière similaire à Narayan et coll. **[NAR12]** nous avons choisi d'utiliser pour décrire ces interactions un modèle simple. Dans ce modèle, nous avons considéré une valeur moyenne du libre parcours déterminé par Akkerman et coll. **[AKK15]** et une énergie transférée constante et égale à $\hbar\omega = 0{,}05$ eV. La FIGURE 3.29 présente pour le silicium, les libres parcours moyens des interactions avec les électrons calculés avec l'équation (3. 33) et le libre parcours moyen calculé par Akkerman et coll. **[AKK15]** pour les interactions avec l'émission ou l'absorption d'un phonon. Nous pouvons voir que les interactions avec les phonons sont peu probables au-dessus de 5 eV **[AKK15]**. Le

libre parcours que nous avons choisi correspond au libre parcours moyen total de ces deux contributions.

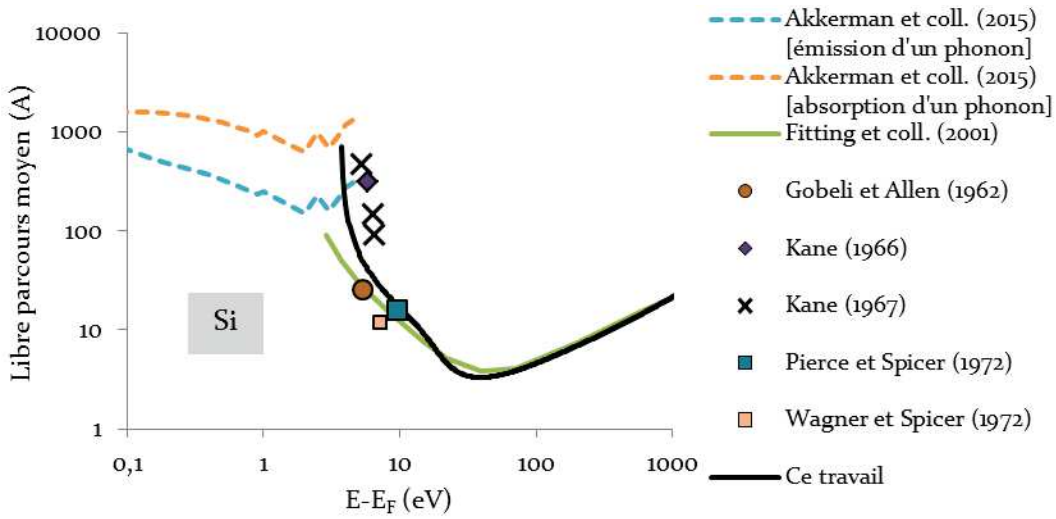


FIGURE 3.29. Libres parcours moyens des phonons et des interactions inélastiques pour le silicium. Les données proviennent de [TUN79, FIT01, AKK15] et ***ibid.***

La FIGURE 3.30 montre le libre parcours moyen inélastique du dioxyde de silicium calculé avec l'équation (3. 33) et les calculs de Schreiber et Fitting. **[SCH02]**. Nous ne prenons pas en compte les phonons dans le calcul du libre parcours moyen.

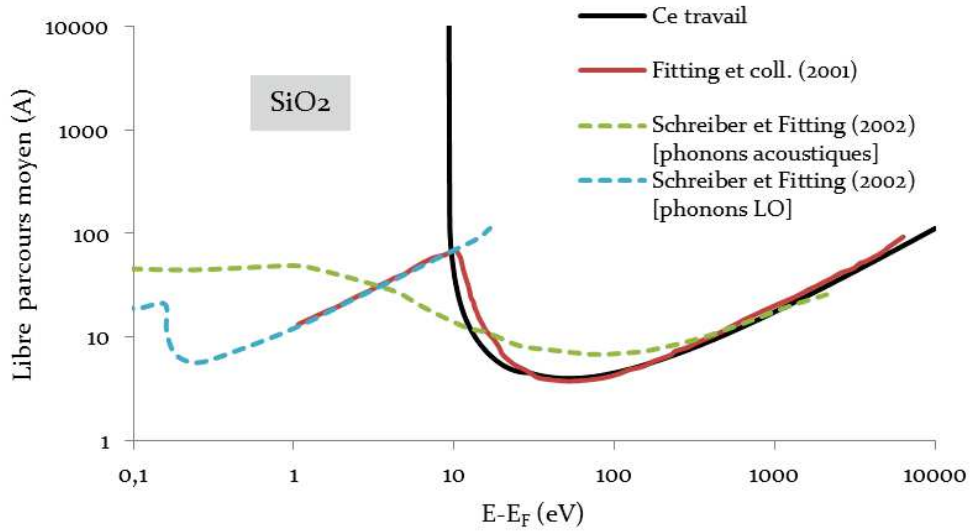


FIGURE 3.30. Libres parcours moyens des interactions inélastiques pour le dioxyde de silicium en prenant en compte la contribution des phonons à basse énergie. Les calculs sont ceux de Schreiber et Fitting [SCH02].

Nous pouvons voir d'après les calculs de de Schreiber et Fitting. **[SCH02]** que les interactions avec les phonons sont plus probables pour ce matériau que dans le silicium. Ces interactions (phonons LO) entraînent une diminution du libre parcours moyen des électrons à basse énergie. Il en résulte que, contrairement au silicium, les phonons vont fortement influencer le rendement d'émission électronique pour le dioxyde de silicium **[AKK96]**.

Comme nous l'avons indiqué dans le chapitre 2, des modèles plus complexes pour les phonons sont nécessaires pour modéliser le transport des électrons à basse énergie dans les isolants, en particulier lorsque l'énergie transférée est inférieure à la largeur de la bande interdite.

3.3.4. MODÉLISATION DE LA SURFACE

Jusqu'à présent, nous avons modélisé le transport des électrons dans le solide. Afin d'étudier l'ensemble du transport, et en particulier les électrons qui s'échappent du solide, nous devons prendre en compte la surface. Nous avons vu dans le chapitre 2 que la surface correspondait à une barrière de potentiel qui empêchait les électrons de s'échapper hors du solide par le biais de réflexions à l'interface. Le passage de l'interface matériau/vide est un phénomène qui joue directement sur les niveaux de rendement d'émission secondaire.

Dans nos modélisations, la surface est associée à une barrière de potentiel exponentielle (chapitre 2). Les simulations pour l'aluminium, l'argent et le silicium ont montré que, sans la prise en compte de la barrière de potentielle de la surface, le rendement d'émission électronique des électrons est surestimé d'un facteur 2 environ. C'est ce que montre la FIGURE 3.31 pour l'aluminium.

Nous observons l'effet de la barrière de potentiel à la fois pour les électrons secondaires et les électrons rétrodiffusés. Pour les électrons rétrodiffusés, nous pouvons voir que l'effet est davantage marqué à basse énergie. Ce résultat est intéressant car il nous indique que le transport des électrons à basse énergie va fortement dépendre de la valeur de la barrière de potentiel.

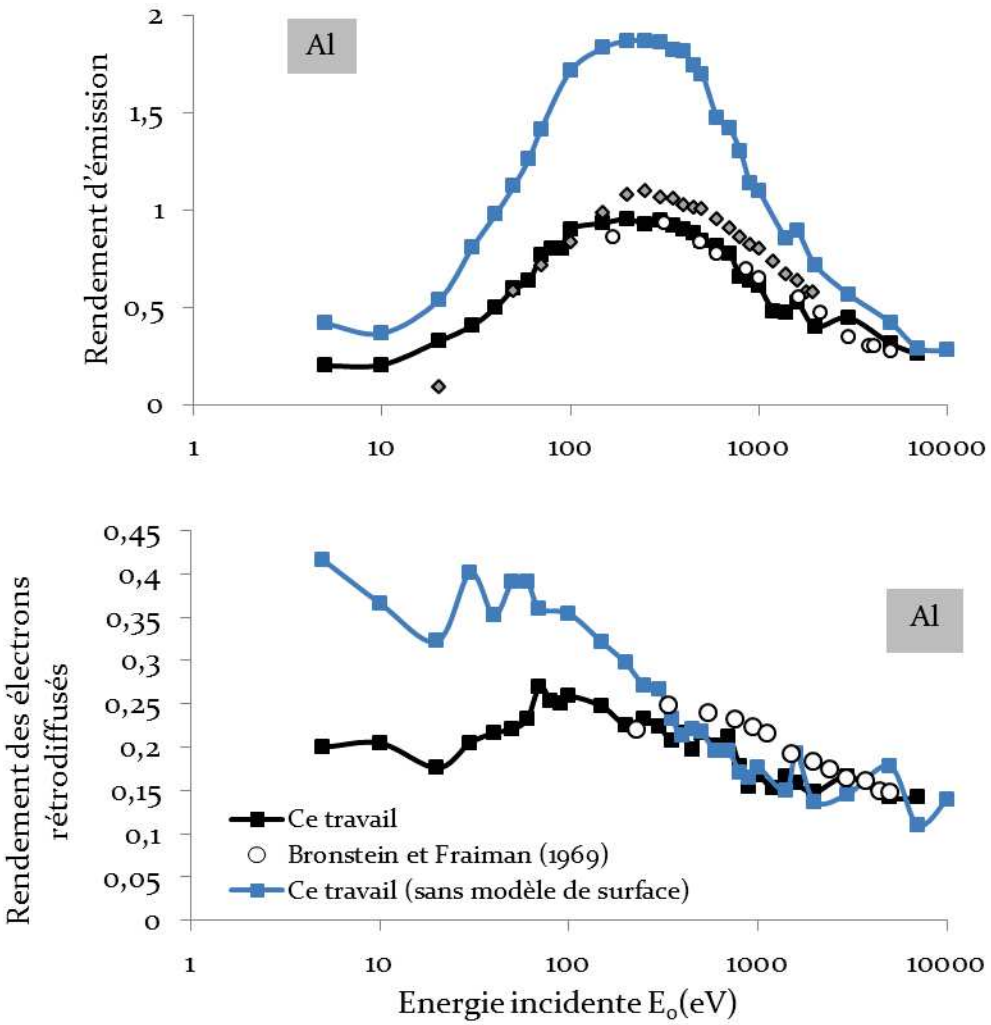


FIGURE 3.31. Effet de la prise en compte de la barrière de potentiel de la surface sur le rendement d'émission électronique.

3.4. CONCLUSION

Afin de modéliser le transport des électrons à basse énergie dans l'aluminium, l'argent et le silicium, nous avons utilisé le modèle des fonctions diélectriques selon le formalisme de Ritchie et Howie **[RIT77]**. Cette méthode, fondée sur des données expérimentales, a l'avantage de pouvoir modéliser à la fois les métaux, les semi-conducteurs et les diélectriques. Toutefois, elle possède l'inconvénient de ne pas prendre directement en compte la dépendance en moment transféré $\hbar q$ de la fonction diélectrique.

Pour inclure cette dépendance, nous avons choisi de suivre les hypothèses de Kurh et Fitting **[KUH99]** et d'inclure deux relations de dispersion. L'utilisation de critères en énergie, en énergie transférée et en moment transféré **[GAN79, PEN87]**, nous a permis de séparer les libres parcours moyens partiels associés aux différentes populations d'électrons : interactions avec les électrons de cœur, interactions individuelles avec les électrons faiblement liés, et interactions avec les plasmons de volume. Même si l'approximation utilisée n'est pas parfaite, en modifiant la fonction diélectrique utilisée initialement, nous avons pu également obtenir le libre parcours moyen associé aux interactions avec les plasmons de surface.

Le transport des électrons dans un matériau est le résultat d'une compétition entre les différentes interactions accessibles aux électrons, mais il dépend également d'autres phénomènes, comme la cascade des électrons Auger qui se produit au cours de la désexcitions d'un atome auquel on a arraché un électron de cœur, ou encore le passage de la barrière de potentiel que représente l'interface matériau/vide. Les modélisations réalisées avec le code OSMOSEE, mais également avec le module MicroElec du code GEANT4, que j'ai adaptés, ont montré qu'il est nécessaire de prendre en compte l'ensemble de ces phénomènes pour décrire le plus précisément possible le transport des électrons dans les matériaux à basse énergie et obtenir ainsi des rendements d'émission secondaires réalistes. Par exemple, la cascade Auger est un phénomène très important pour l'argent. Pour l'aluminium, les simulations ont montré qu'il était nécessaire de prendre en compte le plasmon de surface pour obtenir des spectres en énergie plus précis. Ce point est également vrai pour l'argent, matériau pour lequel, nous avons vu que la contribution de la surface avait une grande influence à basse énergie.

En modélisant ces différentes interactions, les codes de transport d'électrons sont des outils puissants pour obtenir une meilleure compréhension du transport des électrons dans les solides. Afin de valider les simulations issues du code OSMOSEE et du module MicroElec, nous allons comparer les résultats avec des mesures issues du dispositif DEESSE de l'ONERA. Ces mesures ont été réalisées sur des solides massifs décapés *in situ* sous ultravide et correspondent en ce sens à des simulations de matériaux idéaux. Cette étape de validation a été brièvement présentée à travers la FIGURE 3.28 et la FIGURE 3.31 de ce chapitre. Les chapitres 4 et 5, présentent plus en détail les principaux résultats obtenus pendant cette thèse. Dans le chapitre 4 nous verrons le cas des matériaux « parfaits » ayant une surface plane pas d'oxydation et aucune contamina-

tion. Dans le chapitre 5, nous commencerons à étudier des matériaux plus réalistes en étudiant l'effet de la rugosité sur les rendements d'émission électronique.

CHAPITRE 4 : COMPARAISON DES SIMULATIONS NUMÉRIQUES AVEC LES MESURES EXPÉRIMENTALES

4.1. INTRODUCTION

Afin de valider le code OSMOSEE et le module MicroElec, j'ai comparé les simulations avec des mesures expérimentales de rendements d'émission électronique et de spectres en énergie issues du dispositif DEESSE — Dispositif d'étude de l'Émission Électronique Secondaire Sous Électrons — de l'ONERA **[GIN15]**. Ces deux grandeurs nous permettent de vérifier la cohérence de la modélisation du transport des électrons dans les matériaux. En effet, les spectres en énergie, comme mentionné dans le chapitre 2, présentent des pics caractéristiques qui sont directement liés aux énergies des niveaux de cœur (transitions Auger) et aux énergies des plasmons. Ces pics nous permettent de vérifier la cohérence des transferts en énergie lors des interactions entre un électron primaire et un électron secondaire. Les rendements d'émission électronique, quant à eux, donnent accès au nombre d'électrons émis par le matériau. Afin de pouvoir analyser les résultats des simulations du code OSMOSEE et du module MicroElec de manière pertinente, nous devons, au préalable, identifier les principales différences entre les mesures expérimentales et les simulations des codes de Monte-Carlo.

4.1.1. PRINCIPE DES MESURES DU DISPOSITIF DEESSE

Dans le cadre de ce chapitre, nous allons nous intéresser à des mesures d'émission électronique sur des matériaux purs, c'est-à-dire des solides sans contamination, sans oxydation et sans rugosité. Dans les simulations, ces matériaux sont modélisés par des solides semi-infinis. Lors des mesures via le dispositif DEESSE, ces matériaux correspondent à des solides massifs décapés *in situ* par bombardement ionique sous ultravide. L'objectif de l'étape de décapage est de se placer dans les conditions expérimentales qui se rapprochent le plus des matériaux idéaux que nous simulons avec les codes de transport d'électrons.

Le dispositif de mesure DEESSE est une enceinte à ultravide équipée de deux canons à électrons, d'une source à ions, d'une source à rayons X, d'un collecteur à électrons, d'un analyseur à électrons hémisphérique, d'une sonde de potentiel et d'une source d'ultraviolets. Le pompage de l'enceinte est réalisé par une pompe primaire sèche à membrane et des pompes turbo-moléculaires. Pour les mesures de spectres en énergie et de rendements d'émission électronique, l'enceinte est maintenue à un niveau de vide de 5.10^{-9} mbar. Un canon à électrons Kimball Physics fournit des électrons entre 1 eV et 2 keV. La source à ions (argon, xénon, hydrogène) peut fonctionner entre 25 eV et 5 keV. Dans le cadre de cette thèse, les mesures ont été réalisées après un décapage ionique *in situ* par de l'argon sous 1 keV et sous incidence normale **[GIN15]**. Après l'étape de décapage, l'état de la surface des échantillons est contrôlé dans l'enceinte par spectroscopie d'électrons Auger (AES). Le porte-échantillon permet une rotation entre 0 et 80 °, ce qui permet d'étudier l'effet de l'angle d'incidence sur l'émission électronique. Une description complète du dispositif DEESSE peut être trouvée dans les travaux de Gineste et coll. **[GIN14, GIN15]**.

4.1.1.1. MESURES DES SPECTRES EN ÉNERGIE

Lors de la mesure des spectres en énergie, l'échantillon est soumis à une irradiation continue. Les électrons réémis sont collectés par un analyseur hémisphérique, qui les discrimine selon leur énergie E dans le vide. L'analyseur utilisé, de la marque Omicron, peut comptabiliser des électrons d'énergie entre 2 eV et 2 keV avec une précision de quelques dizaines de meV. En pratique, les électrons ayant une énergie entre E_i et E_{i+1} ($[E, E + dE]$) sont comptabilisés dans le canal i. On obtient alors un histogramme dont la largeur des canaux correspond à la précision de l'analyseur.

La FIGURE 4.1 illustre le principe de la mesure des spectres en énergie avec le dispositif DEESSE. On sait que, dans une configuration donnée, le nombre d'électrons collectés par l'analyseur dépend fortement de l'angle entre le canon à électrons et l'échantillon (angle d'incidence noté θ) et de l'angle entre la surface de l'échantillon et l'analyseur (angle d'émission). La distribution angulaire des électrons émis n'est pas homogène, sa dépendance énergétique dépend des processus physiques mis en jeu au cours de l'irradiation. D'une part, lorsque l'angle du faisceau d'électrons est rasant, les électrons restent près de la surface et ont tendance à davantage s'en échapper (chapitre 1). Cela a pour effet d'augmenter la contribution des interactions de surface (plasmon

de surface) par rapport à la contribution des interactions de volume. C'est ce que nous avons pu voir dans le chapitre 3 avec l'influence de l'effet Begrenzung sur les sections efficaces différentielles. D'autre part, si la distribution dans l'espace, appelée « lobe d'émission », des électrons secondaires est isotrope dans le cas de matériaux amorphes ou polycristallins, ce n'est pas le cas de la distribution des électrons rétrodiffusés, qui dépend de l'énergie d'incidence et de l'angle θ **[ROU13]**. En conséquence, le nombre d'électrons rétrodiffusés comptabilisés dans les spectres en énergie dépendra fortement de la position de l'analyseur. Contrairement aux simulations, lors des mesures, tous les électrons ne sont pas collectés sur le détecteur. C'est pourquoi, en pratique, les spectres en énergie sont données en unité arbitraire ou normés.

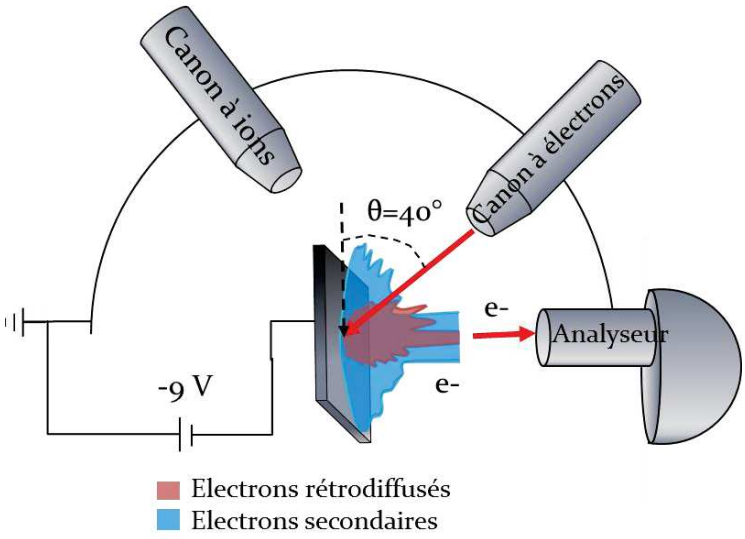


FIGURE 4.1. Schéma du montage de l'enceinte DEESSE pour la mesure des spectres en énergie. A titre d'illustration, l'angle d'incidence θ entre le canon à électrons et l'échantillon est de 40° et l'énergie d'incidence de 100 eV. Les lobes d'émission rouges correspondent aux électrons rétrodiffusés. Les lobes d'émission bleus correspondent aux électrons secondaires.

Par ailleurs, le montage expérimental peut introduire un décalage en énergie sur les spectres. Un électron d'énergie E_0 est en réalité émis avec une énergie de $E_0 - W_c$ où W_c est le travail de sortie du canon à électrons. Pour les mesures à basse énergie, l'échantillon peut être polarisé négativement pour éviter la recollection des électrons émis de faible énergie. En conséquence, lorsque l'électron primaire pénètre à l'intérieur du matériau, son énergie cinétique devient$E_0 - W_c + W + W_{pol}$ où W est le travail de sortie du solide (métal) ou l'affinité électronique (semi-conducteur ou un isolant). W_{pol} est le travail de sortie correspondant à la polarisation de l'échantillon. Les électrons rétrodiffusés qui s'échappent du matériau et arrivent sur l'analyseur ont donc une énergie $E_0 - W_c + W_{pol} + W_a$ où W_a est le travail de sortie de l'analyseur. La

différence de travail de sortie des éléments du montage expérimental $W_a - W_c + W_{pol}$ peut entraîner un épaulement à très basse énergie sur les spectres, que l'on retrouve, par exemple sur les spectres de Riccardi et coll. **[RIC10]**.

De manière similaire à l'analyseur, le code OSMOSEE répartit les électrons dans des canaux d'énergie dont la largeur constitue la limite de l'échantillonnage (ou précision) du spectre. La principale difficulté consiste à établir un compromis entre le nombre d'électrons, la largeur des canaux et le temps de calcul. Par exemple, si le nombre d'électrons est insuffisant, les spectres apparaissent comme noyés dans le bruit ; ou si les canaux sont trop larges, les pics peuvent être décalés ou fondus dans le reste du spectre. Ces artéfacts de simulation ont été pris en compte pour la comparaison avec les mesures expérimentales issues du dispositif DEESSE de l'ONERA et de la littérature.

4.1.1.2. MESURES DES RENDEMENTS D'ÉMISSION

Contrairement aux mesures de spectres en énergie, lors de la mesure des rendements d'émission, l'irradiation de l'échantillon est pulsée pour éviter le conditionnement de la surface (dépôt de contaminants, effet de charges, etc.) **[GIN15]**. Dans le dispositif DEESSE, les mesures de rendements d'émission électronique sont réalisées de manière indirecte, par le biais de mesure de courant. Les lois de conservation de la charge nous indiquent que le flux d'électrons reçu par un matériau, appelé « courant du faisceau » et noté I_f, est réparti entre le courant traversant l'échantillon, noté I_s, et le courant émis par l'échantillon noté I_e. Ces notations sont illustrées sur la FIGURE 4.2. Dans le cas de matériaux diélectriques ou de conducteurs à potentiel flottants, certaines charges peuvent également être piégées dans le matériau **[GIN15]**. Lors de l'étude des basses énergies, afin d'éviter la recollection des électrons émis de faible énergie, l'échantillon est polarisé négativement.

Le rendement d'émission électronique peut être déterminé par la mesure des courants I_f et I_s selon la relation (4. 1).

$$\sigma = \frac{I_f - I_s}{I_f} \qquad \textbf{(4. 1)}$$

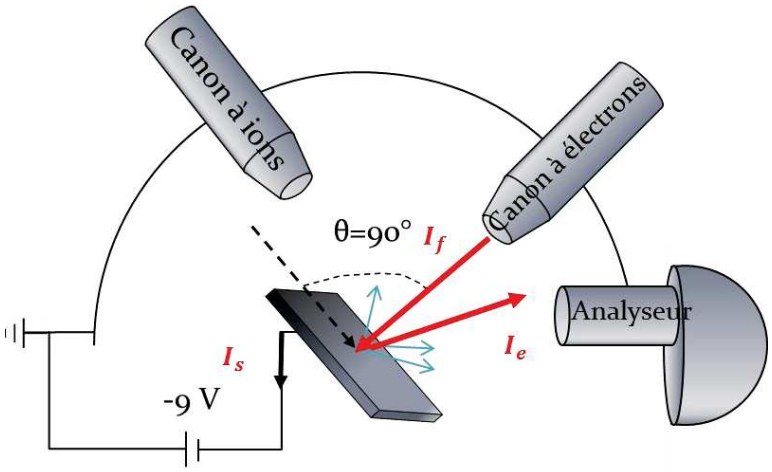


FIGURE 4.2. Schéma du montage de l'enceinte DEESSE pour la mesure des rendements d'émission électronique. A titre d'illustration, l'angle d'incidence θ entre le canon à électrons et l'échantillon est de 90°.

La mesure des courants permet d'obtenir des rendements d'émission avec une incertitude relativement faible. Par exemple, pour le rendement d'émission du silicium à incidence normale, les incertudes des mesures du dispostif DEESSE sont de l'ordre de 10 % (l'incertitude est de 0,06 par rapport à un rendement de 0,59) à 11 eV, puis descendent en dessous de 8 % (0,05 par rapport à un rendement de 0,64) pour des énergies supérieures à 21 eV, et en dessous de 4 % (0,03 par rapport à un rendement de 1,04) pour des énergies supérieures à 191 eV. Les incertitudes sont du même ordre de grandeur pour l'aluminium et l'argent. Pour les simulations des codes de Monte-Carlo, les incertitudes sont dues à des variations statistiques qui peuvent être estimées par $1/\sqrt{N}$ avec N le nombre d'électrons émis par le matériau. Un nombre d'électrons de $N = 1000$ correspond donc à une erreur de 3 % sur les rendements d'émission.

Expérimentalement on n'a aucun moyen d'identifier les électrons secondaires des électrons rétrodifusés. Comme entre 5 eV et ~50 eV la très grande majorité des électrons émis par la surface sont des électrons secondaires, les expérimentateurs définissent une énergie de coupure, en général de 50 eV, entre les électrons rétrodiffusés et les électrons secondaires. Tous les électrons d'énergie supérieure à 50 eV sont considérés être des électrons rétrodiffusés. Ceux en dessous de 50 eV sont considérés être des secondaires. Expérimentalement ces deux populations sont séparées en appliquant un champ retardateur à la surface de l'échantillon ou en amont du collecteur **[GIN15]**. Ce champ a pour effet d'éliminer la contribution des électrons secondaires.

Les simulations numériques, par contre, donnent directement accès aux rendements de chaque population (électrons rétrodiffusés et électrons secondaires).

Nous pouvons alors distinguer deux méthodes pour déterminer le rendement des électrons rétrodiffusés et des électrons secondaires avec les simulations. La première consiste à séparer les électrons selon leur origine. On parle d'électrons rétrodiffusés et d'électrons secondaires « vrais ». La deuxième méthode consiste, pour être plus représentatif de ce qui est fait expérimentalement, à considérer que les électrons d'énergie supérieure à l'énergie de coupure sont des électrons rétrodiffusés, et que les électrons d'énergie inférieure sont des électrons secondaires. Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 2, cette méthode entraîne un biais pour les basses énergies, et ne peut s'appliquer lorsque les électrons ont une énergie inférieure à l'énergie de coupure.

4.1.2. BIAIS SUR LES MESURES EXPÉRIMENTALES

Nous avons constaté, dans le chapitre 1, que les rendements d'émission électronique des matériaux dépendaient fortement de l'état de leur surface. Nous retrouvons ce résultat sur la FIGURE 4.3 qui présente les spectres en énergie pour différentes énergies d'incidence pour un échantillon de silicium légèrement oxydé. En particulier, nous avons pu voir que l'oxydation entraînait une augmentation du rendement d'émission électronique.

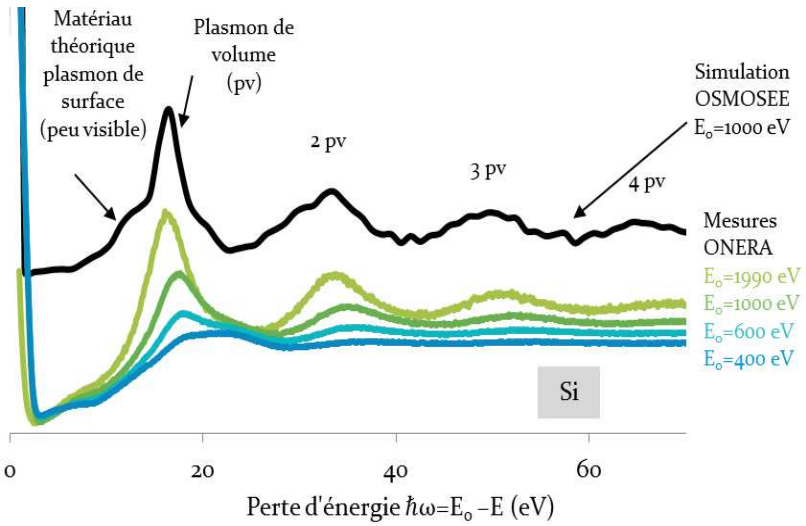


FIGURE 4.3. Décalage des pics caractéristiques du silicium pour un échantillon présentant une couche d'oxyde à sa surface. Les spectres issus du dispositif DEESSE sont normés par rapport au pic élastique. Le spectre issu des simulations du code OSMOSEE est donné à titre d'illustration et a été décalé en ordonnée à des fins de clarté.

Pour les spectres en énergie, les travaux de Gineste **[GIN15]** ont monté que l'oxydation et la contamination de la surface provoquaient un décalage et un amortissement des pics. Lorsque l'énergie d'incidence des électrons augmente, les électrons traversent la couche d'oxyde et interagissent davantage avec le silicium massif. Il en résulte que la contribution du silicium augmente progressivement et que le spectre en énergie expérimental se rapproche du spectre théorique, illustré sur la FIGURE 4.3 par les simulations du code OSMOSEE.

Afin d'obtenir des mesures expérimentales sur un matériau le plus proche possible d'un matériau théorique, il est nécessaire de prendre quelques précautions. Premièrement, afin d'éviter la désorption de gaz lors des mesures, l'enceinte et les échantillons (nettoyés au préalable avec de l'éthanol) doivent être dégazés et étuvés. Deuxièmement, après décapage par bombardement d'argon, l'état de la surface des échantillons doit être analysé par spectroscopie Auger (AES) ou par spectroscopie de photoélectrons X (XPS). Ces analyses, disponibles dans les travaux de Gineste **[GIN15]** pour l'aluminium et l'argent, ont montré que, après décapage, les échantillons des trois matériaux ont un faible niveau d'oxydation et un très faible niveau de contamination au carbone. Il est intéressant de mentionner que l'étape de décapage peut modifier la rugosité à la surface du matériau. C'est ce qu'ont montré les mesures de Gineste **[GIN15]** par interférométrie sous lumière blanche pour l'échantillon d'argent. Cependant il faut bien garder à l'esprit que le matériau utilisé expérimentalement conserve des propriétés qui peuvent s'éloigner du cas idéal que représente la simulation.

4.2. COMPARAISON DES SPECTRES EN ÉNERGIE

Les principales caractéristiques des spectres en énergie ont été décrites dans le chapitre 2. A des fins de clarté, nous pouvons rappeler que chaque pic du spectre est associé à une perte d'énergie caractéristique $\hbar\omega$. Par exemple, un électron incident d'énergie E_0, qui est rétrodiffusé après avoir perdu une énergie $\hbar\omega$, est associé à un pic d'énergie $E_0 - \hbar\omega$, et un électron secondaire d'énergie E dans le solide est associé à un pic d'énergie $E - W$ pour un métal et $E - e\chi$ pour un semi-conducteur ou un isolant. Afin d'obtenir une estimation de la déviation moyenne entre deux spectres, nous avons utilisé la mesure RSMD (Root Square Mean Deviation). Cette mesure, définie par

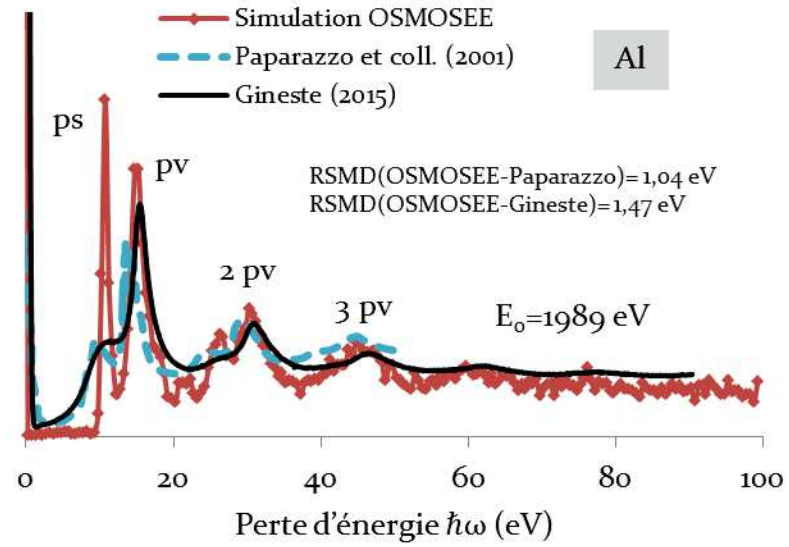
l'équation (4. 2), présente toutefois l'inconvénient de surestimer l'écart moyen lorsque un ou plusieurs pics sont aberrants.

$$RSMD = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{k}(E_{\exp}(i) - E_{simu}(i))^2}{k}} \quad \textbf{(4. 2)}$$

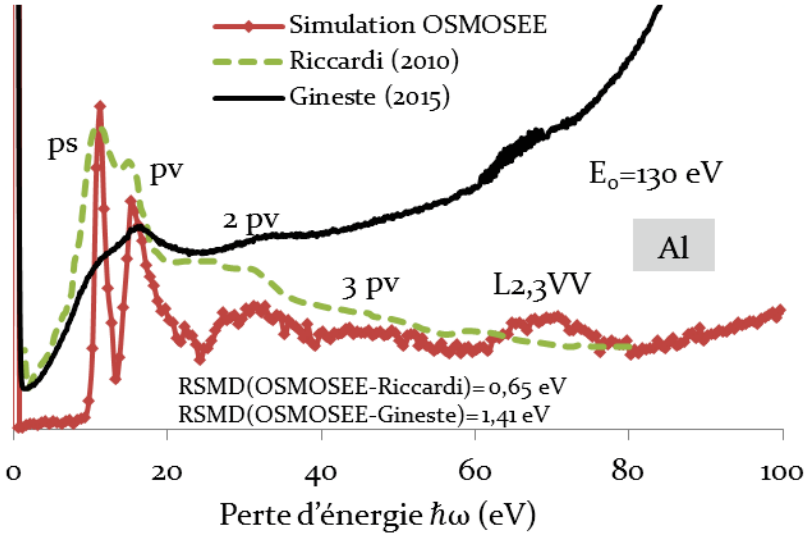
4.2.1. CONTRIBUTION DES ÉLECTRONS RÉTRODIFFUSÉS

La FIGURE 4.4 présente les spectres en perte d'énergie $\hbar\omega$ des électrons rétrodiffusés de l'aluminium pour des énergies d'incidence de (a) $\mathrm{E_0 = 1989\ eV}$ et (b)$\mathrm{E_0 = 130\ eV}$. Nous pouvons retrouver les pics associés aux interactions avec les plasmons de surface (notés ps) à $\hbar\omega = 10{,}6\ \mathrm{eV}$, et les pics associés aux interactions avec les plasmons de volume (notés pv) et à leur n multiples à $\hbar\omega = \mathrm{n} \times 14{,}8\ \mathrm{eV}$ avec $n = \{1, 2, 3\}$. Pour le spectre d'énergie $\mathrm{E_0 = 130\ eV}$, nous pouvons également observer un épaulement à 70 eV qui correspond à la transition Auger L2,3VV **[GIN15, ZHU98]**.

Pour une énergie d'incidence de $\mathrm{E_0 = 1989\ eV}$, les simulations du code OSMOSEE et les mesures de DEESSE **[GIN15]** sont comparées aux mesures expérimentales de Paparazzo **[PAP01]**. L'angle d'incidence est de 45° pour les mesures de Paparazzo **[PAP01]** alors qu'il est de 57° pour les mesures expérimentales de Gineste **[GIN15]**. Pour ne pas surcharger la figure, nous avons choisi un angle de 45°, similaire à celui de Paparazzo **[PAP01]**, pour nos simulations avec le code OSMOSEE. Sur les trois spectres, les pics associés aux multiples des plasmons de volume sont bien définis. La déviation moyenne entre les pics est de 1,04 eV entre nos simulations et les mesures de Paparazzo **[PAP01]** et de 1,47 eV entre nos simulations et les mesures de Gineste **[GIN15]**. Toutefois, nous pouvons constater que le pic associé au plasmon de surface est surestimé dans les simulations du code OSMOSEE. Ce résultat, prévisible d'après la théorie que nous avons décrite dans le chapitre 3, se retrouve sur le spectre d'énergie d'incidence $\mathrm{E_0 = 130\ eV}$, et apparaît également dans les simulations Monte-Carlo de Dapor et coll. **[DAP12]**.



(a)



(b)

FIGURE 4.4. Spectre de perte d'énergie pour les électrons rétrodiffusés dans l'aluminium à (a) $E_0 = 1989$ eV et (b) $E_0 = 130$ eV. Les courbes en noir sont les mesures de Gineste [GIN15] avec le dispositif DEESSE. La précision en énergie est de 0,1 eV et l'angle d'incidence entre l'échantillon et le canon à électrons est de 57°. Les spectres en rouge sont les simulations Monte-Carlo du code OSMOSEE, réalisés avec une précision en énergie de 0,5 eV. L'angle d'incidence est de (a) 45° et de (b) 57°. Les spectres en pointillés sont respectivement (a) les mesures expérimentales de Paparazzo [PAP01] pour une énergie d'incidence $E_0 = 2$ keV et un angle d'incidence de 45°, et (b) les mesures expérimentales de Riccardi et coll. [RIC10] pour une énergie $E_0 = 130$ eV et un angle d'incidence de 30°.

Evaluer la contribution relative du plasmon de surface et du plasmon de volume sur un spectre en énergie est très délicat car celle-ci dépend de plusieurs paramètres.

Premièrement, lorsqu'on augmente l'énergie d'incidence, les électrons pénètrent plus profondément dans le solide. En conséquence, la contribution du plasmon de volume augmente et la contribution du plasmon de surface diminue. Ce comportement est en bon accord avec les mesures de Paparazzo **[PAP01]** et de Tougaard et coll. **[TOU87]** sur de l'aluminium évaporé sous ultravide.

Deuxièmement, lorsqu'on augmente l'angle d'incidence θ, les électrons restent plus près de la surface, ce qui entraîne une augmentation de la contribution du plasmon de surface. Or, nous avons vu auparavant que plus l'angle d'incidence est rasant, plus les effets de la surface (oxydation, contamination, rugosité) vont avoir une influence sur les spectres en énergie (diminution de l'amplitude, étalement des pics).

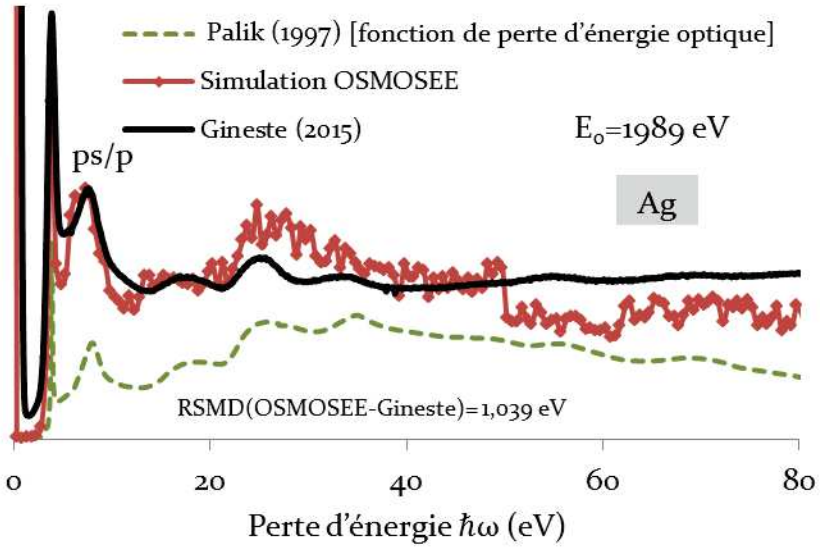
Troisièmement, pour les mesures expérimentales, la contribution relative des plasmons de surface et de volume dépend fortement du montage expérimental, comme nous l'avons mentionné dans la section 4.1.1.1.

Pour finir, dans les simulations, la contribution relative du plasmon de surface et du plasmon de volume dépend fortement des modèles utilisés pour décrire ces interactions. Si le modèle relativement simple que j'ai utilisé dans le code OSMOSEE permet de décrire relativement bien la forme des sections efficaces différentielles **[YUB92]**, comme nous avons pu le voir dans la section 3.2.4.3. du chapitre 3, des modèles plus précis peuvent être implémentés dans ce code pour décrire la forme des spectres en énergie **[CHE96, KWE98, DAP08, DAP12, WER06]**.

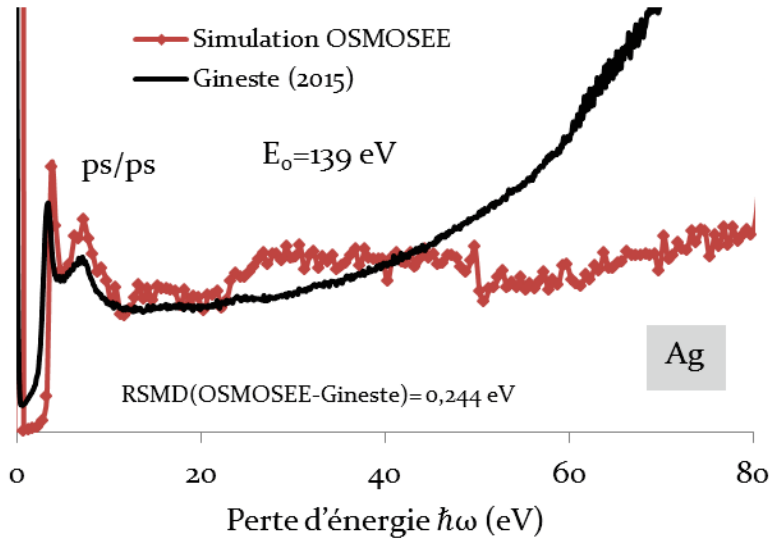
Pour une énergie d'incidence de $E_0 = 130\ eV$, nous pouvons comparer les mesures du dispositif DEESSE **[GIN15]** et les simulations OSMOSEE avec les mesures expérimentales de Riccardi et coll. **[RIC10]** sur des échantillons décapés par argon sous ultravide. L'angle d'incidence est de 30° pour les mesures de Riccardi et coll. **[RIC10]** et de 57° pour les simulations du code OSMOSEE et les mesures expérimentales de Gineste **[GIN15]**. Les simulations du code OSMOSEE ayant montré que, pour les faibles énergies d'incidence, il n'y a pas beaucoup de différence entre ces deux angles d'incidence, nous avons choisi d'utiliser un angle de 57° pour les comparaisons. La FIGURE 4.4b montre que l'accord entre les simulations OSMOSEE et les données de Riccardi et coll. **[RIC10]** est plutôt bon — la déviation moyenne entre les pics étant de 0,65 eV. Pour ces deux spectres, nous pouvons remarquer que le pic associé au plasmon de surface a également une amplitude plus élevée que le pic associé au

plasmon de volume. Pour les mesures expérimentales de Gineste **[GIN15]**, les deux pics sont fortement atténués.

La FIGURE 4.5 présente le spectre en perte d'énergie des électrons rétrodiffusés de l'argent pour une énergie d'incidence de (a) $E_0 = 1989$ eV et (b) $E_0 = 139$ eV.



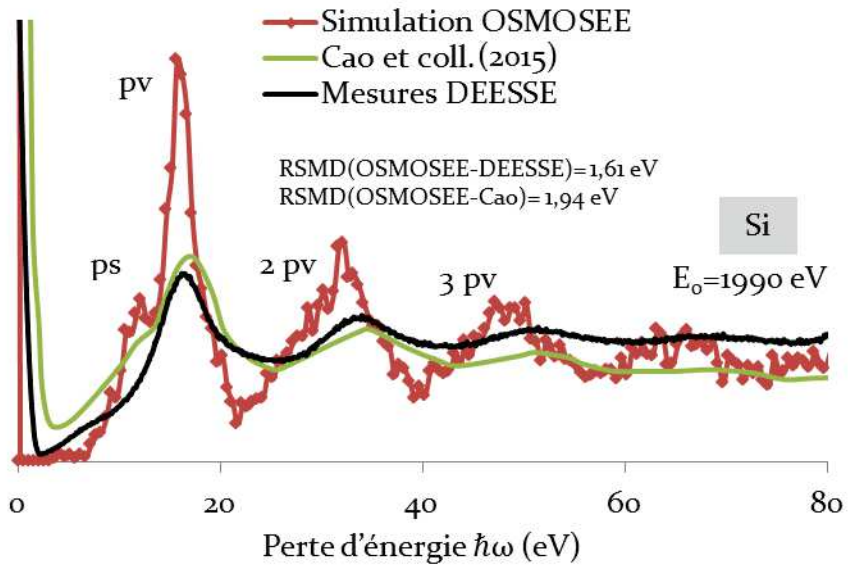
(a)



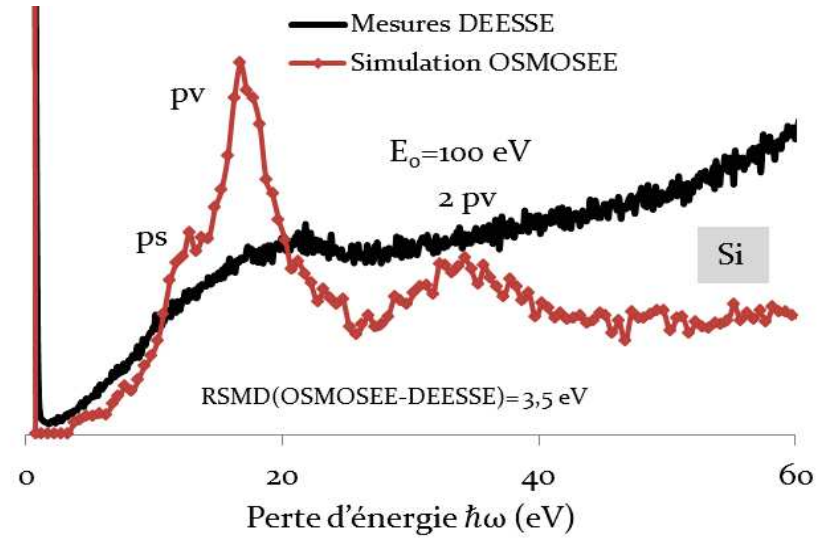
(b)

FIGURE 4.5. Spectre en perte d'énergie pour les électrons rétrodiffusés dans l'argent à (a) $E_0 = 1989$ eV et (b) $E_0 = 130$ eV. Les lignes en noir sont les mesures expérimentales de Gineste [GIN15] réalisées avec le dispositif DEESSE avec une précision de 0,1 eV et un angle d'incidence de 57°. Les spectres en rouge sont les simulations Monte-Carlo du code OSMOSEE avec un pas en énergie de 0,5 eV et un angle de 57°. Dans (a) la courbe en pointillés verte est la fonction de perte d'énergie optique de l'argent issue du handbook de Palik [PALI97].

La FIGURE 4.5FIGURE 4.6 présente le spectre en en perte d'énergie des électrons rétrodiffusés du silicium pour (a) $E_0 = 1990$ eV et (b) $E_0 = 100$ eV.



(a)



(b)

FIGURE 4.6. Spectre de perte d'énergie pour les électrons rétrodiffusés du silicium à (a) $E_0 = 1990$ eV et à (b) $E_0 = 100$ eV. La ligne en noir designe les mesures expérimentales de DEESSE avec une résolution de 0,1 eV. Les spectres en rouge sont les simulations du code OSMOSEE avec un pas en énergie de 0,5 eV et un angle d'incidence de (a) 57° pour $E_0 = 1990$ eV et de (b) 22° pour $E_0 = 100$ eV. Dans (a) la ligne verte est le spectre expérimental de Cao et coll. [CAO15] pour une énergie incidente de $E_0 = 1000$ eV et un angle d'incidence de 0°.

A ces énergies, pour l'argent, nous retrouvons le pic à $\hbar\omega = 3{,}8\ \mathrm{eV}$ associé à la fois au plasmon de volume à $\hbar\omega = 3{,}78\ \mathrm{eV}$ et au plasmon de surface à $\hbar\omega = 3{,}7\ \mathrm{eV}$ **[WEN08]**. Ces pics étant très proches, ils ne sont, en général, pas bien résolus par l'analyseur **[WEN08]**. Nous retrouvons également le pic à $\hbar\omega = 8\ \mathrm{eV}$, associé à un plasmon de volume. Les spectres issus des simulations du code OSMOSEE et des mesures du dispositif DEESSE sont en bon accord, à l'exception du fait que le spectre à $E_0 = 1989\ \mathrm{eV}$ issu du dispositif DEESSE présente des pics supplémentaires à $\hbar\omega = 17{,}5\ \mathrm{eV}$; $25{,}4\ \mathrm{eV}$; et $33\ \mathrm{eV}$. Ces pics, que l'on retrouve sur la fonction de perte d'énergie optique (issue des mesures de la base de données de Palik **[PALI97]** en vert sur la FIGURE 4.5a) et que nous avons associés à des plasmons de volume ou des transitions interbandes dans le chapitre 3, sont moins bien résolus sur le spectre expérimental pour $E_0 = 139\ \mathrm{eV}$, et ainsi que sur les simulations du code OSMOSEE, à l'exception du premier pic.

Sur la FIGURE 4.6, de manière similaire à l'aluminium, nous retrouvons pour le silicium les pics associés aux interactions avec les plasmons de surface à $\hbar\omega = 11{,}6\ \mathrm{eV}$, et les pics associés aux interactions avec les plasmons de volume et à leur n multiples à $\hbar\omega = \mathrm{n} \times 16{,}8\ \mathrm{eV}$ avec $n = \{1, 2, 3\}$. A l'exception du spectre issu du dispositif DEESSE à $\mathrm{E}_0 = 100\ \mathrm{eV}$, les pics correspondant au plasmon de volume et à ses multiples apparaissent clairement. Les pics associés au plasmon de surface n'apparaissent pas sur les mesures expérimentales du dispositif DEESSE. Pour le spectre à $\mathrm{E}_0 = 1990\ \mathrm{eV}$, une comparaison est donnée avec les mesures de Cao et coll. **[CAO15]** pour $\mathrm{E}_0 = 1000\ \mathrm{eV}$ et un angle d'incidence de 0°. Ce spectre ne présente pas non plus de plasmon de surface bien défini, ce qui est également en accord avec les mesures de Calliari et coll. **[CAL14]** et Daport et coll. **[DAP12]** sur du silicium.

Nous pouvons conclure de ces premiers résultats que pour l'aluminium, l'argent et le silicium, que les simulations du code OSMOSEE sont en relativement bon accord avec les mesures expérimentales du dispositif DEESSE et celles de la littérature. Nous retrouvons sur la plupart des spectres, les pics associés aux interactions avec les plasmons de surface, avec les plasmons de volume, les multiples du plasmon de volume ainsi que les transitions Auger. L'accord est meilleur pour les hautes énergies d'incidence. Pour les basses énergies, nous expliquons les écarts par le fait que nous utilisons un modèle simple pour décrire les plasmons de surface et, à moindre effet, à cause d'une légère oxydation de la surface de l'échantillon, qui pour les matériaux facilement oxydables comme l'aluminium ou le silicium peut se produire même après

décapage sous ultravide. En outre, les simulations du code OSMOSEE ne prennent pas en compte la fonction de transmission de l'analyseur qui varie en fonction de l'énergie des électrons incidents (pas de convolution des pics).

4.2.2. CONTRIBUTION DES ÉLECTRONS SECONDAIRES

A plus basse énergie, nous pouvons nous intéresser aux pics associés aux électrons Auger. Ces pics sont couramment utilisés par les expérimentateurs pour identifier la composition de la surface des matériaux. Le TABLEAU 4.1 donne les énergies des pics associés à la transitions Auger L2,3VV de l'aluminium. Nous pouvons voir que, pour le premier pic, l'oxydation entraîne un décalage en énergie de $E = 64{,}3\ eV$ à $E = 50{,}4\ eV$ **[ZHU98]**. Nous nous attendons donc à observer un léger décalage entre les mesures du dispositif DEESSE et les simulations du code OSMOSEE.

TABLEAU 4.1. Énergie des pics associés à la transition Auger L2,3VV de l'aluminium. Le deuxième pic correspond aux électrons qui s'échappent après avoir réalisé une interaction avec un plasmon de volume (pv).

	Simulations OSMOSEE	**Gineste [GIN15]**	**Zhu et coll. [ZHU98]**	
			Aluminium décapé	**Aluminium oxydé**
L2,3VV	$60 \pm 2\ eV$	$61\ eV$	$64{,}3\ eV$	$50{,}4\ eV$
L2,3VV-pv	$42 \pm 2\ eV$			

Nous avons poussé l'analyse un peu plus loin et nous sommes également intéressés au spectre d'émission Auger. Cela permet de valider plus finement une partie plus étroite des modèles implémentés dans le code, en l'occurrence la cascade Auger. La FIGURE 4.7 représente le spectre en énergie des électrons Auger pour la transition L2,3VV du silicium. Nous pouvons voir que nous obtenons un relativement bon accord entre les simulations du code OSMOSEE, les mesures du dispositif DEESSE, les simulations Monte-Carlo et les mesures expérimentales de Cao et coll. **[CAO15]**. La déviation moyenne maximale entre les mesures est d'environ 2 eV, ce qui est bien

inférieure à la déviation due à l'oxydation de la surface présentée dans le TABLEAU 4.1 pour l'aluminium.

Sur les simulations du code OSMOSEE, la transition L2,3VV correspond à deux pics. Le pic à 88 eV est davantage marqué que le pic à 68 eV qui correspond aux électrons issus de la transition L2,3VV mais ayant réalisé une interaction avec les plasmons de volume avant de s'échapper du matériau. Ce résultat est cohérent avec les simulations de Cao et coll. **[CAO15]**.

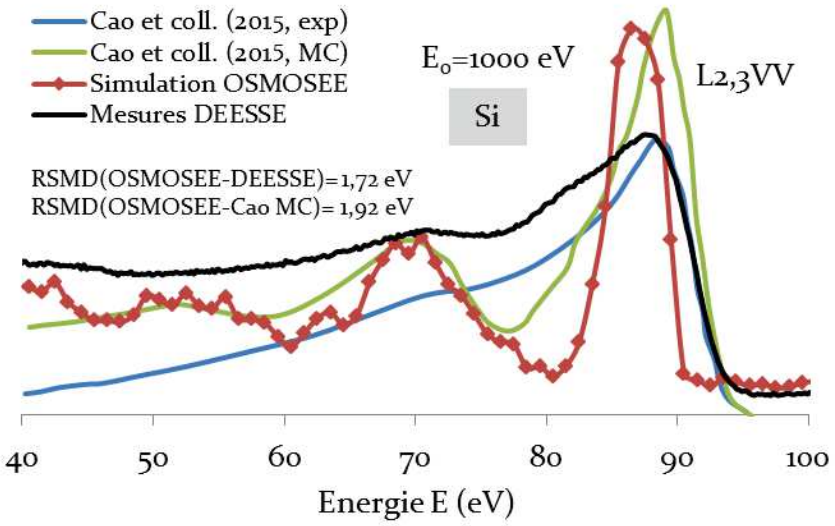


FIGURE 4.7. Spectre en énergie des électrons dans le silicium pour une énergie incidente $E_0 = 1000$ eV. Les traits pleins correspondent aux simulations Monte-Carlo et aux mesures experimentales de Cao et coll. [CAO15]. La ligne pointillée représente les simulations du code OSMOSEE avec une précision de 1 eV.

A très basse énergie, nous pouvons nous intéresser à la contribution des électrons secondaires. La FIGURE 4.8 montre cette contribution pour les électrons dans l'aluminium pour une énergie d'incidence de $E_0 = 500$ eV. Les simulations du code OSMOSEE montrent un épaulement vers 10 eV qui correspond au plasmon de volume. D'après Roupie **[ROU13]**, il existe un autre épaulement à 7 eV (moins visible sur nos simulations) qui correspond au plasmon de surface. Nous pouvons remarquer que les simulations du code OSMOSEE ont une distribution plus large que les mesures du dispositif DEESSE. Ce résultat est cohérent avec les simulations de Mao et coll.

[MAO08] pour des électrons de $E_0 = 600\ eV$. L'écart entre les simulations et les mesures expérimentales est probablement dû à une légère oxydation de la surface de l'échantillon, ce qui d'après les travaux de Pillon et coll. **[PIL76]** a tendance à réduire la largeur de la distribution des électrons secondaires et à décaler le maximum du pic des secondaires vers les plus basses énergies. Nous trouvons un résultat similaire pour les électrons de $E_0 = 139\ eV$ pour l'argent et pour les électrons de $E_0 = 100\ eV$ pour le silicium.

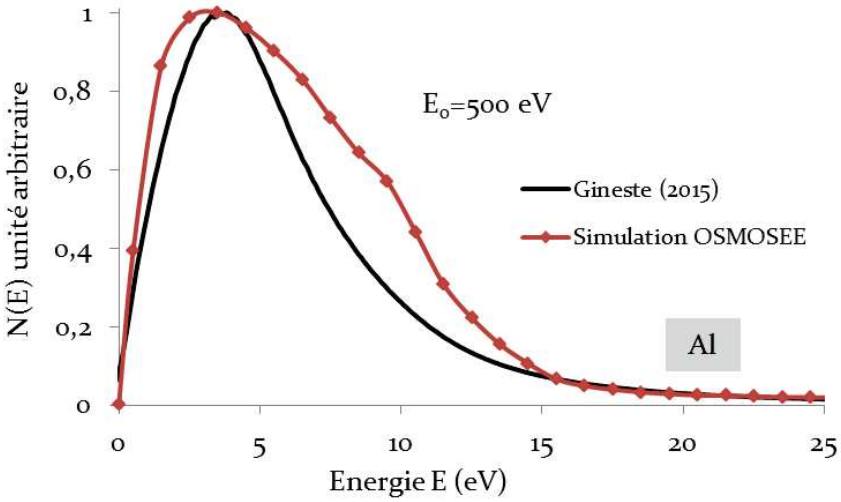


FIGURE 4.8. Spectre en énergie pour les électrons secondaires de l'aluminium pour une énergie incidente de $E_0 = 500\ eV$. Le spectre en noir correspond aux mesures experimentales du dispositif DEESSE avec une résolution de 0,1 eV et un angle d'incidence de 22,5°. Le spectre en rouge correspond aux simulations du code OSMOSEE avec une précision en énergie de 1 eV et un angle d'incidence de 22,5°. Les spectres sont normés par rapport au maximum de la distribution.

Ces résultats sont en accord avec ceux de la section précédente. L'étude du spectre des électrons Auger du silicium, nous montre que pour les hautes énergies incidentes, notre modélisation est cohérente avec les mesures expérimentales. L'étude de la contribution des électrons secondaires de basse énergie sur les spectres en énergie tend à montrer que l'écart entre nos simulations et les mesures expérimentales de DEESSE à basse énergie est dû à une légère oxydation de la surface de l'échantillon pour l'aluminium et le silicium.

4.3. COMPARAISON DES RENDEMENTS D'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE

Afin de valider les simulations du code OSMOSEE, j'ai réalisé des comparaisons avec les rendements du dispositif DEESSE **[GIN15]** et les données de la littérature, en particulier avec les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** sur des couches minces évaporées *in situ* sous vide, qui sont reconnues comme les données les plus fiables de la littérature.

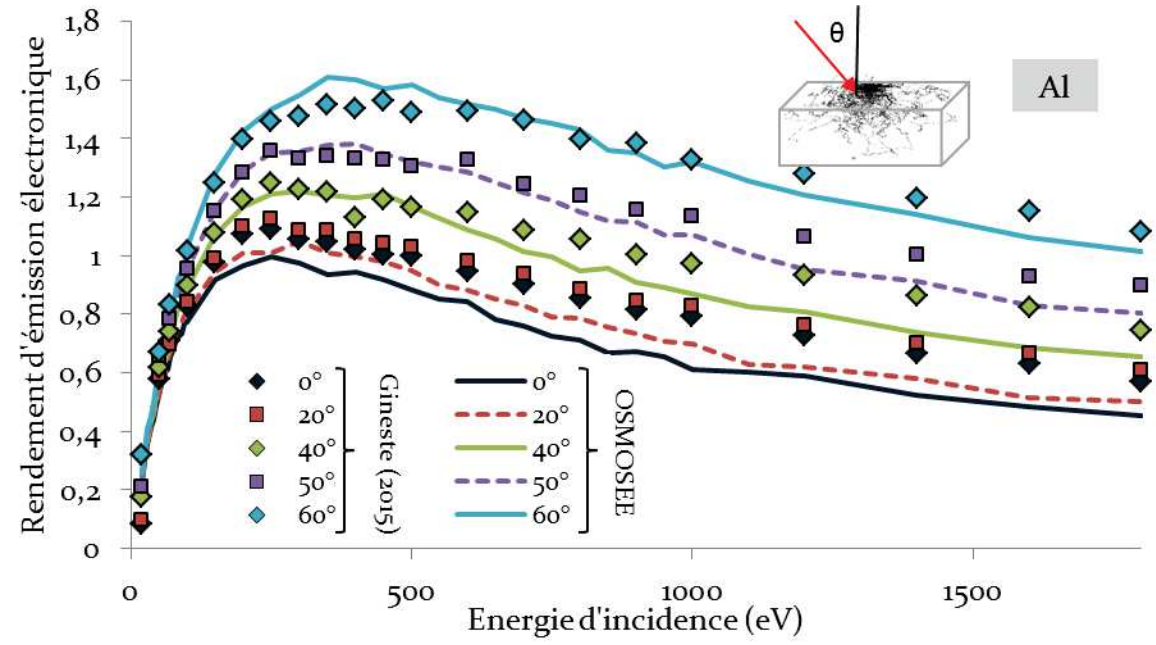
4.3.1. RENDEMENTS TOTAUX ET ANGLE D'INCIDENCE

La FIGURE 4.9 présente le rendement d'émission électronique de l'aluminium pour différents angles d'incidence θ=0, 20, 40, 50 et 60°. Nous pouvons constater que les simulations du code OSMOSEE sont en très bon accord avec les mesures expérimentales du dispositif DEESSE **[GIN15]**. A l'exception du premier point, l'écart entre les rendements est inférieur à 10 %. Les simulations du code OSMOSEE permettent de retrouver l'allure générale de la courbe du rendement d'émission électronique lorsque l'angle d'incidence θ augmente. Pour un angle d'incidence élevé, les simulations tendent à légèrement surestimer le rendement d'émission électronique. Ce résultat peut s'expliquer par le modèle utilisé pour le plasmon de surface qui est relativement simple.

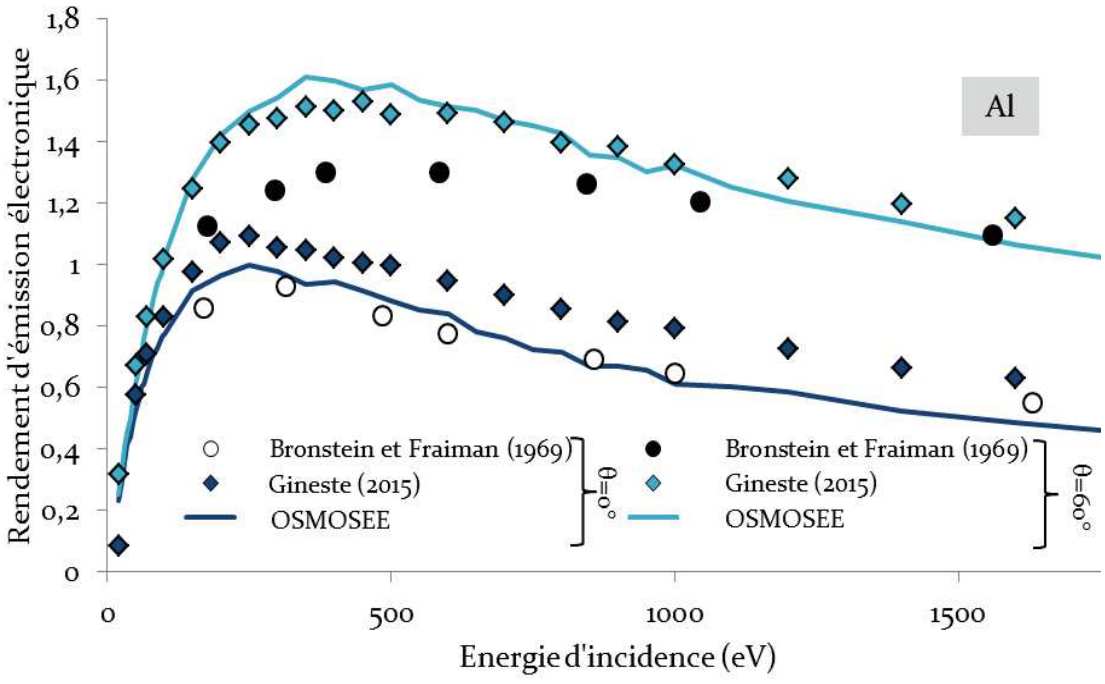
La comparaison avec les données de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** montre que les différences entre les mesures du dispositif DEESSE **[GIN15]** et les simulations du code OSMOSEE sont du même ordre de grandeur que les différences entre les deux jeux de mesures expérimentales.

A des fins de clarté, les écarts relatifs entre les simulations et les données expérimentales sont reportées sur la FIGURE 4.10. Nous pouvons voir qu'entre 200 et 800 eV, la différence maximale entre les trois jeux de données est inférieure à 20 %.

Les écarts entre les mesures du dispositif DEESSE **[GIN15]** et les données de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** sont du même ordre de grandeur que les écarts entre les simulations du code OSMOSEE et les mesures du dispositif DEESSE.



(a)



(b)

FIGURE 4.9. (a) et (b) rendement d'émission électronique entre 10 eV et 2 keV pour l'aluminium pour différents angles d'incidence. Les losanges désignent les mesures expérimentales du dispositif DEESSE [GIN15]. Les lignes (pleines et pointillées) correspondent aux simulations du code OSMOSEE. Dans (b) les cercles désignent les mesures expérimentales de Bronstein et Fraiman [BRO69]. Les incertitudes sur les données expérimentales (<10 %) et sur les simulations (3%) sont très faibles.

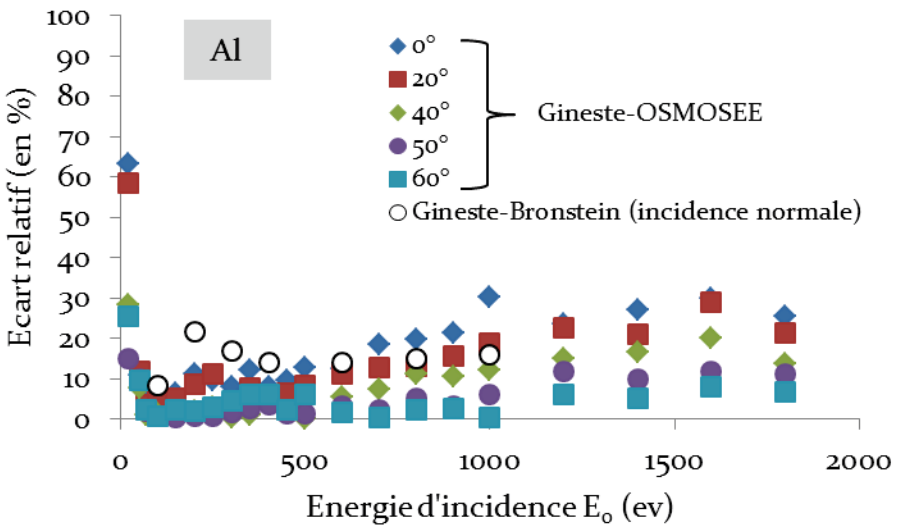


FIGURE 4.10. Écarts relatifs en fonction de l'énergie d'incidence des rendements d'émission électroniques présentés sur la FIGURE 4.9.

Dans le chapitre 1, nous avons remarqué que les écarts entre les jeux de données expérimentaux pouvaient être dus à l'état de la surface des échantillons. Les travaux de Gineste **[GIN15]** ont, en effet, montré que les échantillons d'aluminium exposés à l'air sont décrits par un rendement d'émission électronique plus élevé et une pente croissante davantage marquée à basse énergie.

L'oxydation de la surface d'un matériau correspond à une diminution de l'énergie minimale (travail de sortie ou l'affinité électronique) que doit avoir un électron pour s'échapper de ce matériau. Il en résulte que l'oxydation entraîne une diminution de la barrière de potentiel de la surface et donc une augmentation du rendement d'émission électronique **[NIS94]**. C'est ce que nous pouvons voir avec le TABLEAU 4.2 qui présente le maximum des rendements d'émission électronique de quelques matériaux et de leur oxyde.

Afin de vérifier cette hypothèse, la FIGURE 4.11 représente des simulations de rendement d'émission électronique du code OSMOSEE pour l'aluminium en prenant en compte différentes valeurs de la barrière de potentiel de la surface. Si l'implémentation d'une barrière de potentiel plus faible augmente bien le rendement d'émission électronique, nous pouvons toutefois observer que d'autres phénomènes entrent en jeu, puisque même avec un travail de sortie de 3,66 eV pour l'aluminium, nous ne sommes loin de retrouver les rendements mesurés expérimentalement pour

l'alumine. Dans le chapitre 3, nous avons vu qu'à basse énergie, dans le dioxyde de silicium, l'interaction inélastique la plus probable était l'absorption d'un phonon LO. De manière générale, les phonons vont jouer un rôle prépondérant dans le transport des électrons de basse énergie dans les oxydes.

TABLEAU 4.2. Maximum du rendement d'émission pour les électrons secondaires, travail de sortie et affinité électronique de quelques métaux et semi-conducteurs. Les rendements proviennent de la base de données de Joy [JOY08]. Le troisième chiffre ne peut pas être considéré comme significatif.

Métal/semi-conducteur	Maximum du rendement d'émission pour les secondaires	Travail de sortie/affinité électronique (eV)	Oxyde associé	Maximum du rendement d'émission pour les secondaires	Affinité électronique (eV)
Si	0,748 **[BRO69]**	4,05	**SiO_2**	1,35 **[JOY08]**	0,9
Al	0,642 **[BRO69]**	4,25	**Al_2O_3**	6,23 **[JOY08]**	3,66
Cu	1,034 **[BRO69]**	4,7	**Cu_2O**	1,23 **[JOY08]**	3,2

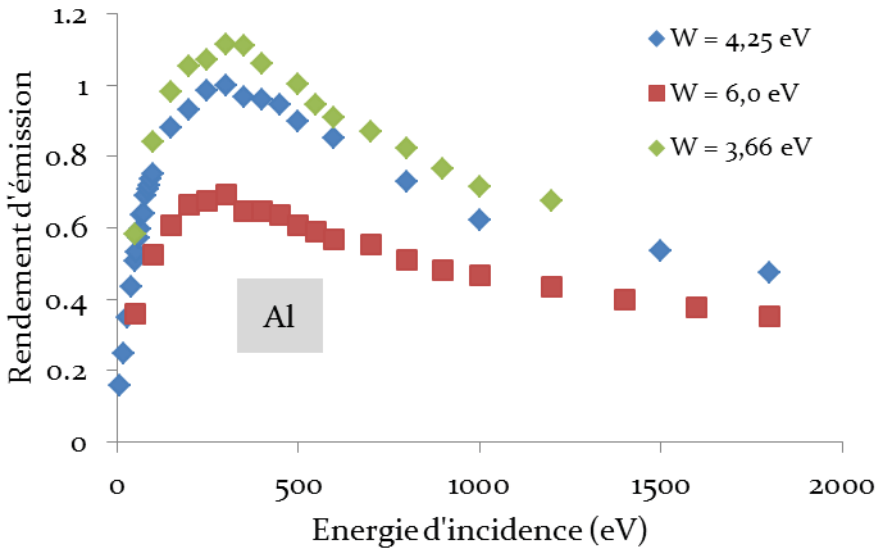


FIGURE 4.11. Rendements d'émission électronique de l'aluminium issus des simulations du code OSMOSEE pour différentes valeurs de la barrière de potentiel de la surface. La valeur W=3,66 eV est équivalente a l'affinité électronique de l'alumine Al_2O_3.

La FIGURE 4.12 présente les rendements d'émission électronique de l'argent pour différents angles d'incidence.

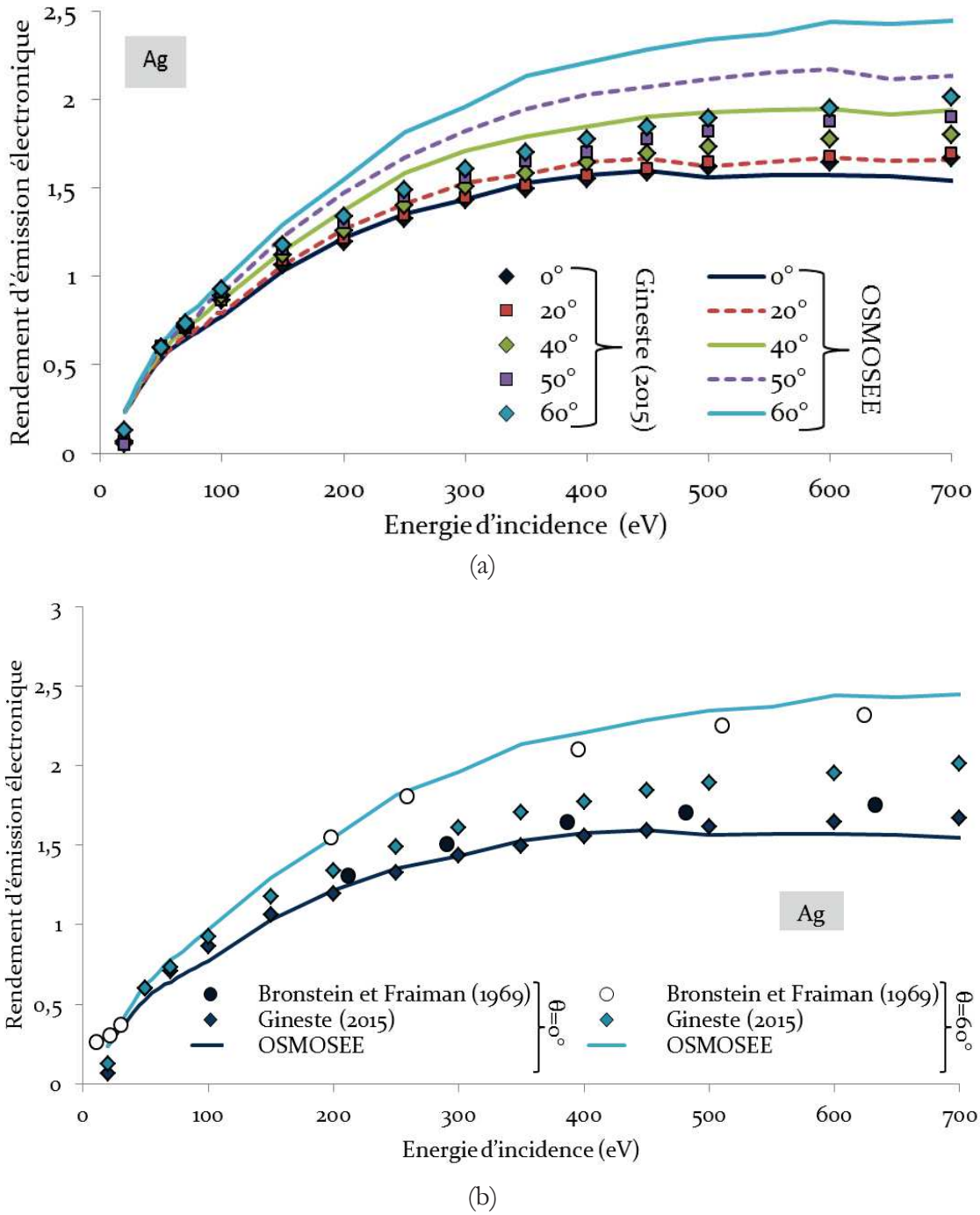


FIGURE 4.12. (a) et (b) Rendement d'émission électronique de l'argent pour différents angles d'incidence. Les losanges correspondent aux mesures du dispositif DEESSE [GIN15]. Les lignes (pleines et pointillées) désignent les simulations du code OSMOSEE. Dans (b) les cercles correspondent aux mesures de Bronstein et Fraiman [BRO69].

Nous pouvons observer que les simulations du code OSMOSEE reproduisent plutôt bien l'allure générale de la courbe du rendement donnée par les mesures du dispositif DEESSE **[GIN15]**. Pour un angle d'incidence θ=0°, l'écart entre les mesures et les simulations est d'environ 13 % à $E_0 = 1$ keV. Dans les simulations de la FIGURE 4.12, seules les transitions les plus probables de la cascade Auger sont prises en compte, ce qui contribue à sous-estimer la production d'électrons secondaires. Lorsqu'on augmente l'angle d'incidence, à partir d'un angle d'incidence de 40°, les simulations du code OSMOSEE surestiment de plus en plus les rendements d'émission mesurés avec le dispositif DEESSE. L'écart atteint 20 % pour un angle d'incidence de θ=60° à 700 eV. Cependant, nous observons un bon accord à la fois pour θ=0° et θ=60° entre les simulations du code OSMOSEE et les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]**.

Les écarts relatifs entre les jeux de données de la FIGURE 4.12 sont reportés sur la FIGURE 4.13. Nous pouvons voir que la différence entre les mesures du dispositif DEESSE et les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** en dessous de 700 eV est inférieure à 6 % pour θ=0° et à 16 % pour θ=60°.

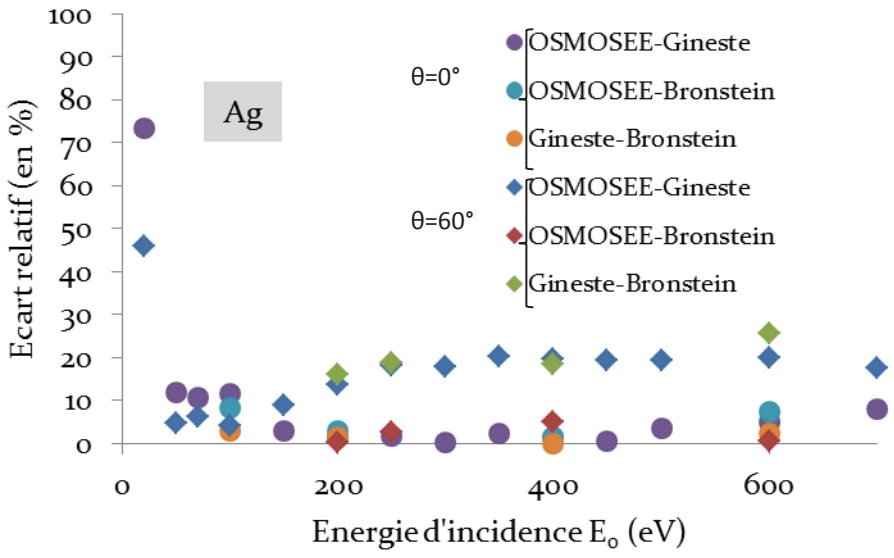


FIGURE 4.13. Écarts relatifs des rendements d'émission électronique présentés sur la FIGURE 4.12.

L'écart entre ces données peut principalement s'expliquer par les effets de rugosité qui se sont produits lors du décapage ionique. Les travaux de Gineste **[GIN15]**

sur les échantillons ont montré que, dans notre cas, l'échantillon d'argent est très faiblement oxydé mais que l'étape de décapage ionique a une forte influence sur sa surface. La rugosité peut, dans certains cas, entraîner une diminution du rendement d'émission électronique à cause de l'effet de recollection **[NIS94]**. Ce point est décrit plus en détail dans le chapitre 5. L'effet de la rugosité augmente avec l'angle d'incidence, ce qui explique l'écart plus important pour θ=60°. En prenant en compte ces considérations, nous pouvons considérer que les simulations du code OSMOSEE sont en plutôt bon accord avec les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]**.

La FIGURE 4.14 représente le rendement d'émission des électrons dans le silicium. Nous pouvons voir que les simulations du code OSMOSEE sont en bon accord avec les mesures expérimentales de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** et les simulations Monte-Carlo de Kuhr et Fitting **[KUH99]**. Cependant, nous observons un écart d'environ 20 % (13 % sans les trois premiers points) entre les simulations du code OSMOSEE et les mesures du dispositif DEESSE, qui est probablement dû à une légère oxydation de la surface de l'échantillon. Les écarts des données de la FIGURE 4.14 sont reportés sur la FIGURE 4.15.

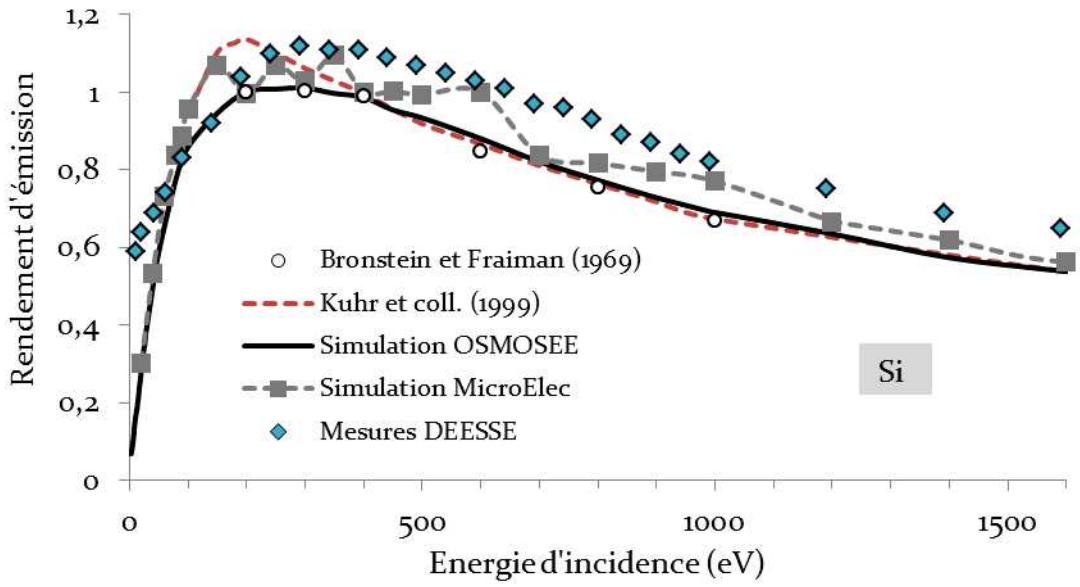


FIGURE 4.14. Rendement d'émission des électrons à incidence normale dans le silicium. Les lignes correspondent aux simulations du code OSMOSEE et de Kuhr et coll. [KUH99]. Les cercles sont les mesures expérimentales de Bronstein et Fraiman [BRO69] et les losanges représentent les mesures du dispositif DEESSE.

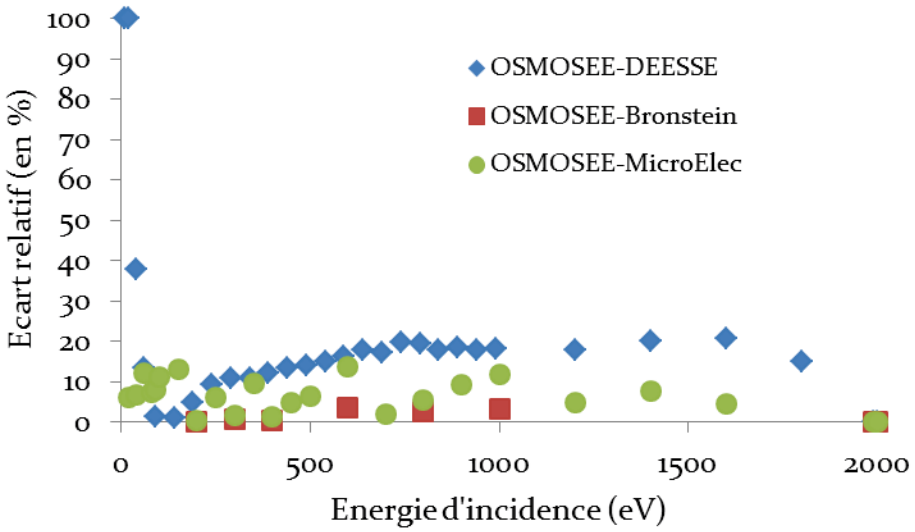


FIGURE 4.15. Écarts relatifs des rendements d'émission électroniques présentés sur la FIGURE 4.14. Pour les premiers points, les écarts entre les simulations du code OSMOSEE et les mesures du dispositif DEESSE sont de 270 % pour 11 eV et de 125 % pour 21 eV.

La FIGURE 4.14 montre également les simulations issues du module MicroElec pour le silicium. Le code MicroElec étant beaucoup plus coûteux en temps de calcul que le code OSMOSEE, nous avons utilisé un nombre d'électrons incidents environ dix fois plus faible (1000 électrons) pour ces simulations. L'utilisation d'une faible statistique entraîne l'apparition de fluctuations sur rendement d'émission électronique. Néanmoins, nous pouvons voir sur la FIGURE 4.15 que le rendement d'émission issus des simulations du module MicroElec reste en bon accord avec celui du code OSMOSEE.

4.3.2. ÉLECTRONS RÉTRODIFFUSÉS ET SECONDAIRES

Afin de poursuivre la validation des simulations du code OSMOSEE, nous pouvons nous intéresser à la contribution des électrons rétrodiffusés et à la contribution des électrons secondaires dans les rendements d'émission électronique que nous venons de déterminer. Dans la suite de cette section, nous notons η le rendement d'émission des électrons rétrodiffusés, et δ le rendement d'émission des électrons secondaires.

La FIGURE 4.16 présente cette séparation dans le cas de l'aluminium pour une incidence normale. Comme nous l'avons décrit dans la section 4.1.1.2, les rendements d'émission peuvent être calculés numériquement selon deux méthodes. La première méthode est analogue à la méthode de discrimination expérimentale et considère que les électrons avec une énergie supérieure à 50 eV sont des électrons rétrodiffusés, et qu'à l'inverse les électrons avec une énergie inférieure à 50 eV sont des électrons secondaires (courbe en trait plein sur la FIGURE 4.16). La deuxième méthode, illustrée par le trait en pointillés sur la FIGURE 4.16, correspond selon notre dénomination (section 4.1.1.2) aux électrons « rétrodiffusés vrais » et aux électrons « secondaires vrais » que l'on est capable de séparer avec précision numériquement.

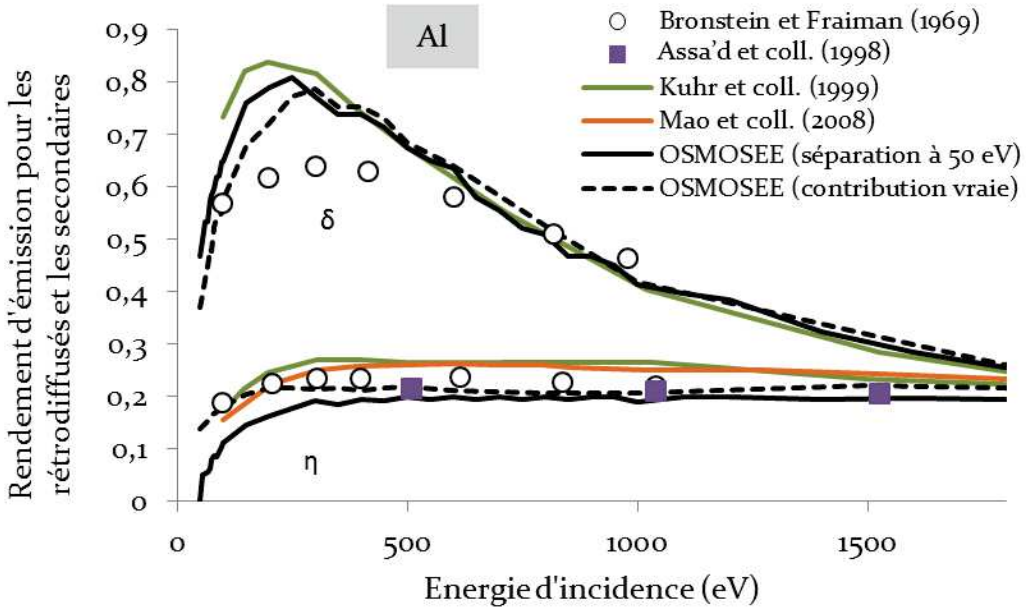


FIGURE 4.16. Rendement d'émission des électrons secondaires et des électrons rétrodiffusés pour l'aluminium à θ=0°. Les points sont des mesures expérimentales de Bronstein et Fraiman [BRO69], et de Assa'd et coll. [ASS98]. Les lignes pleines correspondent aux simulations Monte-Carlo de Kurh et coll. [KUH99], et de Mao et coll. [MAO08]. Les courbes en noir représentent les simulations du code OSMOSEE, dans le cas des rendements d'émission des électrons rétrodiffusés et secondaires vrais (trait pointillé), et dans le cas de la séparation usuelle des expérimentateurs (trait plein).

Nous pouvons voir que la première méthode tend à surestimer la contribution des électrons secondaires et à sous-estimer la contribution des électrons rétrodiffusés à basse énergie. Les simulations du code OSMOSEE sont en bon accord avec les

simulations Monte-Carlo de Kurh et Fitting **[KUH99]**, de Mao et coll. **[MAO08]** pour les rendements des électrons rétrodiffusés et des électrons secondaires calculés avec cette approximation. Par rapport à ces auteurs **[KUH99, MAO08]**, les simulations du code OSMOSEE sous-estiment le rendement d'émission des électrons rétrodiffusés d'environ 20 %. Par ailleurs, bien que la méthode de calcul utilisée soit réeprésentative de la méthode de discrimination utilisée expérimentalement, les simulations de Monte-Carlo surestiment le rendement d'émission des électrons secondaires par rapport aux mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]**.

La FIGURE 4.17 représente les rendements d'émission pour les électrons rétrodiffusés et les électrons secondaires de l'argent.

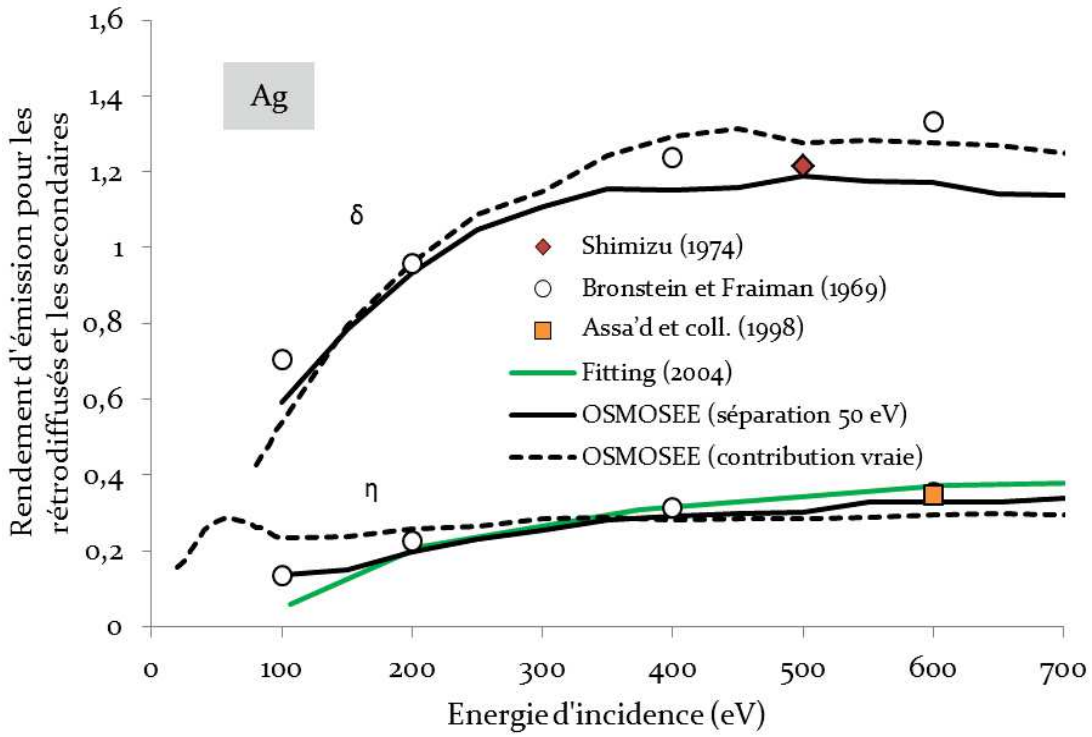


FIGURE 4.17. Rendement d'émission des électrons rétrodiffusés pour l'argent à incidence normale. Les points correspondent aux mesures de El-Gomati et coll. [ASS98], de Bronstein et Fraiman [BRO69] et de Shimizu dans la base de données de Joy [JOY08]. Les lignes pleines correspondent aux simulations Monte-Carlo avec une séparation à 50 eV pour Fitting [FIT04] et aux simulations du code OSMOSEE. La ligne pointillée correspond aux simulations OSMOSEE pour les électrons rétrodiffusés vrais.

Nous observons une bonne corrélation entre les simulations du code OSMOSEE et les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]**. De même que pour l'aluminium, la coupure en énergie utilisée par les expérimentateurs introduit un biais à basse énergie. Nous pouvons remarquer que la courbe du rendement d'émission des électrons rétrodiffusés vrais présente un épaulement vers 50 eV. Cet épaulement est aussi présent sur la contribution des électrons rétrodiffusés élastiquement de l'aluminium et du silicium.

La FIGURE 4.18 montre, en incidence normale, les rendements d'émission des électrons rétrodiffusés élastiquement de l'aluminium et de l'argent.

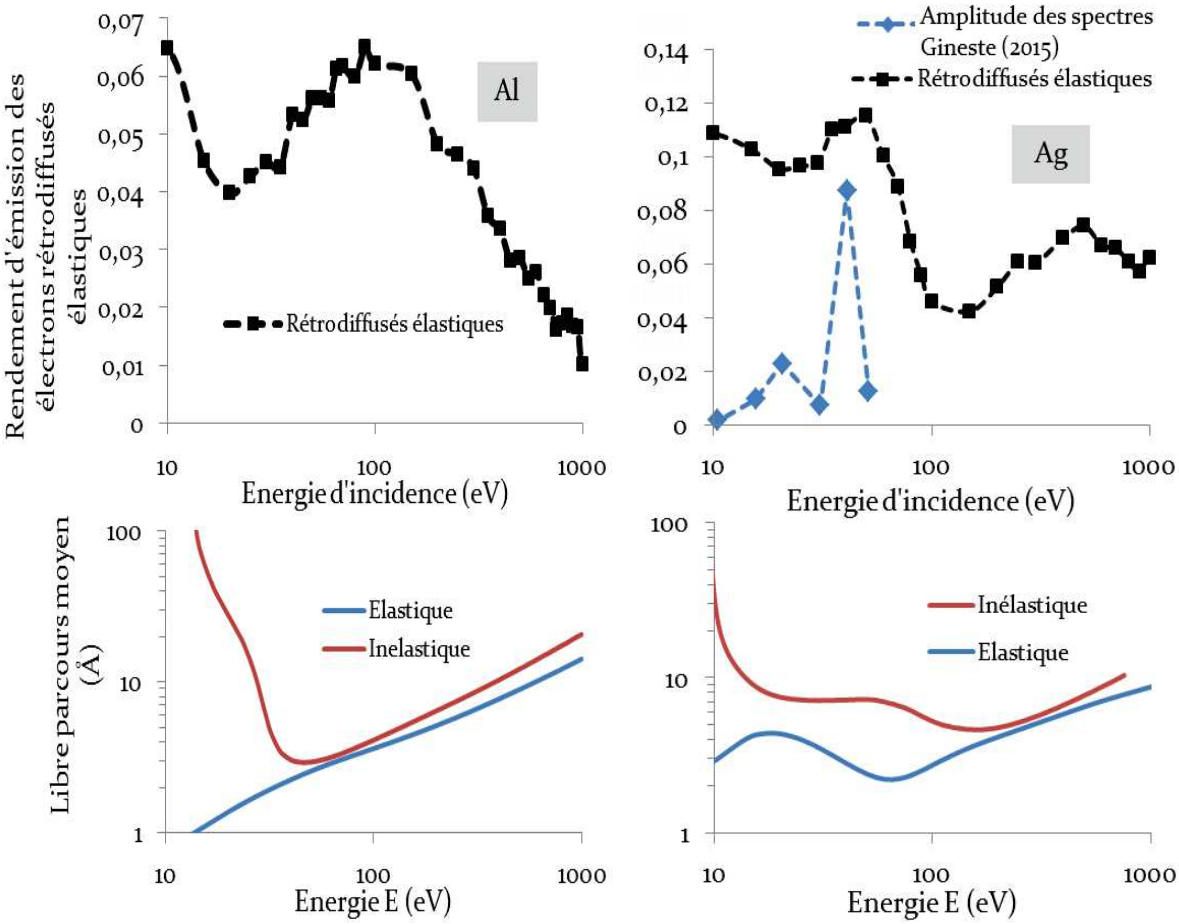


FIGURE 4.18. Rendement d'émission des électrons rétrodiffusés élastiques issus du code OSMOSEE pour l'aluminium et l'argent à incidence normale. Les libres parcours moyens élastiques et inélastiques utilisés dans le code OSMOSEE sont donnés à titre indicatif en fonction de l'énergie E totale de l'électron dans le solide. Dans les références en énergie adoptées, cette énergie est donnée par rapport au bas de la bande de conduction.

La variation de ces rendements correspond à une variation de l'amplitude du pic élastique sur les spectres en énergie. Cette variation a été observée expérimentalement pour l'argent par Gineste **[GIN15]**. A titre d'illustration, nous avons représenté de manière qualitative la variation de l'amplitude de ces pics sur la la FIGURE 4.18. Cette fluctuation sur le rendement des électrons rétrodiffusés élastiques se produit à l'énergie où le libre parcours moyen inélastique diminue et devient du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen élastique. A ce moment, le nombre d'interactions élastiques devient plus significatif. Un nombre croissant d'électrons incidents subissent à leur entrée dans la matière des interactions élastiques, qui ont la particularité de très fortement dévier les électrons incidents et donc d'en emmener une proportion croissante à ressortir du matériau. Nous avons pu observer un résultat similaire pour le silicium.

La FIGURE 4.19 montre les rendements d'émission des électrons rétrodiffusés et secondaires pour le silicium à une incidence normale. Nous pouvons constater que l'accord entre les simulations du code OSMOSEE et les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** est plutôt bon pour les deux contributions.

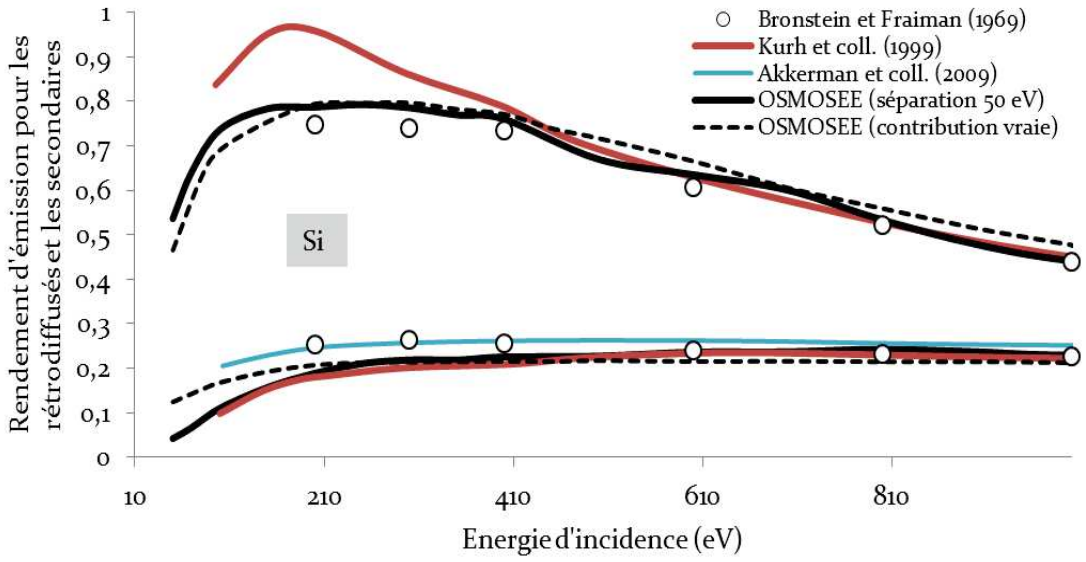


FIGURE 4.19. Rendement d'émission des électrons rétrodiffusés et secondaires dans le silicium à incidence normale. Les traits pleins sont les simulations Monte-Carlo de Kuhr et coll. [KUH99], d'Akkerman et coll. [AKK09] et du code OSMOSEE pour une séparation de 50 eV. Les lignes pointillées correspondent aux simulations OSMOSEE pour les électrons rétrodiffusés vrais. Les cercles sont les mesures expérimentales de Bronstein et Fraiman [BRO69].

Pour le rendement d'émission des électrons secondaires, les simulations du code OSMOSEE sont en meilleurs accord avec les données de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** que les simulations Monte-Carlo de Kurh et Fitting **[KUH99]**. Pour les électrons rétrodiffusés, les simulations du code OSMOSEE, les simulations Monte-Carlo de Kurh et Fitting **[KUH99]** et les simulations d'Akkerman et coll. **[AKK09]** sont du même ordre de grandeur. Ces simulations sont en bon accord dans la mesure des incertitudes.

Pour l'aluminium, l'argent et le silicium, les simulations du code OSMOSEE et du module MicroElec sont en bon accord avec les mesures expérimentales du dispositif DEESSE ainsi qu'avec les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** pour des énergies entre 50 eV et 2 keV. Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes également intéressés aux rendements d'émission des électrons à très basse énergie (< 50 eV) pour ces trois matériaux.

4.3.3. RENDEMENTS À TRÈS BASSE ÉNERGIE

La FIGURE 4.20 présente les rendements d'émission des électrons à très basse énergie dans l'aluminium, l'argent et le silicium. La séparation en énergie des expérimentateurs n'étant plus pertinente à très basse énergie, les simulations du code OSMOSEE correspondent à des rendements de rétrodiffusés et de secondaires vrais. À notre connaissance, à de telles énergies, les mesures expérimentales de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** sont les seules mesures disponibles dans la littérature pour l'aluminium, l'argent et le silicium. La FIGURE 4.20 montre que l'accord entre les simulations OSMOSEE et ces données est relativement bon à basse énergie, en particulier pour l'aluminium.

Pour l'argent, le rendement d'émission électronique des simulations OSMOSEE est du même ordre de grandeur que les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]**. Cependant, les rendements des électrons rétrodiffusés mesurés expérimentalement par ces auteurs présentent des épaulements visibles à 12 eV et à 17 eV, qui ne sont pas reproduits par les simulations. Ces variations, comparables aux oscillations des libres parcours élastiques à basse énergie, pourraient être dues aux électrons rétrodiffusés élastiquement qui ne sont pas bien pris en compte dans les simulations à très basse énergie, qui ne considèrent pas d'ordre local entre les atomes. Nous pouvons penser qu'il existe

là aussi une corrélation entre les niveaux de rendement des rétrodiffusés élastiques et les probabilités d'interactions.

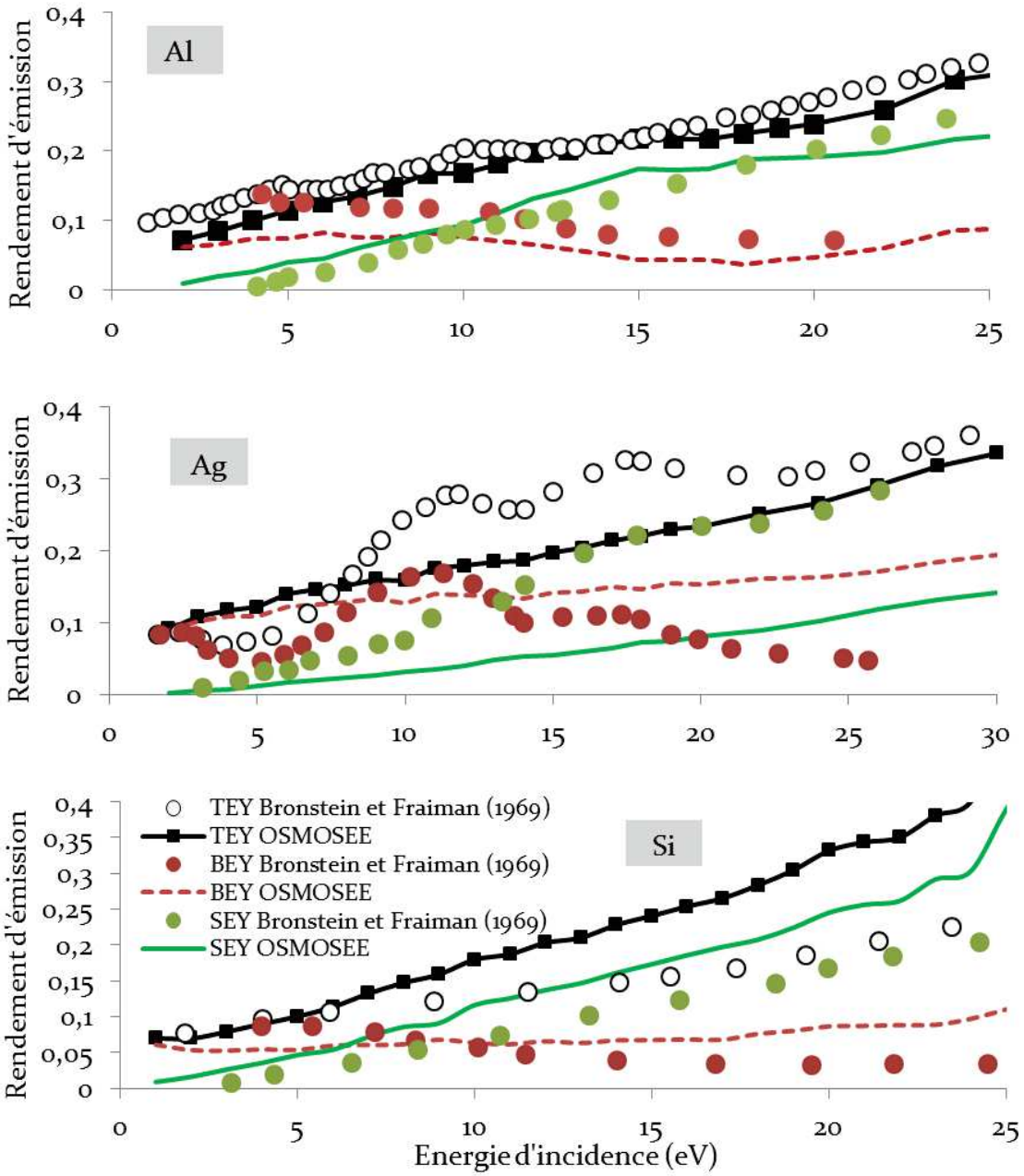


FIGURE 4.20. Rendement d'émission électronique total (TEY), des rétrodiffusés (BEY) et des secondaires (SEY) à très basse énergie et à incidence normale pour l'aluminium, l'argent et le silicium. Les cercles correspondent aux mesures de Bronstein et Fraiman [BRO69]. Les traits pleins et pointillés sont les simulations du code OSMOSEE.

Nous retrouvons un comportement similaire pour l'or, qui présente des épaulements sur son libre parcours moyen élastique et sur les rendements d'électrons rétrodiffusés de Bronstein et Fraiman **[BRO69]**. Toutefois, ces oscillations pourraient aussi trouver leur origine dans la traversée de la surface. En effet, sur la FIGURE 4.20, la contribution des électrons réfléchis est incluse dans celle des électrons rétrodiffusés. Or, le modèle d'une barrière de potentiel exponentielle implémenté dans le code OSMOSEE (et le module MicroElec) ne prend pas en compte le détail de la structure des bandes électroniques des matériaux, et donc, les réflexions selon des directions cristallines privilégiées.

Pour le silicium, l'accord entre les simulations du code OSMOSEE et les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** est correct, même si le rendement d'émission des rétrodiffusés et le rendement d'émission des électrons secondaires est surestimé d'environ 30 %.

La comparaison des rendements d'émission électronique obtenus par les simulations du code OSMOSEE avec les données de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** permettent de valider les simulations pour une énergie entre 10 eV et 2 keV. Toutefois, nous savons que l'accord est moins bon pour les très basses énergies. Cela s'explique principalement par les limites des codes de transport d'électrons, telles que les modèles utilisés pour décrire les interactions élastiques, les interactions avec les plasmons de surface et la traversée de la surface. Des simulations supplémentaires ont été réalisées pour des énergies supérieures à 2 keV, notamment avec le module MicroElec. Ces simulations, très coûteuses en temps de calculs à cause du nombre croissant d'électrons secondaires générés, montrent une bonne cohérence avec les données de la littérature jusqu'à 10 keV pour l'aluminium, l'argent et le silicium.

4.4. MISE EN ÉVIDENCE DE DEUX RÉGIMES DE TRANSPORT

Les codes de Monte-Carlo sont des outils puissants pour étudier le transport des électrons dans les matériaux, car ils permettent, en suivant pas à pas le déplacement des électrons, d'obtenir de nombreuses grandeurs inaccessibles, ou difficilement accessibles, aux expérimentateurs, telles que la profondeur atteinte par les électrons incidents et secondaires, l'énergie moyenne perdue ou déposée lors des interactions, la profon-

deur et l'énergie d'origine des électrons secondaires, etc. Ces grandeurs sont d'un grand intérêt pour obtenir une meilleure compréhension du transport des électrons et établir des modèles analytiques, comme le montrent les travaux d'Inguimbert et coll. **[ING16, ING17]**. Cela est particulièrement vrai à basse énergie, où la plupart des modèles analytiques sont extrapolés à partir des modèles de haute énergie et ne permettent pas de décrire correctement le transport des électrons.

Au cours de cette thèse, les deux codes de transport que j'ai développés, ont permis d'étudier plus en détails certaines de ces observables comme les parcours ou les énergies déposées (dose), et ont ainsi permis d'établir des lois analytiques pour caractériser certaines de ces grandeurs. Nous nous sommes, tout particulièrement intéressés à la profondeur de pénétration des électrons incidents dans le matériau **[ING16, ING17]**, et à la dose ionisante, c'est-à-dire à l'énergie déposée par les électrons incidents dans le matériau par unité de masse **[ING17, PIE17]**. L'étude de ces deux grandeurs nous a permis de mettre en évidence l'existence de deux régimes de transport pour les électrons à basse énergie.

4.4.1. PROFONDEURS DE PÉNÉTRATION

La FIGURE 4.21 présente la profondeur de pénétration des électrons primaires dans le silicium en fonction de l'énergie d'incidence. Nous pouvons voir qu'à haute énergie, les simulations du code OSMOSEE sont en bon accord avec les expressions analytiques de Gledhill **[GLE73]** et Young **[YOU56]** qui sont des ajustements de données expérimentales. Toutefois, à plus basse énergie, les simulations du code OSMOSEE montrent que les électrons incidents atteignent une profondeur de pénétration indépendante de l'énergie de l'ordre de 2,4 nm.

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 1, la plupart des modèles analytiques à basse énergie, ne prennent pas en compte ce palier **[ING16, ING17]**. Ces modèles sont des extrapolations de formules validées à plus haute énergie et font l'hypothèse que la profondeur de pénétration des électrons tend vers zéro à très basse énergie. Cette approximation n'est pas cohérente d'un point de vue physique, car nous pouvons observer une remontée à très basse énergie sur les libres parcours moyens. Cela signifie que les électrons peuvent parcourir une grande distance avant d'entrer en collision avec d'autres électrons, de perdre leur énergie et de s'implanter dans le matériau. À très basse énergie, les électrons vont davantage interagir avec les noyaux des

atomes, être diffusés sans perdre d'énergie, et donc, voir la distance qu'ils sont capables de parcourir se stabiliser et non décroître directement vers zéro.

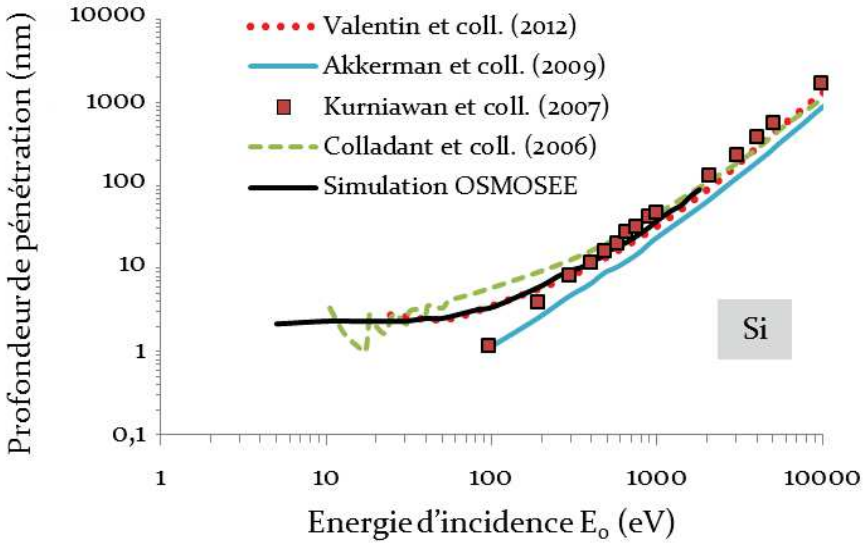


FIGURE 4.21. Profondeur de pénétration des électrons dans le silicium. Les données proviennent de Valentin et coll. [VAL12], Akkerman et coll. [AKK09], Kurniawan et coll. [KUR07] et de Colladant et coll. [COL06]. Le trait en noir représente les simulations du code OSMOSEE. Les profondeurs de pénétration sont estimées avec 100 000 électrons incidents ce qui correspond à une incertitude d'environ 3 %. L'incertitude sur la profondeur est d'environ 10 %.

La FIGURE 4.22 représente la probabilité de réaliser une interaction élastique pour le silicium. Cette probabilité croît fortement en dessous de 100 eV. Nous pouvons voir sur la FIGURE 4.22 qu'à 100 eV, la probabilité d'interaction élastique de Valentin et coll. **[VAL12]** est 20 % plus élevée que celle utilisée par Akkerman et coll. **[AKK09]** et celle du code OSMOSEE. Pour décrire les interactions élastiques, les codes de Valentin et coll. **[VAL12]** et d'Akkerman et coll. **[AKK09]** utilisent les sections efficaces calculées avec le code ELSEPA de Salvat et coll. **[SAL05]** jusqu'à 50 eV. En dessous de cette énergie, ces auteurs utilisent les sections efficaces de CS_2 issues des calculs *ab initio* de Bettega et coll. **[BET05]**. Le code OSMOSEE utilise les sections efficaces calculées avec le code ELSEPA de Salvat et coll. **[SAL05]** jusqu'à 10 eV. Par ailleurs, nous avons pu expliquer l'écart entre les libres parcours moyens inélastiques de Valentin et coll. **[VAL12]** et d'Akkerman et coll. **[AKK09]** avec nos calculs par l'utilisation de relations de dispersion différentes. Les écarts sur les libres parcours moyens inélastiques et élas-

tiques se traduisent par des probabilités d'interactions élastiques différentes et peuvent être à l'origine de différences sur les propriétés du transport des électrons dans le matériau **[PIE17]**.

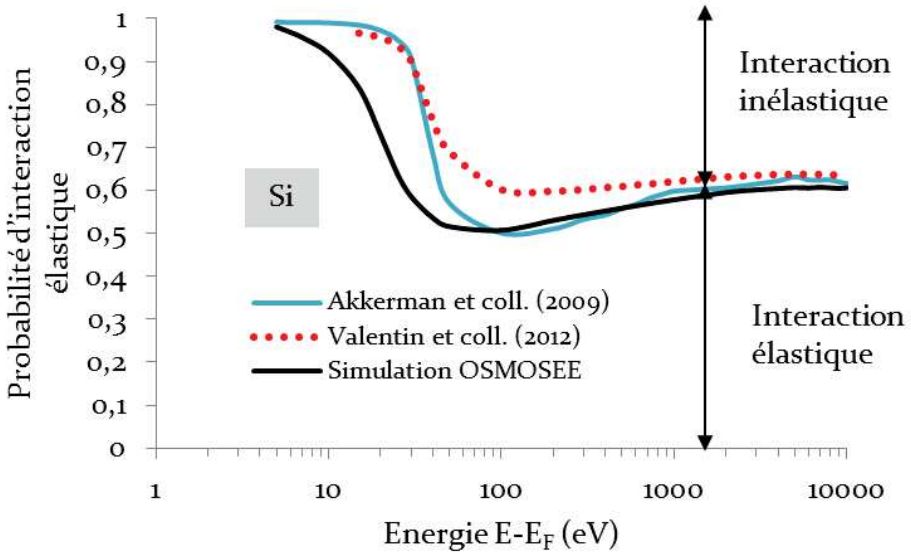


FIGURE 4.22. Probabilité d'interaction élastique calculée pour les libres parcours moyens du code OSMOSEE dans le silicium. La comparaison est donnée pour les données de Valentin et coll. [VAL12] et d'Akkerman et coll. [AKK09].

L'existence d'un palier pour les profondeurs de pénétration à basse énergie signifie que les électrons secondaires, créés avec une faible énergie au cours du déplacement des électrons primaires, vont avoir un déplacement caractéristique de quelques nanomètres dans le matériau. Ces résultats impliquent que, pour avoir une modélisation suffisamment précise — par exemple, à l'échelle du nanomètre dans un composant microélectronique -— il faut continuer le transport des électrons jusqu'à une énergie suffisamment faible **[PIE17]**.

4.4.2. ÉTUDE DES VARIATIONS DU RENDEMENT D'ÉMISSION

La FIGURE 4.21 pour le silicium, et la FIGURE 4.23 qui présente le rendement d'émission électronique et la profondeur de pénétration des électrons dans l'aluminium, illustrent l'existence de deux régimes de transport pour les électrons dans les matériaux.

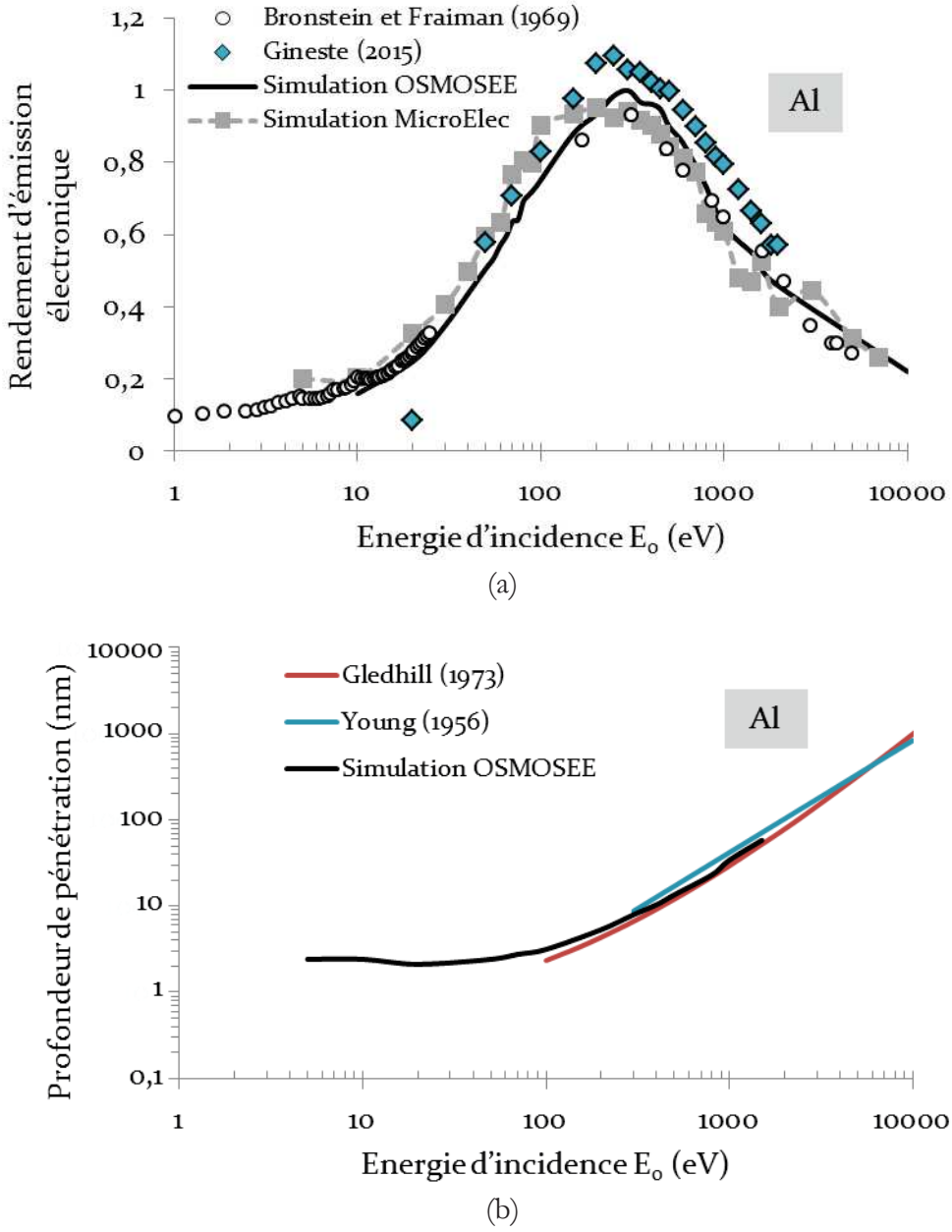


FIGURE 4.23. (a) Rendement d'émission électronique et (b) profondeur de pénétration des électrons dans l'aluminium. Les données proviennent de Bronstein et Fraiman [BRO69], Gineste [GIN15], Gledhill [GLE73] et Young [YOU56]. La profondeur de pénétration du code OSMOSEE est estimée avec 100 000 électrons incidents, ce qui correspond à une incertitude d'environ 3 %. L'incertitude sur la profondeur est d'environ 10 %. En reprenant la FIGURE 4.21 et la FIGURE 4.14, nous retrouvons une corrélation similaire entre le rendement et la profondeur de pénétration pour le silicium.

À très basse énergie, en dessous de 100 eV, les électrons sont principalement déviés dans toutes les directions par les noyaux des atomes sans perdre beaucoup

d'énergie. Ils interagissent peu avec les autres électrons du solide qui eux leur feront perdre leur énergie. Le transport des électrons est une sorte de diffusion ou mouvement Brownien, et les électrons restent, en moyenne, concentrés dans les premiers nanomètres sous la surface. En dessous de 100 eV, le parcours des électrons reste constant, cependant, lorsque l'énergie d'incidence des électrons augmente, les électrons primaires et secondaires ont davantage d'énergie pour franchir la barrière de potentiel de la surface et s'en échapper. Il en résulte une augmentation du rendement d'émission électronique (FIGURE 4.23).

A plus haute énergie, les électrons incidents sont plus pénétrants et vont atteindre des profondeurs plus élevées. En conséquence, les électrons secondaires créés le long de la trajectoire des électrons primaires vont devoir parcourir une distance plus importante avant d'atteindre la surface. Lors de leurs déplacements pour atteindre la surface, les électrons vont perdre une grande partie de leur énergie, et s'ils atteignent la surface, ils n'auront plus nécessairement l'énergie suffisante pour la franchir. En conséquence, à plus haute énergie, le rendement d'émission électronique diminue (FIGURE 4.23).

4.4.3. DOSES IONISANTES

Jusqu'à présent, nous nous sommes intéressés aux électrons qui s'échappent du matériau ainsi qu'à leur parcours. Lorsqu'un électron incident interagit avec un solide, il va créer une cascade d'électrons secondaires. Une partie de son énergie initiale va être emportée par les électrons secondaires qui s'échappent du solide, ou l'électron incident lui-même s'il est rétrodiffusé. Le reste de son énergie initiale va être déposée dans le solide par l'implantation des électrons secondaires de la cascade ou l'électron incident lui-même. La FIGURE 4.24. montre une comparaison entre le rendement d'émission électronique du silicium et l'énergie déposée (en %) par les électrons dans le solide.

Nous pouvons constater que le rendement d'émission et l'énergie déposée ont des variations opposées. En particulier, lorsque le rendement d'émission atteint un maximum, l'énergie déposée dans le solide atteint, au contraire, un minimum. Cela est cohérent avec le fait que, lorsque les électrons secondaires s'échappent du solide, l'énergie déposée par les électrons primaires dans le solide est moindre.

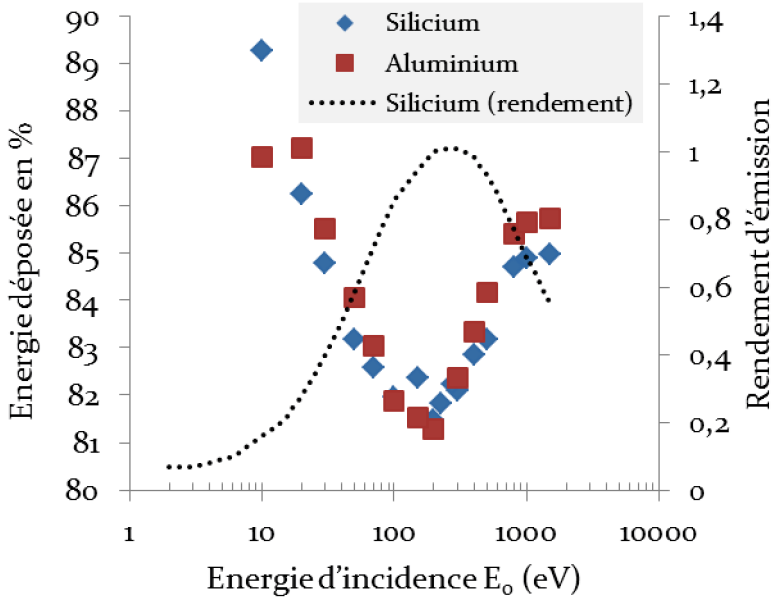


FIGURE 4.24. Rendement d'émission électronique et énergie déposée (en %) dans le solide par les électrons pour l'aluminium et le silicium.

L'énergie déposée dans le solide par unité de masse constitue la dose ionisante. La FIGURE 4.25 présente des calculs de dose ionisante en fonction de la profondeur des électrons pour le silicium et l'aluminium.

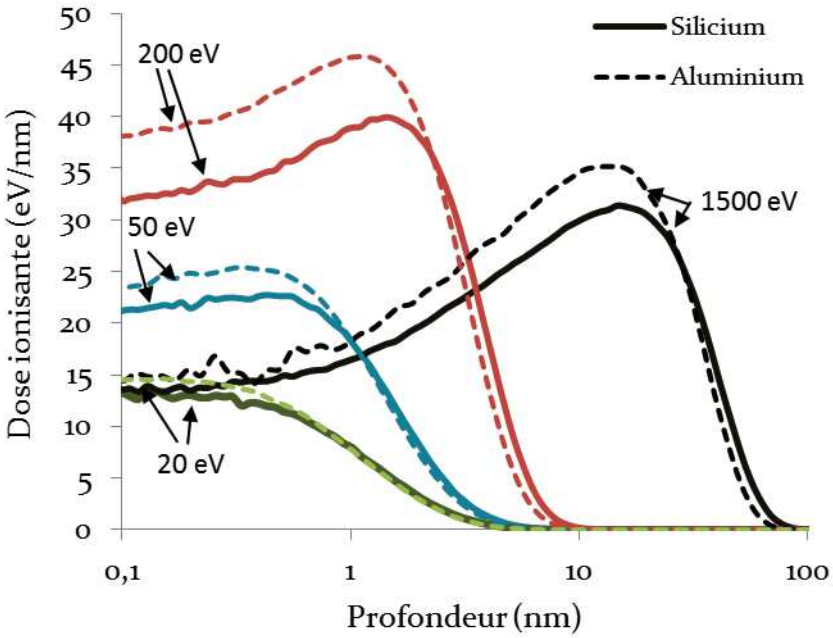


FIGURE 4.25. Dose ionisante pour les électrons dans l'aluminium et le silicium en fonction de la profondeur pour des énergies d'incidence de 20, 50, 200 et 1500 eV.

Pour les basses énergies, nous pouvons voir également sur cette figure que la dose ionisante varie de manière analogue au rendement d'émission. Pour les énergies inférieures à 200 eV, la dose ionisante reste localisée dans les premiers nanomètres de la surface. Lorsque l'énergie des électrons incidents augmente, la dose ionisante augmente en surface et s'étend légèrement en profondeur dans le matériau. Pour des énergies supérieures à 200 eV, les électrons déposent leur énergie plus en profondeur dans le matériau, ce qui entraîne une diminution de la dose ionisante près de la surface **[PIE17]**.

4.5. CONCLUSION

A travers ce chapitre, nous avons vu que le code OSMOSEE et le module MicroElec permettaient d'obtenir des rendements d'émission et des spectres en énergie en bon accord avec les mesures expérimentales du dispositif DEESSE et les données de la littérature, en particulier les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]**. Ce travail de validation a été réalisé pour l'aluminium, l'argent et le silicium, pour des énergies entre 10 eV et 10 keV. Toutefois, à très basse énergie, en dessous de 30 eV, même si les rendements d'émission obtenus par les codes sont du bon ordre de grandeur, des différences apparaissent avec les mesures expérimentales. Il existe une part d'incertitudes sur la précision des données expérimentales qui pourrait expliquer ces écarts. Cependant, il faut aussi noter les limites des modèles décrivant les interactions élastiques **[SAL05]**, les interactions avec les plasmons de surface et la traversée de la surface à basse énergie.

Jusqu'à présent nous nous sommes intéressés à des matériaux théoriques, c'est-à-dire des solides semi-infinis sans rugosité. Cependant, les matériaux couramment utilisés dans les applications spatiales présentent de l'oxydation, de la contamination ou de la rugosité à leur surface. Nous avons vu, à travers les comparaisons des mesures expérimentales du dispositif DEESSE et de la littérature, que même légère, l'oxydation de la surface pouvait expliquer des différences de rendements d'émission électronique et de spectres en énergie pour l'aluminium et le silicium. Par contre, dans le cas de l'argent, l'écart avec les mesures faites avec une incidence rasante (θ=60°) peuvent s'interpréter par un effet de la rugosité **[GIN15]**. Ces résultats s'expliquent par le fait, qu'à basse énergie, les électrons restent dans les premiers nanomètres sous la surface du solide.

La prise en compte de l'état de la surface de l'échantillon, notamment la rugosité, nécessite l'utilisation de codes de transport d'électrons permettant la modélisation de géométries complexes en 3D, ce qui n'est pas le cas du code OSMOSEE qui ne fait du transport que dans un volume semi-infini. J'ai donc implémenté les modèles physiques développés dans OSMOSEE dans le module MicroElec du code GEANT4, afin d'étudier l'effet de structures rugueuses simples sur le transport des électrons (chapitre 5).

CHAPITRE 5 : ÉTUDE DE L'EFFET DE LA RUGOSITÉ SUR L'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE

5.1. INTRODUCTION

Dans les applications spatiales, les matériaux sont soumis à un environnement qui les oxyde ou créé de la contamination à leur surface. C'est le cas, par exemple, avant le lancement du satellite où ils peuvent être laissés à l'air libre pendant plusieurs mois. De plus, les matériaux réels présentent à l'échelle micrométrique, ou nanométrique, de la rugosité à leur surface. Ces paramètres affectent leurs propriétés d'émission électronique. Dans ce chapitre 5, nous avons choisi d'étudier l'effet de la rugosité sur ces propriétés, et en particulier, sur le rendement d'émission électronique. L'étude des autres paramètres (oxydation, contamination) nécessite d'implémenter de nouveaux matériaux, par exemple des oxydes tels que le dioxyde de silicium ou l'alumine, ce que nous n'avons pas fait dans le cadre de ces travaux de thèse mais qu'il serait possible de réaliser dans des travaux ultérieurs à la suite de cette thèse.

Dans le chapitre 1, nous avons vu comment les électrons de basse énergie pouvaient être à l'origine de dysfonctionnements dans les composants électroniques des satellites. Nous nous sommes intéressés, en particulier, à l'effet multipactor qui se produit dans les équipements radiofréquences des satellites et des accélérateurs de particules. Afin de limiter cet effet, qui correspond à l'apparition d'une avalanche d'électrons dans les composants, une des solutions adoptées consiste à utiliser des matériaux avec un faible rendement d'émission électronique. La littérature **[NIS94, PIV08]** montre que, selon les structures morphologiques qui composent la surface des matériaux, la rugosité de la surface peut augmenter ou diminuer ce rendement. Dans ce contexte, les résultats de cette étude sont très intéressants pour comprendre les mécanismes d'émission électronique secondaire et permettre ainsi d'optimiser les traitements de surface qui visent à réduire cette émission pour limiter l'effet multipactor.

L'implémentation de notre physique dans le module MicroElec du code GEANT4, qui permet la modélisation de géométries 3D complexes, outre des applications pour la microélectronique, nous permet d'étudier les effets du relief de la surface sur le rendement d'émission électronique. Contrairement au code OSMOSEE, le mo-

dule MicroElec ne prend pas en compte les plasmons de surface. Toutefois, nous avons constaté que les résultats de ces deux codes sont similaires sauf à très basse énergie, en dessous de 20 eV.

Dans le cadre de ces travaux de thèse, nous nous sommes intéressés à l'effet de structures morphologiques simples, telles que les rainures et les motifs en damiers. L'objectif de cette étude est d'optimiser les paramètres (hauteur, largeur, espacement) de ces structures afin d'obtenir un faible rendement d'émission électronique.

5.1.1. DÉFINITION DES DIFFÉRENTS EFFETS DE LA RUGOSITÉ

La surface des matériaux techniques présente des reliefs qui peuvent être répartis, ou non, de manière aléatoire. Ces structures peuvent avoir plusieurs effets opposés, qui sont représentés sur la FIGURE 5.1.

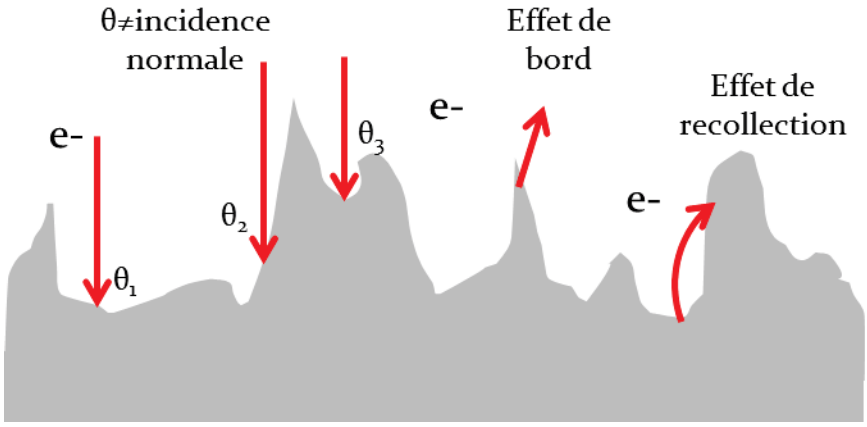


FIGURE 5.1. Illustration simplifiée de la surface d'un matériau présentant de la rugosité.

Le premier effet est appelé « effet de bord » et correspond au fait que les électrons qui arrivent sur les pentes et les sommets des structures traversent peu de solide et sont, en conséquence, plus susceptibles de s'en échapper. Nous pouvons prévoir que l'effet bord, dû à des structures pointues, aura tendance à augmenter le rendement d'émission **[NIS94]**. Au contraire, les électrons qui s'échappent des creux vont avoir tendance à être capturés par les aspérités voisines. Cet effet, appelé « effet de recollection », peut entraîner une diminution du rendement d'émission électronique. Nous pouvons penser que cet effet, qui va nous intéresser tout particulièrement pour dimi-

nuer le rendement d'émission électronique, est prédominant pour des structures telles que des rainures ou des damiers qui présentent des parois verticales.

D'autre part, les reliefs présents à la surface du solide conduisent par essence à une augmentation de l'angle d'incidence moyen avec lequel les électrons arrivent sur le solide. En effet, si d'un point de vue macroscopique, les électrons semblent avoir le même angle d'incidence, ce n'est pas le cas à une échelle microscopique, où les électrons qui arrivent sur les pentes, les sommets ou les creux des structures ne traversent pas la surface avec le même angle d'incidence. Or, comme nous l'avons montré précédemment, l'inclinaison d'un faisceau sur une surface parfaitement plane entraîne une augmentation du rendement d'émission électronique car les électrons secondaires seront produits plus près de la surface. A titre d'illustration, nous rappelons sur la FIGURE 5.2, les résultats du chapitre 4, dans lequel nous avons pu constater, pour l'aluminium et l'argent, que l'angle d'incidence avait un effet d'amplification sur le rendement d'émission électronique (noté σ).

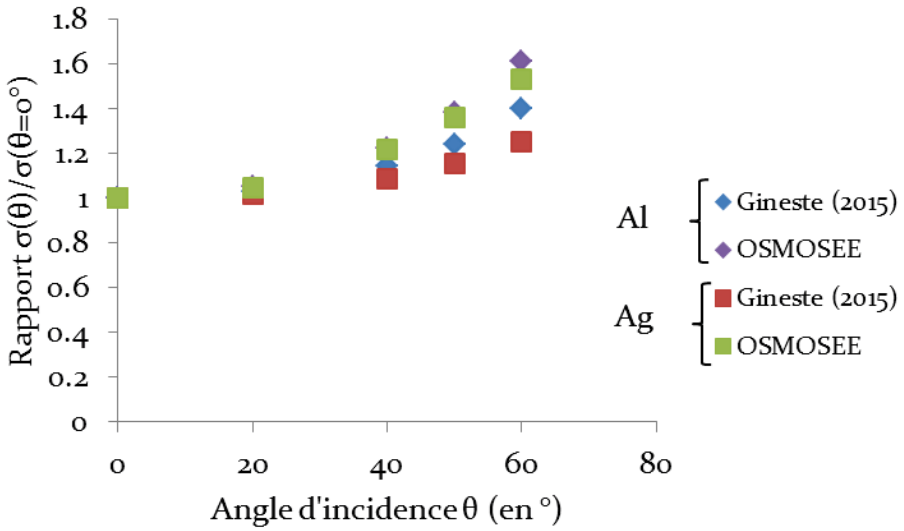


FIGURE 5.2. Évolution du rapport relatif du maximum du rendement d'émission électronique σ pour différents angles d'incidence θ pour l'aluminium et l'argent. Un angle $\theta = 0°$ correspond à une incidence normale.

L'effet de la rugosité sur le rendement d'émission électronique correspond à une compétition entre l'effet de bord, l'effet de recollection et l'angle d'incidence moyen. Cette compétition est, par exemple, mise en évidence dans les travaux de Nishimura et coll. **[NIS94]**. Ces auteurs ont étudié l'effet de structures de forme sinusoïdale,

dont les dimensions caractéristiques sont de l'ordre de 10 nm pour la hauteur et de 40 nm pour la distance entre deux structures voisines (ou période). En faisant varier les dimensions des structures via un code de Monte-Carlo, Nishimura et coll. **[NIS94]** ont observé que, lorsque la hauteur h des structures est plus faible que leur largeur L, tel que le rapport h/L soit compris entre 0,1 et 1, les structures ont tendance à augmenter le rendement d'émission électronique. Ce résultat s'explique par le fait que dans cette configuration, les pentes sont fortement inclinées, ce qui favorise l'effet de bord et augmente l'angle d'incidence moyen des électrons. Ainsi, les électrons de basse énergie et d'incidence oblique, qui ne peuvent pas s'échapper dans le cas d'une surface plane, peuvent s'échapper depuis un plan incliné de la surface rugueuse. Lorsque la hauteur des structures est plus grande que leur largeur, Nishimura et coll. **[NIS94]** ont constaté une diminution du rendement d'émission électronique. Ce résultat s'explique par le fait que dans cette configuration, l'effet de recollection est favorisé, et qu'en conséquence, les électrons émis sont davantage recollectés par les structures morphologiques avoisinantes.

Les simulations numériques de Wang et coll. **[WANGD17]** rejoignent les résultats de Nishimura et coll. **[NIS94]**. Wang et coll. **[WANGD17]** ont montré que la présence de structures de forme sinusoïdale ou de cônes tronqués à leur sommet entraîne une diminution du rendement d'émission électronique, et que cette diminution est plus faible que celle obtenue avec des structures cylindriques.

Si l'effet de la rugosité sur le rendement d'émission électronique dépend fortement de la forme des structures, il dépend également de la manière dont sont disposées les structures à la surface du matériau. Par exemple, les travaux de Watts et coll. **[WAT11]** sur des échantillons de cuivre usinés par laser ont montré que, dans le cas d'une distribution non uniforme des structures, lorsque le faisceau des électrons incidents englobe des structures et des zones sans structure, la diminution du rendement d'émission électronique est moins importante. Pour limiter le rendement d'émission électronique de manière optimale, nous devons donc suivre plusieurs conditions : considérer des structures avec une grande hauteur et une forte pente, distribuées uniformément et avec une densité suffisante à la surface du matériau.

Ces conditions se retrouvent dans les travaux des expérimentateurs, tels qu' Aguilera et coll. **[AGU13]**. En faisant croître des nanofils d'oxyde de cuivre sur du cuivre, ces auteurs ont montré qu'il est possible de diminuer fortement le rendement d'émission électronique du cuivre technique ($\sigma \approx 1{,}7$). Aguilera et coll. **[AGU13]** ont trouvé un rendement inférieur à 1 lorsque le rapport entre la hauteur et la largeur des

nanofils est de 10^3 et lorsque leur densité de surface est de 10^2 μm^{-2} — les valeurs maximales pour la longueur et la largeur des nanofils étant de 1µm et 10 µm, respectivement.

Dans cette partie nous proposons de faire des simulations de Monte-Carlo en 3D de la rugosité de la surface, ce qui à notre connaissance n'a pour l'instant jamais été publié.

5.1.2. DESCRIPTION DE L'APPLICATION GEANT4 UTILISÉE

Dans le chapitre 3, nous avons décrit les modèles physiques qui ont été implémentés dans les codes OSMOSEE et MicroElec utilisés au cours de cette thèse (annexe 3). Afin d'étudier l'effet de la rugosité sur les propriétés d'émission électronique des matériaux, une application GEANT4 a été construite avec ces modèles physiques (implémentés dans le module MicroElec). Dans cette application, le matériau que nous souhaitons étudier est constitué d'un substrat, qui correspond à une base rectangulaire de dimensions $l \times L_s$ et d'épaisseur e, et d'un ensemble de quatre blocs géométriques, qui constituent les N motifs de dimensions $a + b$ permettant de modéliser le relief de la surface. Les blocs géométriques sont directement définis par leurs coordonnées. A chaque déplacement de l'électron dans le solide, le code détermine si l'électron atteint la surface en comparant ses coordonnées avec celles des blocs géométriques. Il est donc possible de traiter un grand nombre de géométries différentes. La taille limite pour une maille, dans le module MicroElec, est de 0,01 nm.

Afin de mesurer l'ensemble des électrons émis, le matériau est placé dans un détecteur sphérique. Le faisceau d'électrons créé entre le détecteur et le matériau arrive avec un angle d'incidence θ sur la surface, θ étant donné par rapport à la normale de la surface du matériau. Les électrons du faisceau incident bombardent le solide dans un cercle de rayon r. La FIGURE 5.3 présente une illustration de la géométrie de l'ensemble de l'application. La géométrie de l'application, en particulier les dimensions des plots, est totalement définie par l'utilisateur, ce qui permet de faire facilement une étude paramétrique.

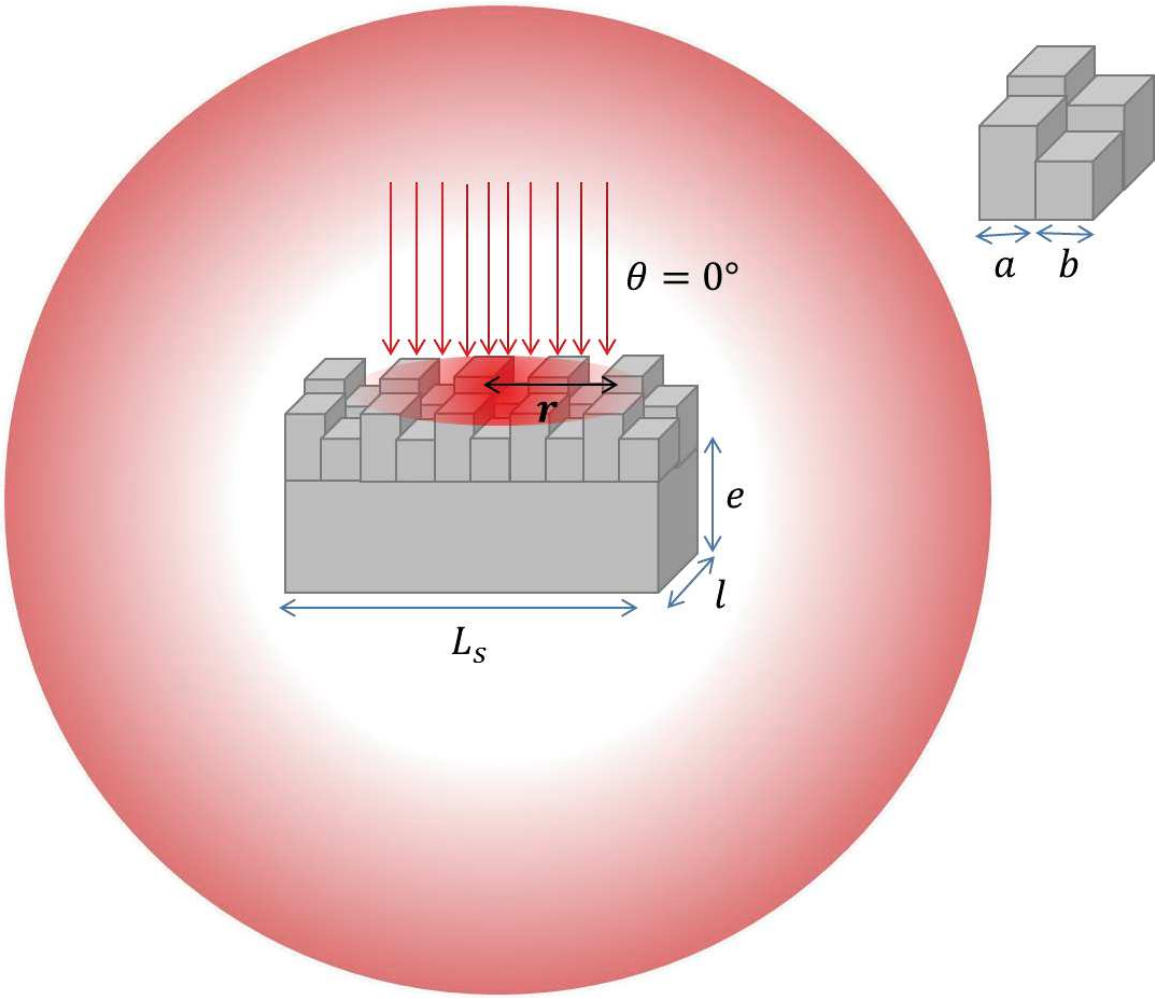


FIGURE 5.3. Représentation de la géométrie utilisée pour étudier un matériau avec une surface rugueuse dans l'application MicroElec.

Afin d'obtenir des simulations pertinentes, nous devons tenir compte de deux conditions. Premièrement, le faisceau d'électrons ne doit pas être plus large que le solide. Dans le cas contraire, les électrons du faisceau incident arrivent directement sur le détecteur, ce qui produit évidemment un résultat erroné. Cette condition correspond à la relation $2r < N \times (a + b)$. Deuxièmement, il est nécessaire que le faisceau incident irradie plusieurs structures voisines. Cette condition évite de sous-estimer le rendement d'émission dans le cas où les électrons arrivent majoritairement sur un creux et sont recapturés par les structures adjacentes ; mais évite aussi de surestimer le rendement d'émission dans le cas où les électrons arrivent majoritairement sur un sommet et sont réémis par le solide. Cette condition s'écrit $n < 2r/(a + b)$. La valeur n correspond au

nombre de structures minimales que doit irradier le faisceau d'électrons incidents. J'ai choisi une valeur limite de $n = 2$, ce qui correspond dans le cas de rainures ou de damiers à un ensemble de 2 creux et 2 plots.

Dans le cadre de ces travaux de thèse, nous nous sommes intéressés à des structures géométriques simples telles que les rainures ou les damiers. En tenant compte des limites de l'application, nous avons étudié ces structures pour des dimensions de l'ordre du nanomètre au millimètre. Par défaut, nos simulations correspondent à un angle d'incidence $\theta = 0°$.

5.2. ÉTUDE DE L'EFFET DES RAINURES SUR LE RENDEMENT D'ÉMISSION

Dans une première étude, j'ai cherché à identifier l'effet de rainures à la surface des matériaux sur le rendement d'émission électronique. Dans les simulations du module MicroElec, ces structures sont décrites par trois paramètres : leur hauteur h (ou profondeur), leur largeur L et la distance d entre deux structures voisines. Ces notations sont reportées sur la FIGURE 5.4.

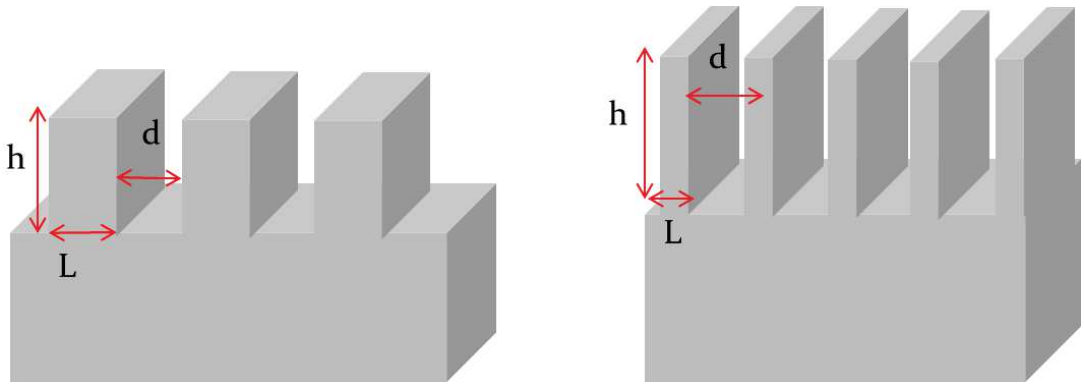


FIGURE 5.4. Schéma des rainures utilisées (gauche) dans la première partie de l'étude et (droite) dans la deuxième partie de l'étude.

Afin de diminuer le rendement d'émission électronique, j'ai cherché à maximiser l'effet de recollection qui permet aux structures de capturer une partie des électrons émis par le matériau. Pour ce faire, la première partie de l'étude (FIGURE 5.4, gauche) a consisté à faire varier la hauteur h des rainures en conservant une largeur L et une distance d constantes telles que $L = d$. La deuxième partie de l'étude (FIGURE 5.4, droite)

a consisté à diminuer la largeur L des structures en conservant une hauteur h et une distance d constantes et telles que $h \geq 10\,d$. Les simulations ont été réalisées pour l'argent et l'aluminium avec des paramètres h, L et d compris entre 0,5 nm et 2 mm.

5.2.1. EFFET DE LA PROFONDEUR DES RAINURES

Dans cette première partie de l'étude, la largeur d des rainures et la distance L entre deux rainures voisines sont gardées constantes et de même valeur. La hauteur h des rainures varie entre $h = 0\ nm$ (surface sans rugosité) et $h = 2\ mm$.

RENDEMENT D'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE TOTAL

La FIGURE 5.5 montre l'évolution du rendement d'émission électronique en fonction de l'énergie d'incidence pour des structures en argent de largeur $L = d = 50\ \mu m$ et différentes hauteurs h.

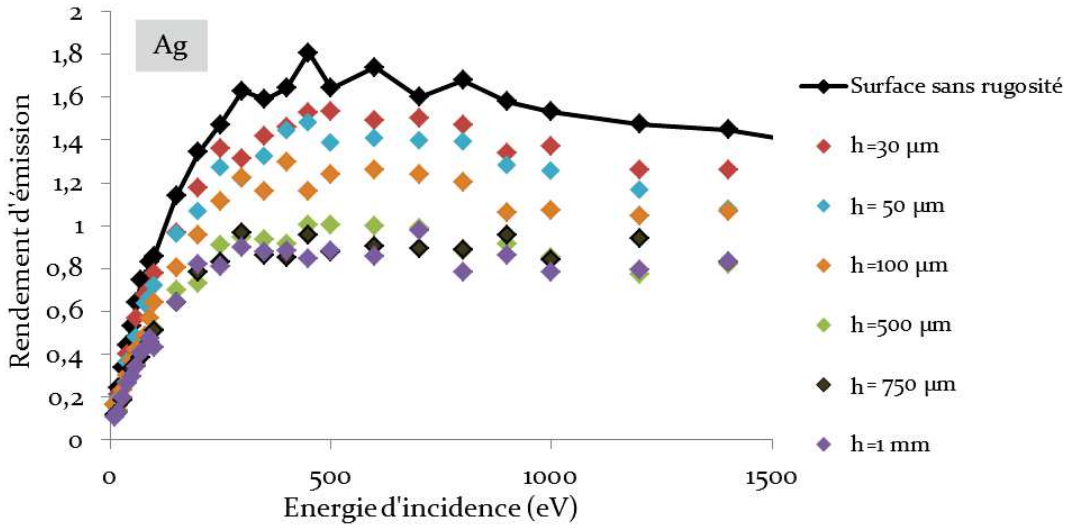


FIGURE 5.5. Évolution du rendement d'émission électronique en fonction de l'énergie d'incidence pour de l'argent présentant à sa surface des rainures de différentes hauteurs h, de largeur $L = 50\ \mu m$ et d'espacement d entre deux structures voisines $d = 50\ \mu m$. Les fluctuations correspondent à des incertitudes. Pour les énergies inférieures à 100 eV, l'erreur sur le rendement est de 10 %. Pour les énergies supérieures, l'erreur est inférieure à 4 %. Les simulations ont été obtenues avec le module MicroElec.

La courbe noire représente le rendement d'émission électronique de l'argent théorique (structure plate) en fonction de l'énergie incidente. Pour une surface sans rugosité, la valeur maximale du rendement d'émission de l'argent obtenue avec le module MicroElec est de σ =1,8. Cette valeur est atteinte pour environ 450 ± 50 eV. La FIGURE 5.5 montre qu'une augmentation de la profondeur des rainures entraîne une diminution du rendement d'émission électronique sur l'ensemble des énergies étudiées.

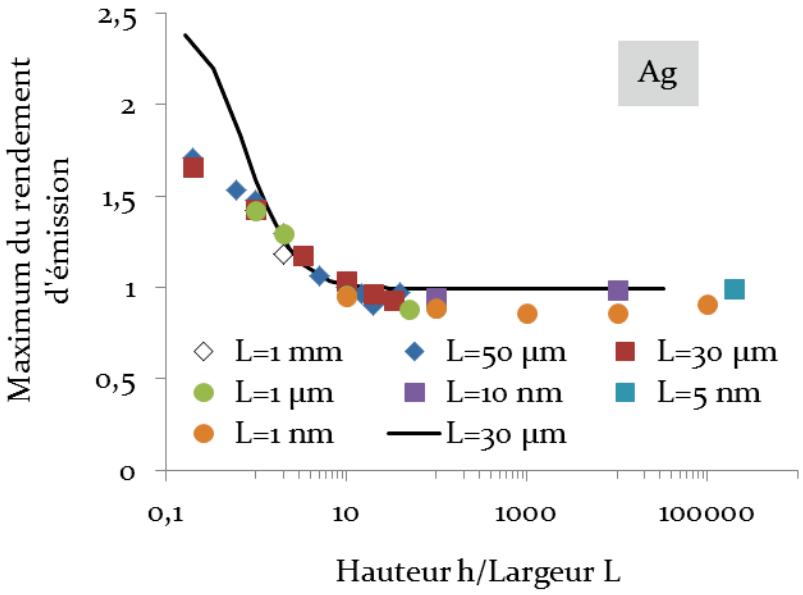
RENDEMENT D'ÉMISSION DES SECONDAIRES ET DES RÉTRODIFFUSÉS

Afin d'évaluer plus précisément cette diminution, nous avons reporté sur la FIGURE 5.6a et la FIGURE 5.6b, respectivement, les maxima des rendements d'émission et les valeurs des rendements des électrons rétrodiffusés associés en fonction du rapport de la hauteur h sur la largeur L des structures.

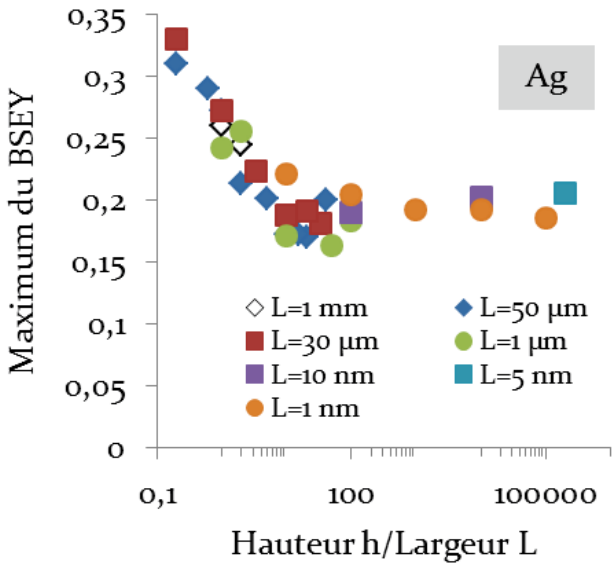
La FIGURE 5.6a montre qu'à partir d'un rapport $h/L = 10$, le rendement d'émission de l'argent devient constant et atteint une valeur proche de 0,9. Cette valeur correspond à une diminution du rendement d'environ 50 % par rapport au matériau théorique sans relief. Nous pouvons expliquer l'existence du palier par le fait que les électrons secondaires, qui contribuent majoritairement au rendement d'émission électroniques, sont émis de manière isotrope. Il en résulte qu'à partir d'une certaine hauteur, la majorité des électrons émis par le matériau sont collectés par les structures. La valeur du palier dépend des paramètres L et d. Pour $L < d$, nous nous attendons à ce que davantage d'électrons soient captés par les structures et, en conséquence, que cette valeur diminue (section 5.2.2). Pour $L \ll d$, il est possible que l'effet de recollection diminue. Toutefois, ce point n'a pas été observé dans les simulations.

La FIGURE 5.6b, qui présente les rendements d'émission des électrons rétrodiffusés, nous indique que l'effet de recollection concerne à la fois les électrons secondaires et les électrons rétrodiffusés.

La FIGURE 5.6a et la FIGURE 5.6b montrent que l'effet des rainures est le même lorsque le rapport entre la hauteur h et la largeur $L = d$ des structures est identique, avec L et d comprises entre le nanomètre et le millimètre. Nous pouvons expliquer ce résultat par un modèle analytique, que nous avons représenté par la courbe noire sur la FIGURE 5.6a.



(a)



(b)

FIGURE 5.6. Évolution (a) du maximum du rendement d'émission électronique et (b) du rendement d'émission des électrons rétrodiffusés associé en fonction du rapport de la hauteur *h* sur la largeur *L* des structures pour différentes largeurs entre 1 nm et 1 mm. Les maxima sont calculés avec un pas en énergie de 50 ou 100 eV pour des énergies d'incidence entre 100 et 600 eV. Les incertitudes pour le maximum du rendement d'émission et pour les électrons rétrodiffusés sont, respectivement, inférieures à 5 % et à 10 %. Sur la figure (a) la courbe en noire désigne le modèle analytique.

MODÈLE ANALYTIQUE

Le rendement d'émission électronique total σ correspond à la somme du rendement d'émission des électrons qui s'échappent du haut des structures (noté σ_{haut}), et du rendement d'émission des électrons qui s'échappent du bas des structures et qui ne sont pas capturés par les structures voisines (noté $\sigma_{bas\ non\ capturés}$). En négligeant le fait que les électrons situés aux bords des structures peuvent s'échapper par les côtés des structures, nous obtenons l'équation :

$$\sigma = \sigma_{haut} + \sigma_{bas\ non\ capturés} \quad \textbf{(5. 1)}$$

A des fins de simplifications, nous supposons que l'effet des structures rugueuses est identique quelle que soit l'énergie des électrons incidents. Cette hypothèse semble justifiée par les courbes de rendements de la FIGURE 5.5. Dans cette hypothèse, les rendements d'émission associés aux électrons émis par le haut des structures σ_{haut} et aux électrons émis par le bas des structures σ_{bas} (avant l'étape de recollection) sont directement proportionnels au rendement d'émission d'émission électronique de la suface sans rugosité — que nous notons σ_0 — et à l'aire irradiée par les électrons incidents. Le rapport des aires irradiées sur l'aire totale étant égal au rapport du nombre d'électrons incidents arrivant sur la surface sur le nombre d'électrons incidents total, nous obtenons les expressions :

$$\sigma_{haut} = \sigma_0 \frac{L \times l}{L \times l + d \times l} = \sigma_0 \frac{L}{L + d} \quad \textbf{(5. 2)}$$

$$\sigma_{bas} = \sigma_0 \frac{d \times l}{L \times l + d \times l} = \sigma_0 \frac{d}{L + d} \quad \textbf{(5. 3)}$$

Afin d'obtenir l'expression générale du rendement d'émission électronique dans le cas de rainures, nous allons déterminer le rendement des électrons capturés par le bas des structures.

La FIGURE 5.7 représente une vue de dessus et une vue de face des rainures. Nous pouvons voir que les électrons issus du bas des structures et non recollectés sont ceux possédant un angle θ supérieur à un angle limite θ_{lim} et un angle φ qui peut

prendre toutes les valeurs sauf $[-\frac{\pi}{2}-\varphi_{lim};-\frac{\pi}{2}+\varphi_{lim}] \cup [\frac{\pi}{2}-\varphi_{lim};\frac{\pi}{2}+\varphi_{lim}]$. L'angle limite φ_{lim} tend vers 0 dans le cas où la dimension l est très grande. Toutefois, cette approximation surestime le rendement d'émission électronique pour une faible hauteur h.

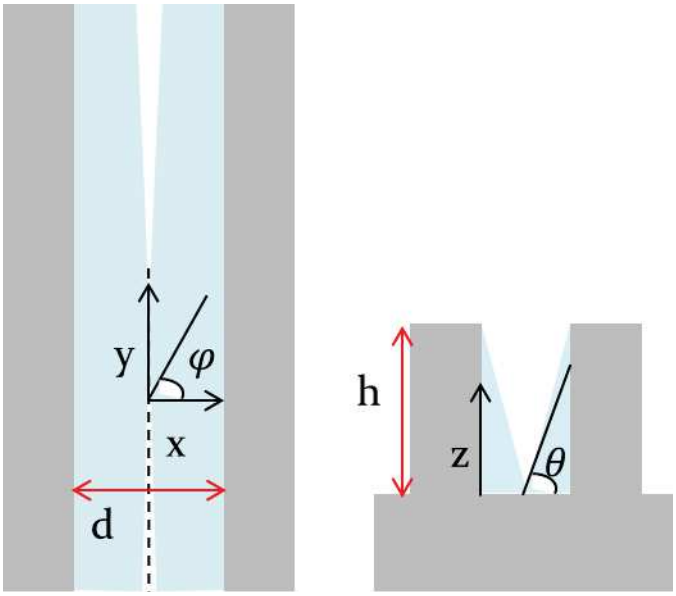


FIGURE 5.7. Schéma des rainures utilisées dans l'étude (vue de dessus et vue de côté). Les électrons recollectés par les structures sont situés dans l'aire en bleu.

Les angles θ et φ sont définis par :

$$tan\theta = \frac{z}{\sqrt{x^2+y^2}} \quad \textbf{(5. 4)}$$

$$tan\varphi = \frac{y}{x} \quad \textbf{(5. 5)}$$

En considérant qu'en moyenne les électrons sont situés au milieu des rainures à la coordonnée $x = d/2$, l'angle limite θlim est donné en première approximation par la relation :

$$tan\theta_{lim} = \frac{2h}{d}\frac{1}{\sqrt{1+tan^2\varphi}} \quad \textbf{(5. 6)}$$

Dans l'hypothèse où les électrons émis suivent une distribution lambertienne, le rendement $\sigma_{bas\ non\ recapturés}$ associé aux électrons émis par le bas des structures et non recapturés est donné par l'équation (5. 7) qui en définissant un angle $\beta_{lim} = \pi/2 - \varphi_{lim} \approx \pi/2$ peut être intégrée numériquement.

$$\sigma_{bas\ non\ recapturés} = \sigma_{bas} \frac{2 \times \int_{\varphi=-\beta_{lim}}^{\beta_{lim}} \int_{\theta_{lim}}^{\pi/2} sin\theta cos\theta d\theta d\varphi}{\int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{0}^{\pi/2} sin\theta cos\theta d\theta d\varphi}$$
$$= \sigma_0 \frac{d}{L+d} \frac{2}{\pi} \int_{\varphi=-\beta_{lim}}^{\beta_{lim}} 1 - sin^2 \left(\arctan\left(\frac{2h}{d} \frac{1}{\sqrt{1+tan^2\varphi}} \right) \right) d\varphi \quad \textbf{(5. 7)}$$

En reprenant les relations précédentes, nous pouvons établir l'expression analytique (5. 8) pour le rendement d'émission pour une surface présentant des rainures :

$$\sigma = \sigma_0 \frac{L}{L+d} + \sigma_0 \frac{d}{L+d} \frac{2}{\pi} \int_{\varphi=-\beta_{lim}}^{\beta_{lim}} 1 - sin^2 \left(\arctan\left(\frac{2h}{d} \frac{1}{\sqrt{1+tan^2\varphi}} \right) \right) d\varphi \quad \textbf{(5. 8)}$$

Cette expression nous indique clairement que le rendement d'émission ne dépend que des rapports des dimensions L, d et h. En particulier dans le cas $L = d$, l'expression ne depend plus que du rapport h/d. Nous avons pu observer sur la FIGURE 5.6a, de manière générale, un bon accord entre les simulations Monte-Carlo et l'expression analytique lorsque nous considérons le maximum du rendement d'émission électronique pour la valeur de σ_0. En effet, nous retrouvons la pente pour les valeurs $h/L \in [1; 10]$ et le palier pour $h > 10L$.

La FIGURE 5.8 présente l'évolution des différents termes de l'expression analytique (5. 8), et nous indique que dans le cas $L = d$, lorsque la hauteur h augmente, le nombre d'électrons émis par le bas des structures et non recollectés diminue jusqu'à atteindre une valeur seuil d'environ 0,2. Le plateau observé lorsque la recollection est maximale ($h > 10L$) provient ainsi majoritairement des électrons émis par le haut des structures qui tend vers $\sigma_0/2$ — soit une diminution d'environ 50 % du rendement d'émission électronique. Cependant, pour les faibles profondeurs de rainures, le rendement donné par l'expression analytique est surestimé. Ce résultat peut s'expliquer par l'approximation $\beta_{lim} = \pi/2$ qui cesse d'être valide à ces profondeurs.

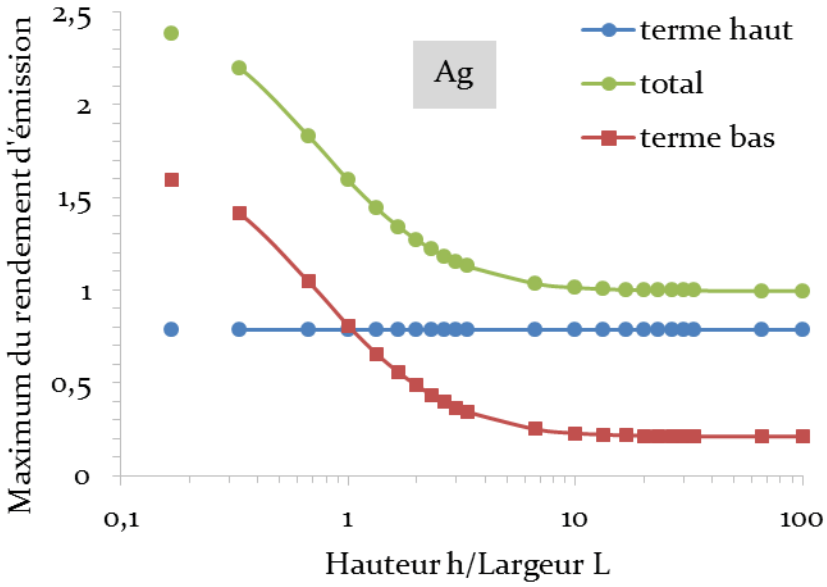
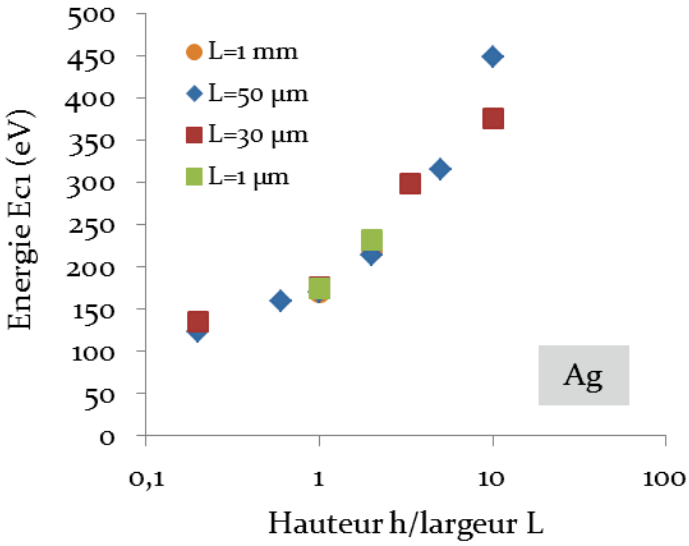


FIGURE 5.8. Étude via un modèle analytique du maximum du rendement d'émission électronique pour un échantillon d'argent présentant des rainures à sa surface de hauteur h, de largeur L, et de distance $d = L$ entre deux structures voisines. La courbe bleue correspond aux électrons émis par le haut des structures, la courbe rouge à ceux émis par le bas et non recollectés. La courbe verte correspond au rendement d'émission total.

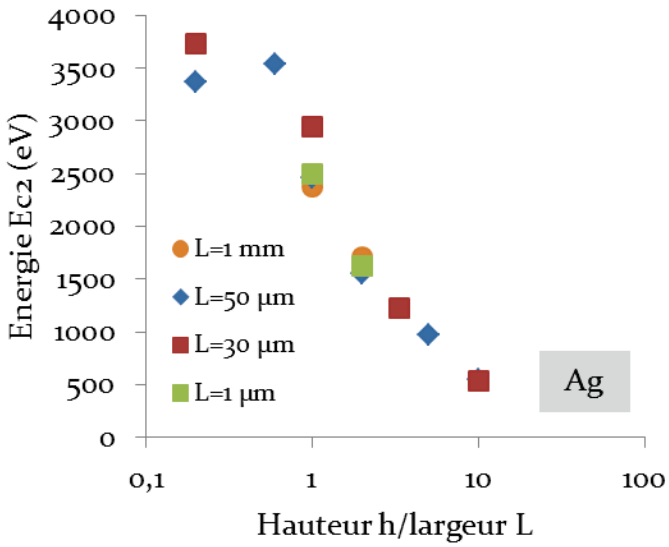
POINTS DE CROSS-OVER

Lorsque le rendement d'émission électronique diminue, nous pouvons voir sur la FIGURE 5.5 que le premier point de cross-over Ec_1 (σ=1) est décalé vers les hautes énergies. De manière opposée, le deuxième point de cross-over Ec_2 est décalé vers les basses énergies. Pour l'argent théorique, les simulations du module MicroElec indiquent que le premier point de cross-over Ec_1 a une valeur d'environ 125,7 eV, et que le deuxième point de cross-over Ec_2 a une valeur d'environ 3633,8 eV. Afin d'évaluer qualitativement la modification des points de cross-over induite par les structures en rainures, nous avons reporté les énergies des points de cross-over des rendements de la FIGURE 5.5 sur la FIGURE 5.9. La FIGURE 5.9a indique l'évolution de l'énergie des points de cross-over Ec_1 en fonction du rapport de la hauteur h sur la largeur L des structures. Pour les dimensions étudiées, le premier point de cross-over Ec_1 a une énergie qui augmente allant de 125,7 à 448,35 eV. La FIGURE 5.9b présente l'évolution de l'énergie des points de cross-over Ec_2. Nous pouvons voir que pour les dimensions étudiées, le deuxième point de cross-over Ec_2 diminue et passe de 3727,3 à 533,1 eV. En tenant

compte des incertitudes, nous obtenons pour le modèle analytique une valeur de $h/L > 15$ à partir de laquelle nous n'avons pas observé de point de cross-over.



(a)



(b)

FIGURE 5.9. Évolution de l'énergie du (a) premier et du (b) deuxième points de cross-over en fonction du rapport de la hauteur h sur la largeur L des structures pour différentes valeurs de L entre le µm et le mm. Pour les dimensions étudiées, pour un rapport $h/L > 15$, nous n'avons pas observé de cross-over. Les énergies des points de cross-over ont été calculées par interpolation linéaire sur les rendements de la FIGURE 5.5. Les rendements sont calculés avec un pas de 50 ou 100 eV entre 100 et 600 eV et un pas de 200 eV pour les hautes énergies.

5.2.2. EFFET DE LA LARGEUR DES RAINURES

Dans cette deuxième partie de l'étude, j'ai gardé la hauteur h et la distance d entre deux structures voisines constantes et telles que $h \geq 10\ d$. La largeur L des structures varie entre le nanomètre et le millimètre.

RENDEMENT D'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE TOTAL

La FIGURE 5.10 montre l'évolution du rendement d'émission électronique en fonction de l'énergie d'incidence pour des structures en argent de dimensions $d = 50\ \mu m$, de hauteur $h = 500\ \mu m$, et différentes valeurs de largeur L. Dans la continuité de la FIGURE 5.5, la courbe noire représente le rendement d'émission électronique de l'argent théorique. La courbe verte correspond aux rendements obtenus précédemment avec $d = L = 50\ \mu m$ et $h = 500\ \mu m$. Nous pouvons constater qu'une diminution de la largeur des structures (ou distance séparant deux rainures) entraîne une diminution du rendement d'émission électronique.

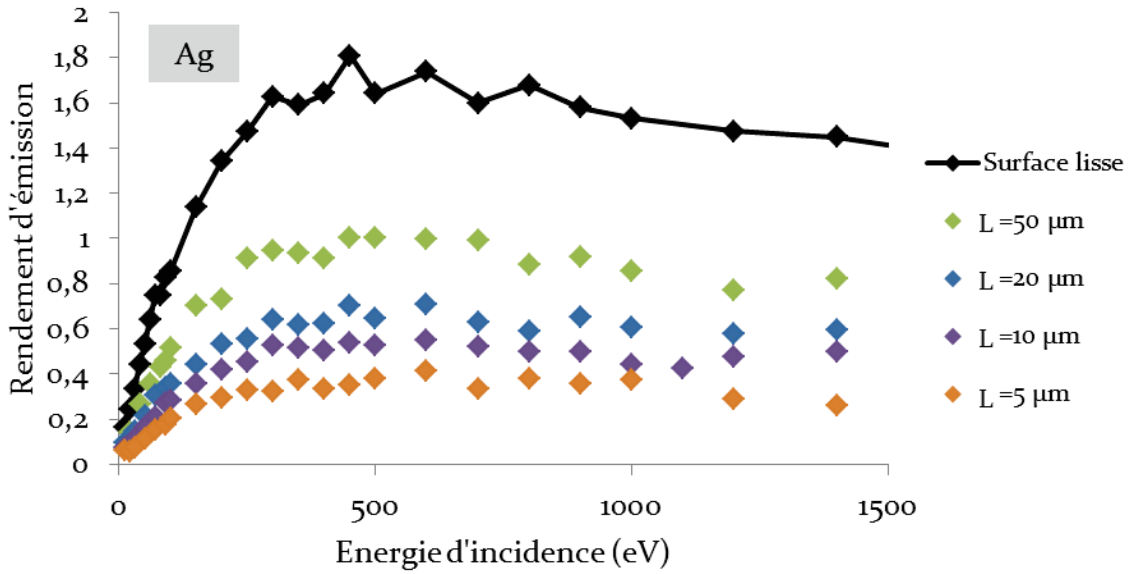


FIGURE 5.10. Évolution du rendement d'émission électronique en fonction de l'énergie d'incidence pour de l'argent présentant à sa surface des rainures de hauteur $h = 500\ \mu m$, de largeur de structure L entre 1 nm et 1 mm et L et d'espacement $d = 50\ \mu m$ entre deux structures voisines. Les fluctuations correspondent à des incertitudes. Pour les énergies inférieures à 100 eV, l'erreur sur le rendement est de 12 %. Pour les énergies supérieures, l'erreur est inférieure à 6 %.

RENDEMENT D'ÉMISSION DES SECONDAIRES ET DES RÉTRODIFFUSÉS

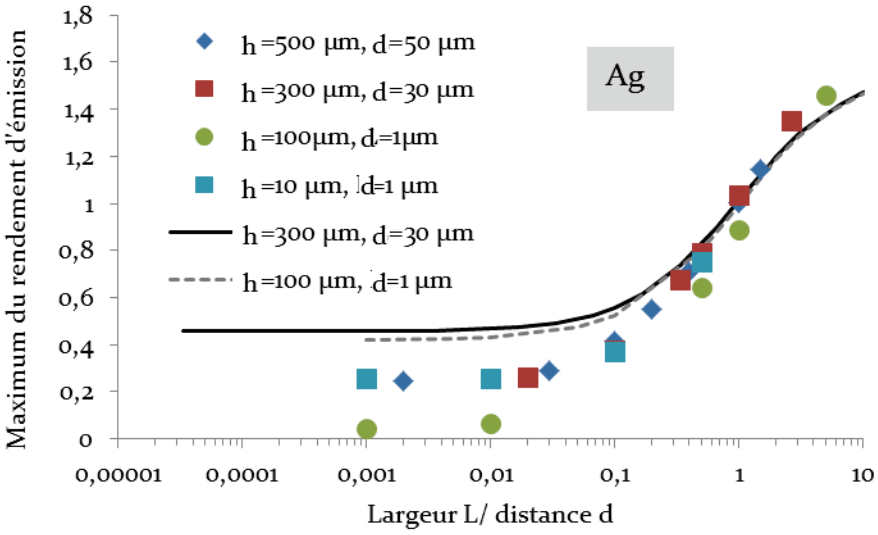
Afin d'évaluer plus précisément la diminution du rendement d'émission électronique observée dans la FIGURE 5.10, nous avons reporté sur la FIGURE 5.11a et sur la FIGURE 5.11b, respectivement, les maxima des rendements d'émission et les rendements des électrons rétrodiffusés qui leur sont associés, en fonction du rapport de la largeur des structures L et de la distance d entre deux structures voisines.

La FIGURE 5.11a montre qu'à partir d'un rapport $L/d = 0{,}1$ le rendement d'émission de l'argent devient constant et atteint une valeur proche de 0,35. Cette valeur correspond à une diminution du rendement d'environ 80 % par rapport au matériau théorique. Ce résultat est en accord avec les mesures expérimentales d'Aguilera et coll. **[AGU13]** qui montrent que pour une densité suffisante (10^2 μm^{-2}), des nanofils de cuivre ayant une hauteur très grande par rapport à leur largeur (facteur 10^3) permettent de fortement diminuer le rendement du cuivre.

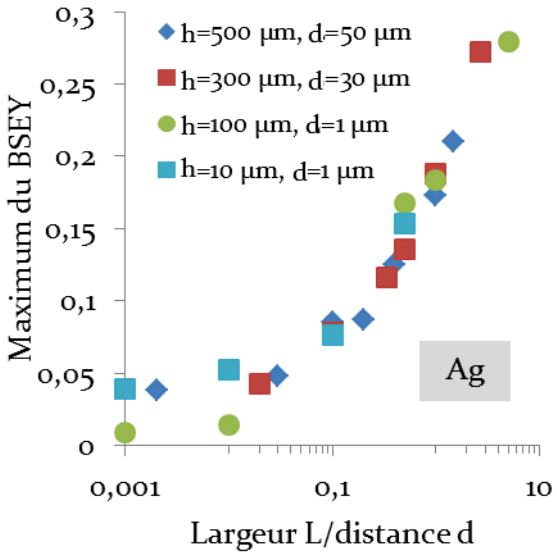
La FIGURE 5.11b, qui présente les rendements d'émission des électrons rétrodiffusés, nous indique que l'effet de recollection concerne à la fois les électrons secondaires et les électrons rétrodiffusés. Les FIGURE 5.11a et FIGURE 5.11b montrent que l'effet des rainures est le même quelles que soient les dimensions h et d des structures dans le cas où ces dimensions sont de même rapport et sont comprises entre le nanomètre et le millimètre. Ce résultat se retrouve sur les FIGURE 5.11a et FIGURE 5.11b qui montrent que des structures de dimensions $h/d = 100$ ont un rendement d'émission électronique plus faible que des structures de dimensions $h/d = 10$. En reprenant les résultats de la première partie de l'étude, nous pouvons voir que ce résultat est cohérent avec le modèle analytique déterminé précédemment.

MODÈLE ANALYTIQUE

Nous avons pu voir sur la FIGURE 5.11, de manière générale, un bon accord entre les simulations Monte-Carlo et l'expression analytique. Nous retrouvons la pente pour les valeurs $L/d \in [0{,}5\ ;\ 10]$ et l'apparition d'un palier pour $d > 10\ L$.



(a)



(b)

FIGURE 5.11. Évolution (a) du maximum du rendement d'émission électronique et (b) du maximum du rendement d'émission des électrons rétrodiffusés en fonction du rapport de la largeur L sur la distance d pour différentes largeurs entre 1 nm et 1 mm. Les maxima sont calculés avec un pas en énergie de 50 ou 100 eV pour des énergies d'incidence entre 100 et 600 eV. Les incertitudes pour le maximum du rendement d'émission sont d'environ 15 % pour un très faible rapport L/d et d'environ 10 % pour $L/d > 0,01$. Les incertitudes pour le rendement des électrons rétrodiffusés associés sont d'environ 16 % pour un faible rapport L/d et d'environ 10 % pour $L/d > 0,1$ sauf pour les premiers points de la courbe $h = 100$ µm et $d = 1$µm où les incertitudes sont d'environ 30 %. Sur les deux figures, les barres d'erreur sont de la taille des points. La courbe noire correspond au modèle analytique déterminé précédemment.

La FIGURE 5.12. présente l'évolution des différents termes de l'expression analytique (5. 8), et nous indique que dans le cas $h = 10\ d$, lorsque la largeur L des structures diminue, le nombre d'électrons émis par le haut des structures diminue jusqu'à atteindre une valeur proche de 0. De manière opposée, le nombre d'électrons émis par le bas des rainures et non recollectés augmente. Ce résultat s'explique par le fait que plus la largeur L est réduite, plus le nombre d'électrons incidents arrivant sur le bas des rainures est élevé. Nous avons vu précédemment que le modèle surestimait les électrons émis et non recollectés par les structures voisines. Ce point explique la surestimation du palier pour les rapports L/d faibles. L'écart apparaît pour une valeur $L = 5\ \mu m$ environ.

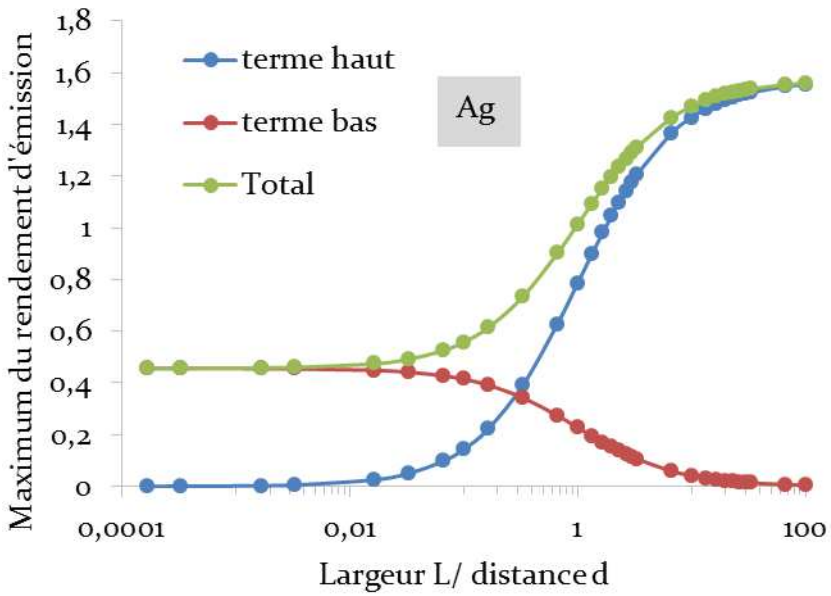


FIGURE 5.12. Étude via un modèle analytique du maximum du rendement d'émission électronique pour un échantillon d'argent présentant des rainures à sa surface de hauteur $h = 10\ d$, de largeur de structures L qui varie, et de distance d fixe entre deux structures voisines. La courbe bleue correspond aux électrons émis par le haut des structures, la courbe rouge à ceux émis par le bas et non recollectés. La courbe verte correspond au rendement d'émission total.

Nous avons retrouvé un résultat similaire pour les électrons rétrodiffusés. Par ailleurs, dans le cas où $h = 100\ d$, nous retrouvons une tendance similaire aux simulations Monte-Carlo. En effet, nous pouvons voir sur la FIGURE 5.11 qu'une augmentation de la profondeur h diminue la valeur du palier pour $L/d < 0{,}1$.

La FIGURE 5.13 présente l'évolution des différents termes de l'expression analytique (5. 8), dans le cas où $h = 10\,L$ lorsque la distance d entre deux structures diminue et que la largeur L est gardée constante.

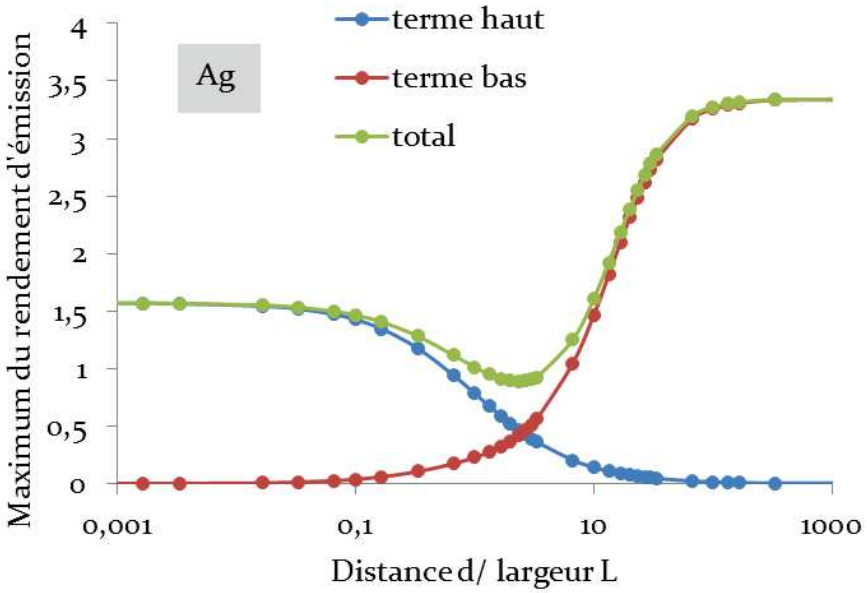


FIGURE 5.13. Étude via un modèle analytique du maximum du rendement d'émission électronique pour un échantillon d'argent présentant des rainures à sa surface de hauteur $h = 10\,d$, de largeur L fixe, et de distance d qui varie entre deux structures voisines. La courbe bleue correspond aux électrons émis par le haut des structures, la courbe rouge à ceux émis par le bas et non recollectés. La courbe verte correspond au rendement d'émission total.

Nous pouvons constater que lorsque le rapport d/L est grand, nous retrouvons un rendement très élevé. Ce résultat s'explique par le fait que les électrons incidents arrivent majoritairement sur le bas des rainures. En ce sens, nous nous attendons à retrouver un rendement identique à celui de l'argent sans rugosité. Nous pouvons expliquer l'écart entre la valeur attendue et la valeur observée par le fait que notre expression analytique surestime le nombre d'électrons émis par le bas des structures et non recollectés. A l'opposé, lorsque la largeur des rainures diminue, les électrons issus du bas des structures sont presque entièrement recollectés par les structures voisines. et les électrons incidents arrivent davantage sur le haut des structures. La compétition entre ces deux tendances explique l'existence d'un optimum pour le maximum du rendement d'émission électronique. Nous obtenons cet optimum pour $h = 10\,L$, et $d = 2\,L$ (dans le cas où L est fixe).

CAS LIMITES POUR LES STRUCTURES EN RAINURES

En tenant compte des limites de l'application GEANT4 que nous avons utilisée, nous avons donné des résultats pour des structures de dimensions caractéristiques entre le nanomètre et le millimètre. Cependant, nous pouvons voir, par des considérations géométriques simples, qu'il existe des cas limites, non atteints dans ces dimensions, que nous avons représentés sur la FIGURE 5.14.

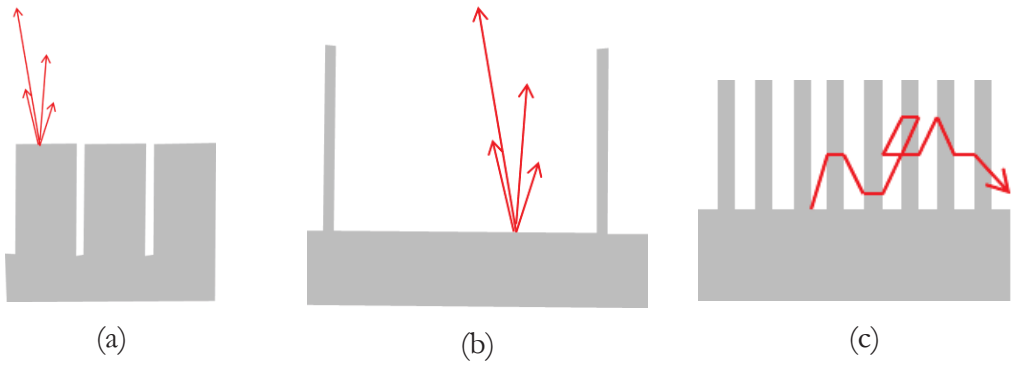


FIGURE 5.14. Cas limites de géométrie pour les rainures. La surface est modélisée par (a) des rainures de très faible largeur, (b) des rainures de très grande largeur, et (c) des rainures de très faible largeur et très rapprochées les unes des autres.

Dans le cas de rainures de très faible largeur (a), la plupart des électrons incidents arrivent sur le sommet des structures. De même, lorsque les rainures sont très larges (b), les électrons incidents arrivent majoritairement sur le fond des rainures. Nous nous attendons alors à ce que ces configurations donnent des résultats similaires à ceux d'un matériau sans rugosité.

En combinant les configurations (a) et (b), nous pouvons obtenir la configuration (c) dans laquelle les rainures et la distance qui les séparent sont de très faibles largeurs. Dans cette configuration, les électrons peuvent traverser plusieurs structures adjacentes. Dans ce cas, nous avons une diminution du rendement d'émission électronique uniquement si le matériau est suffisamment grand pour que les électrons ne puissent pas s'échapper par ses côtés et atteindre directement le détecteur.

5.2.3. COMPARAISON ENTRE L'ARGENT ET L'ALUMINIUM

Les simulations présentées précédemment dans les sections 5.2.1 et 5.2.2 et réalisées pour l'argent ont été faites de manière analogue pour l'aluminium. La FIGURE 5.15 présente une comparaison du rendement d'émission électronique relatif, pour ces deux matériaux, en fonction du rapport de l'espacement d entre deux structures sur la largeur L des structures. Le rendement d'émission des deux matériaux théoriques correspond à 100 %. La FIGURE 5.15 montre que les résultats obtenus sont similaires pour les deux matériaux. Pour des dimensions $L/d = 0{,}1$ et $h/d = 10$, la diminution du rendement observée pour l'aluminium est également d'environ 80 %. Nous retrouvons le résultat mis en avant par le modèle analytique simple que nous avons décrit précédemment : l'effet des rainures est purement géométrique.

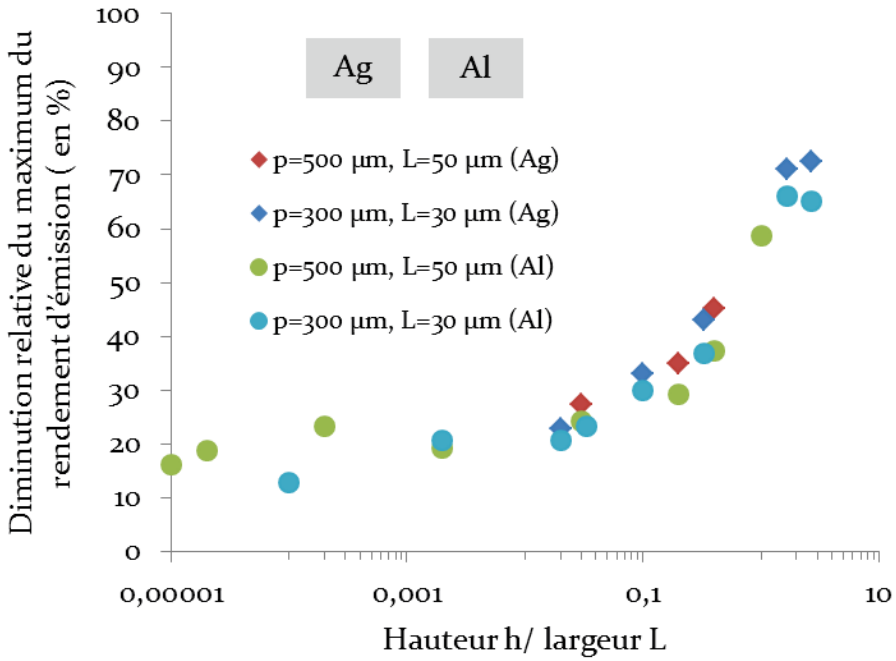


FIGURE 5.15. Évolution du rendement relatif de l'argent présentant des rainures à sa surface en fonction du rapport de la distance d entre deux structures sur la largeur L des structures et une hauteur h des rainures $h = 10d$ pour différentes valeurs de d pour l'argent et l'aluminium. La valeur de 100 % correspond au rendement des matériaux théoriques.

5.3. ÉTUDE DE L'EFFET DES DAMIERS SUR LE RENDEMENT D'ÉMISSION

Dans une deuxième étude, j'ai cherché à identifier l'effet des damiers à la surface des matériaux sur le rendement d'émission électronique. Dans les simulations, ces structures sont décrites par trois paramètres : leur hauteur h, leur largeur L et la distance d entre deux structures voisines. Ces notations sont reportées sur la FIGURE 5.16 et sont analogues aux notations des sections précédentes.

De manière similaire à l'étude de l'effet des rainures décrite dans la section 5.2, la première partie de l'étude (FIGURE 5.16, gauche) a consisté à varier la hauteur h des damiers en conservant la largeur L et la distance d constantes telles que $L = d$. La deuxième partie de l'étude (FIGURE 5.16, droite) a consisté à diminuer la distance d entre deux damiers en conservant une hauteur h et une largeur L constantes et telles que $h \geq 10\,L$. Les simulations ont été réalisées pour l'argent avec des paramètres h, L et d compris entre 0,5 nm et 2 mm.

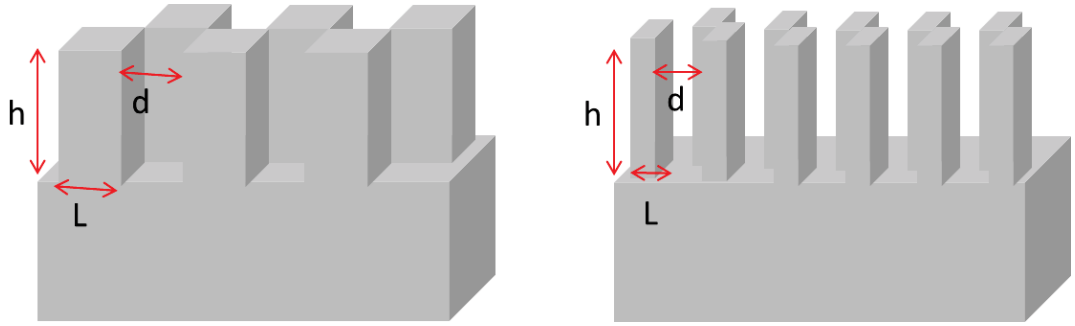


FIGURE 5.16. Schéma des rainures utilisées (gauche) dans la première partie de l'étude et (droite) dans la deuxième partie de l'étude.

5.3.1. EFFET DE LA HAUTEUR DES DAMIERS

Dans cette première partie de l'étude, j'ai gardé la largeur L des damiers et la distance d entre deux structures voisines constantes et de même valeur. La hauteur h des damiers varie entre 0 nm (surface sans rugosité) et 2 mm.

RENDEMENT D'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE TOTAL

La FIGURE 5.17 montre l'évolution du rendement d'émission électronique en fonction de l'énergie d'incidence pour des structures en argent de largeur $L = d = 50\ \mu m$ et de différentes hauteurs h. La courbe noire représente le rendement d'émission électronique de l'argent théorique. De manière similaire aux rainures, les simulations du module MicroElec montrent qu'une augmentation de la hauteur des damiers entraîne une diminution du rendement d'émission électronique. Un résultat similaire a été observé sur les simulations Monte-Carlo de Ye et coll. **[YE17]** sur des nano-cônes de dimensions entre le nanomètre et le micromètre en cuivre et en acier.

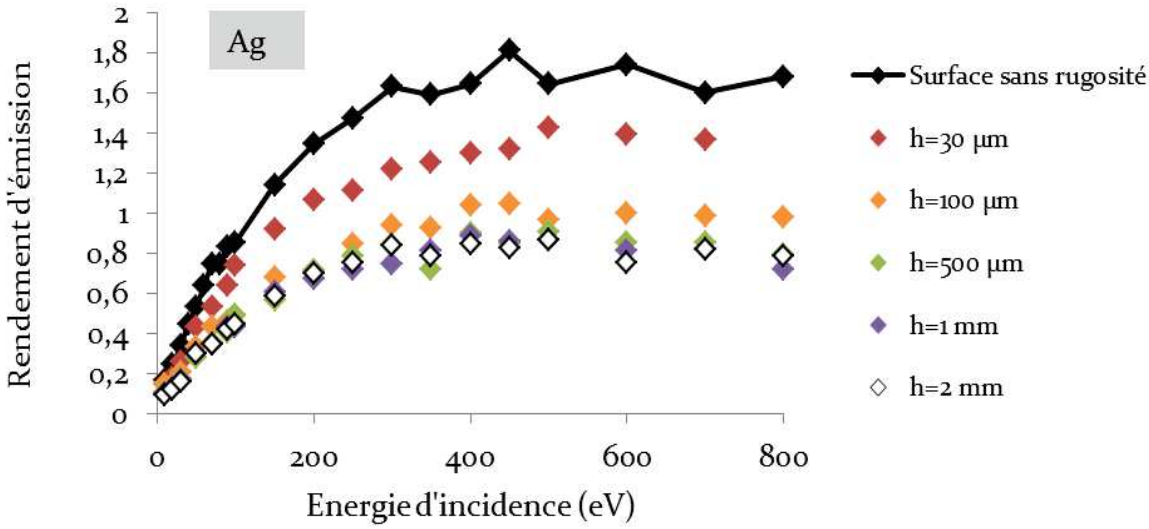
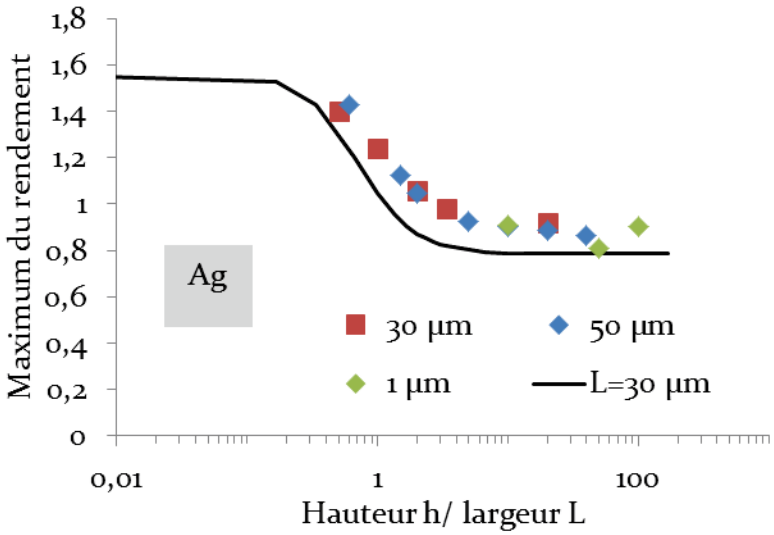


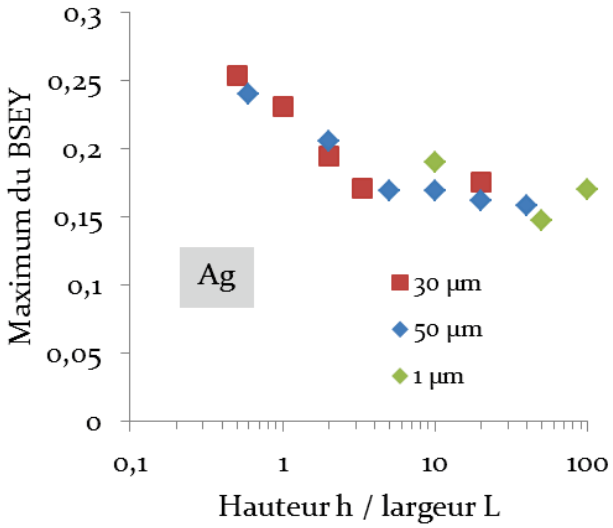
FIGURE 5.17. Évolution du rendement d'émission électronique en fonction de l'énergie d'incidence pour de l'argent présentant à sa surface des damiers de différentes hauteurs h, de largeur $L = 50\ \mu m$ et d'espacement $d = L$ entre deux structures voisines. Les fluctuations correspondent à des incertitudes. Pour les énergies inférieures à 100 eV, l'erreur sur le rendement est de 10 %. Pour les énergies supérieures, l'erreur est inférieure à 4 %.

RENDEMENT D'ÉMISSION DES SECONDAIRES ET DES RÉTRODIFFUSÉS

Afin d'évaluer plus précisément cette diminution, nous avons reporté sur la FIGURE 5.18a et la FIGURE 5.18b, respectivement, les maxima des rendements d'émission et les rendements d'émission des électrons rétrodiffusés associés, en fonction du rapport de la hauteur h sur la largeur L des damiers.



(a)



(b)

FIGURE 5.18. Évolution (a) du maximum du rendement d'émission électronique et (b) du rendement d'émission des électrons rétrodiffusés associé en fonction du rapport de la hauteur *h* sur la largeur *L* des damiers pour différentes largeurs entre 1 nm et 1 mm. Les maxima sont calculés avec un pas en énergie de 50 ou 100 eV pour des énergies d'incidence entre 100 et 600 eV. L'incertitude des maxima du rendement d'émission est inférieure à 5 %. L'incertitude des rendements des électrons rétrodiffusés est d'environ 10 %.

La FIGURE 5.18a montre qu'à partir d'un rapport $h/L = 10$, le rendement d'émission de l'argent devient constant et atteint une valeur proche de 0,9. Cette valeur correspond à une diminution du rendement d'environ 50 % par rapport au matériau

théorique. De manière similaire aux rainures, la valeur du palier est conditionnée par le rapport des surfaces en haut et en bas des structures.

La FIGURE 5.18b, qui présente les maxima des rendements d'émission des électrons rétrodiffusés, nous indique que l'effet de recollection concerne l'ensemble des électrons. Les FIGURE 5.18a et FIGURE 5.18b montrent que l'effet des damiers est le même quelles que soient les dimensions L et d des structures pour $L = d$, avec L et d comprises entre le nanomètre et le millimètre. Nous pouvons expliquer ce résultat par un modèle analytique, tel que représenté par la courbe noire sur la FIGURE 5.18a.

MODÈLE ANALYTIQUE

De même que pour les rainures, les rendements d'émission électronique associés aux électrons émis par le haut des damiers σ_{haut} et aux électrons émis par le bas des structures σ_{bas} (avant l'étape de recollection) sont directement proportionnels à σ_0 et à l'aire irradiée par les électrons incidents :

$$\sigma_{haut} = \sigma_0 \frac{L^2}{L^2 + d^2} \quad \textbf{(5. 9)}$$

$$\sigma_{bas} = \sigma_0 \frac{d^2}{L^2 + d^2} \quad \textbf{(5. 10)}$$

Afin d'obtenir l'expression du rendement d'émission électronique dans le cas de damiers de dimensions $L = d$, nous allons déterminer le rendement des électrons recapturés par le bas des structures.

La FIGURE 5.19. représente une vue de dessus et une vue de face des damiers. Dans la configuration $L = d$, nous pouvons considérer que les électrons qui ne sont pas recollectés par les quatre structures sont les électrons qui atteignent le sommet d'une demi-sphère de rayon correspondant $d/2 = L/2$. Dans cette hypothèse, les électrons issus du bas des structures et non recollectés sont ceux possédant un angle θ supérieur à un angle limite θ_{lim}. Nous pouvons considérer l'angle limite θ_{lim} tel que :

$$tan\theta_{lim} = \frac{h}{\sqrt{\left(\frac{d}{2}\right)^2 + \left(\frac{L}{2}\right)^2}} = \frac{\sqrt{2}h}{d} \quad \textbf{(5. 11)}$$

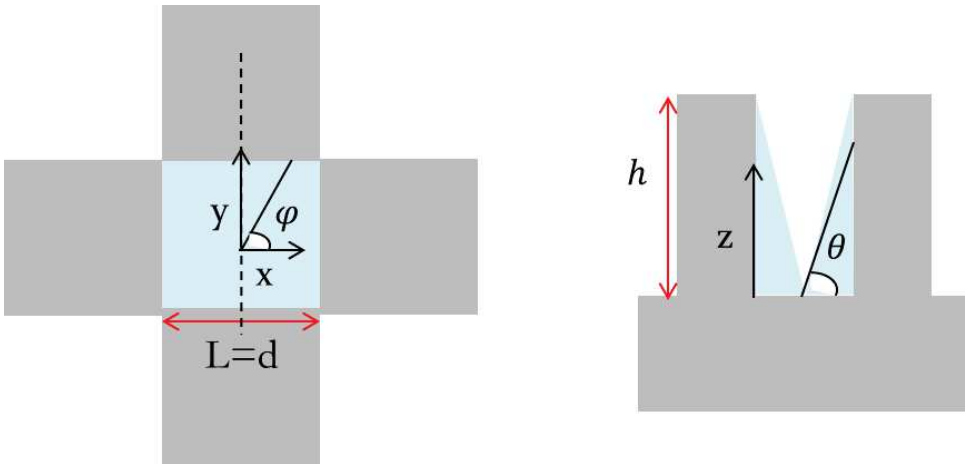


FIGURE 5.19. Schéma des damiers utilisés dans l'étude (vue de dessus et vue de côté). Les électrons recollectés par les structures sont situés dans l'aire en bleu.

Dans l'hypothèse où les électrons émis suivent une distribution lambertienne, le rendement d'émission associé aux électrons émis par le bas des structures et non recapturés est donné par l'équation (5. 12).

$$\sigma_{bas\ non\ recapturés} = \sigma_{bas} \frac{\int_{\varphi=0}^{2\pi}\int_{\theta lim}^{\pi/2} sin\theta cos\theta d\theta d\varphi}{\int_{\varphi=0}^{2\pi}\int_{0}^{\pi/2} sin\theta cos\theta d\theta d\varphi}$$

$$= \sigma_0 \frac{d^2}{L^2+d^2}\left[1 - sin^2(\arctan(\frac{\sqrt{2}h}{d})\right] \quad \textbf{(5. 12)}$$

$$= \sigma_0 \frac{d^2}{L^2+d^2}\left[\frac{1}{1+\left(\frac{\sqrt{2}h}{d}\right)^2}\right]$$

Nous déduisons l'expression analytique (5. 13) :

$$\sigma = \sigma_0 \frac{L^2}{L^2+d^2} + \sigma_0 \frac{d^2}{L^2+d^2}\left[1 - sin^2(\arctan(\frac{\sqrt{2}h}{d})\right] \quad \textbf{(5. 13)}$$

Nous avons vu sur la FIGURE 5.18, de manière générale, un bon accord entre les simulations Monte-Carlo et cette expression analytique. En effet, nous retrouvons la pente pour les valeurs $h/L \in [0{,}1; 10]$ ainsi que le palier pour $h > 10L$. Nous pou-

vons remarquer que lorsque la hauteur h des damiers devient très grande, l'expression analytique se simplifie en $\sigma = \sigma_0/2$.

La FIGURE 5.20 présente l'évolution des différents termes de l'expression analytique (5. 13), et nous indique que dans le cas où $L = d$, l'augmentation de la hauteur permet surtout la diminution du nombre d'électrons émis par le bas des structures. Ce résultat est attribué à l'effet de recollection.

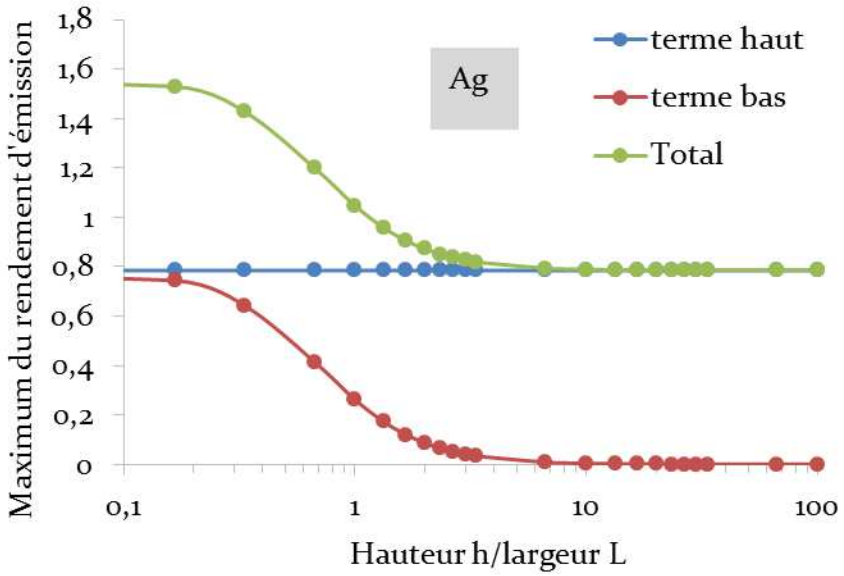
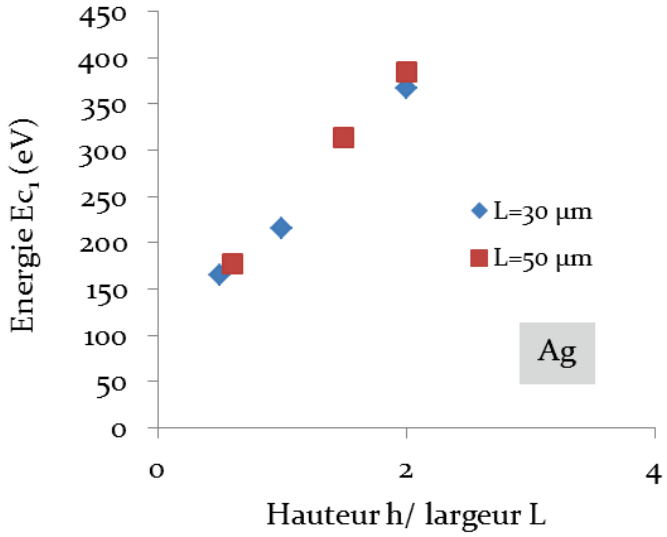


FIGURE 5.20. Étude via un modèle analytique du maximum du rendement d'émission électronique pour un échantillon d'argent présentant des damiers à sa surface de hauteur $h = 10\,L$, de largeur L, et de distance d entre deux structures voisines. La courbe bleue correspond aux électrons émis par le haut des structures, la courbe rouge à ceux émis par le bas et non recollectés. La courbe verte correspond au rendement d'émission total.

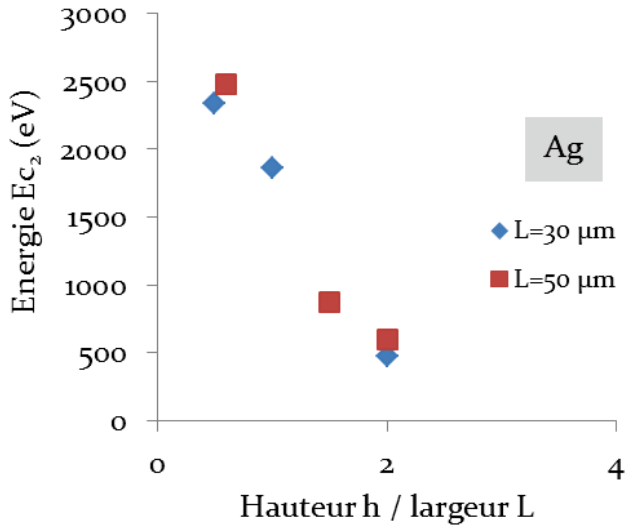
POINTS DE CROSS-OVER

La FIGURE 5.21a indique l'évolution de l'énergie des premiers points de cross-over Ec_1 en fonction du rapport de la hauteur h sur la largeur L des damiers. La FIGURE 5.21b présente l'évolution de l'énergie des deuxièmes points de cross-over.

Pour les dimensions que nous avons étudiées, nous pouvons voir que le premier point de cross-over Ec_1 a une énergie qui augmente, allant de 177,93 à 384,23 eV. Au contraire, le deuxième point de cross-over Ec_2 diminue et passe de 2480,2 à 497,70 eV.



(a)



(b)

FIGURE 5.21. Évolution de l'énergie du (a) premier et du (b) deuxième points de cross-over en fonction du rapport de la hauteur h sur la largeur L des damiers pour différentes valeurs de L entre 1 µm et 1 mm. Pour un rapport $h/L > 5$, nous n'avons pas observé de cross-over. Les énergies des points de cross-over ont été calculées par interpolation linéaire sur les rendements de la FIGURE 5.17. Les rendements sont calculés avec un pas de 50 ou 100 eV entre 100 et 600 eV et un pas de 200 eV pour les hautes énergies. Le modèle analytique donne une valeur limite de $h/L > 1,16$.

5.3.2. EFFET DE LA LARGEUR DES DAMIERS

Dans cette deuxième partie de l'étude, de manière parfaitement analogue aux rainures, j'ai gardé la hauteur h et la la distance d entre deux structures voisines constantes et telle que $h \geq 10\ d$. La largeur L des damiers varie entre le nanomètre et le millimètre.

RENDEMENT D'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE TOTAL

La FIGURE 5.22 montre l'évolution du rendement d'émission électronique en fonction de l'énergie d'incidence pour des structures en argent de distance d entre deux structures voisines telles que $d = 50\ \mu m$, de hauteur $h = 500\ \mu m$ et différentes valeurs de largeurs L.

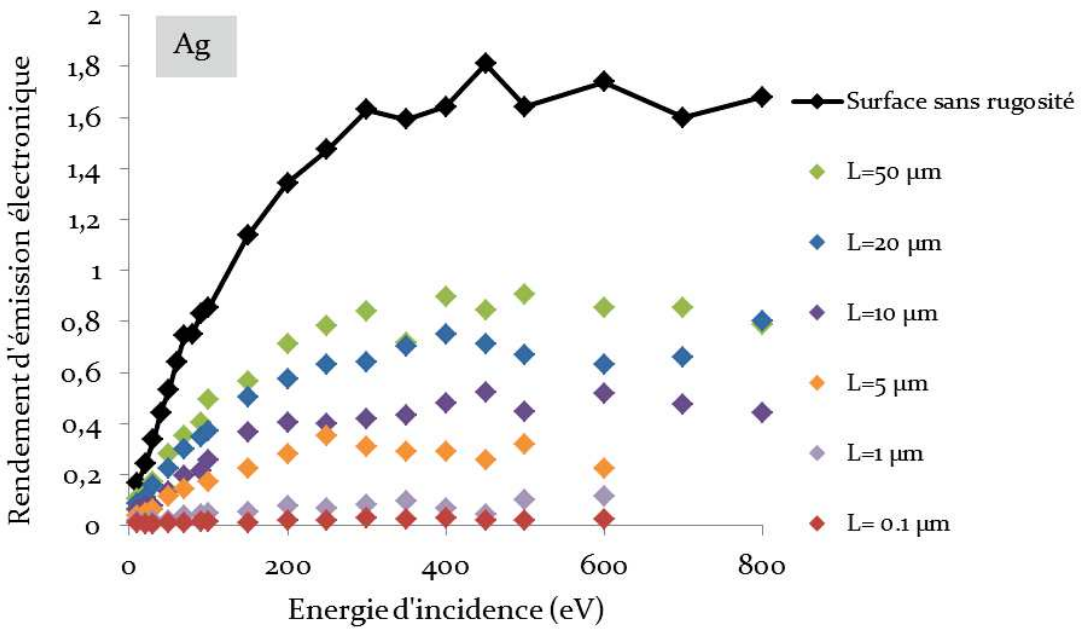


FIGURE 5.22. Évolution du rendement d'émission électronique en fonction de l'énergie d'incidence pour de l'argent présentant à sa surface des damiers de hauteur $h = 500\ \mu m$, de largeur L entre 10 µm et 1 mm et d'espacement d entre deux structures voisines $d = 50\ \mu m$. Les fluctuations correspondent à des incertitudes. À l'exception des courbes pour $L = 1\ \mu m$ et $L = 0,1\ \mu m$, pour les énergies inférieures à 100 eV, l'erreur sur le rendement est de 12 %. Pour des énergies supérieures, l'erreur est inférieure à 6 %. Pour les courbes pour $L = 1\ \mu m$ et $L = 0,1\ \mu m$, l'erreur est inférieure à 30 %.

La courbe noire correspond au rendement d'émission électronique de l'argent théorique. La courbe verte correspond aux rendements obtenus précédemment avec $d = L = 50\ \mu m$ et $h = 500\ \mu m$. De manière similaire aux rainures, les simulations du module MicroElec montrent qu'une diminution de la largeur L des damiers entraîne une diminution du rendement d'émission électronique.

RENDEMENT D'ÉMISSION DES SECONDAIRES ET DES RÉTRODIFFUSÉS

De manière analogue au cas précédent, nous voyons sur la FIGURE 5.23a, qui montre les maxima des rendements d'émission en fonction du rapport de la largeur L sur la distance d entre deux structures, que le rendement d'émission de l'argent diminue significativement.

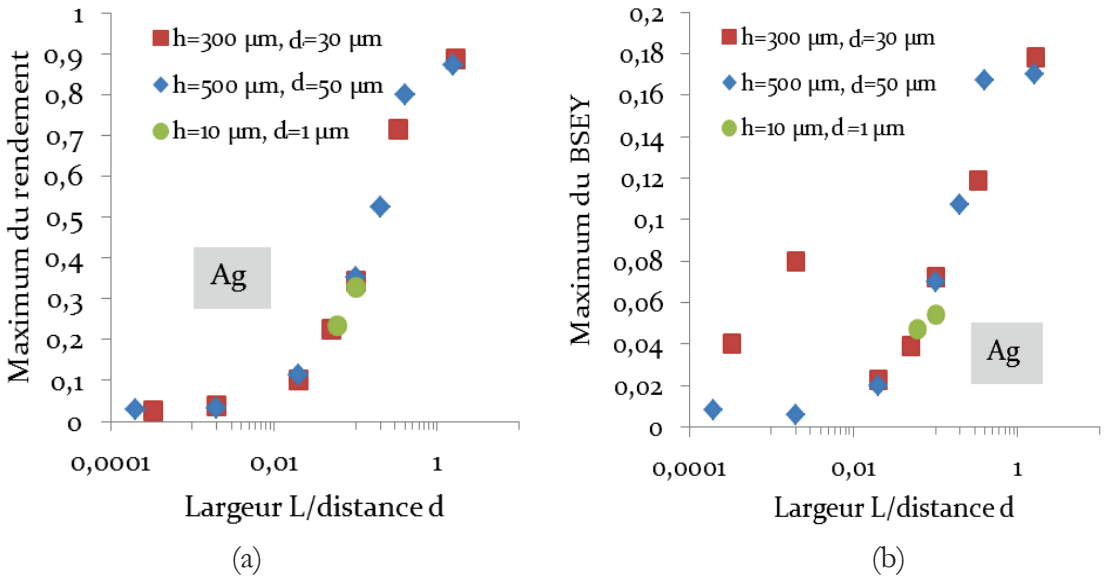


FIGURE 5.23. Évolution (a) du maximum du rendement d'émission électronique et (b) du rendement d'émission des électrons rétrodiffusés associé en fonction du rapport L/d pour différentes largeurs L entre 1 nm et 1 mm. Les maxima sont calculés avec un pas en énergie de 50 ou 100 eV pour des énergies d'incidence entre 100 et 600 eV.

Pour un rapport $L/d = 0{,}1$, le rendement atteint une valeur proche de 0,35. Cette valeur correspond à une diminution du rendement d'environ 80 % par rapport au matériau théorique. La FIGURE 5.23b, qui présente les maxima des rendements d'émission des électrons rétrodiffusés, nous indique que l'effet de recollection concerne

l'ensemble des électrons. L'effet des damiers reste identique, quelles que soient les dimensions h et d des structures, dans le cas où le rapport entre ces dimensions est conservé, pour des dimensions entre le nanomètre et le millimètre. De manière similaire aux rainures, nous pouvons conclure que l'effet des damiers ne dépend que du rapport entre les dimensions des structures.

5.3.3. COMPARAISON ENTRE LES RAINURES ET LES DAMIERS

Nous avons pu voir à travers les résultats précédents que l'ajout de rainures ou de damiers permet d'obtenir une diminution significative du rendement d'émission électronique. La FIGURE 5.24 présente une comparaison du maximum du rendement d'émission électronique de l'argent lorsque la hauteur h (ou la profondeur) augmente pour les deux types de structures, dans le cas où les autres dimensions des structures sont constantes et égales.

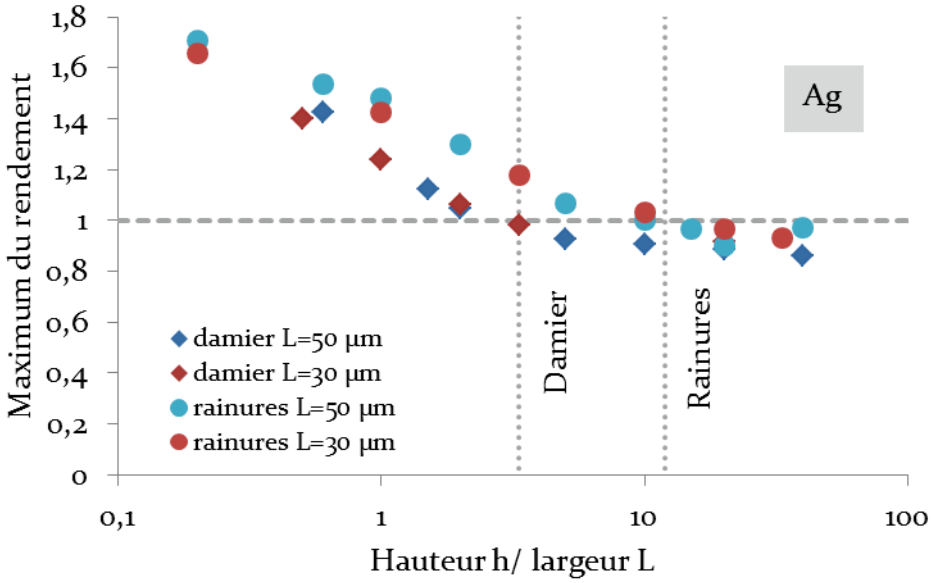


FIGURE 5.24. Comparaison du maximum du rendement d'émission électronique de l'argent présentant des rainures ou des damiers en fonction du rapport de la hauteur h sur la largeur L des structures, pour des dimensions $d = L = 50\ \mu m$ et $d = L = 30\ \mu m$.

Nous pouvons constater que les damiers permettent d'obtenir un rendement d'émission électronique inférieur à l'unité pour une hauteur plus faible que les rainures. Ce résultat est mis en évidence sur la FIGURE 5.25 qui reporte les valeurs des rapports de la hauteur h des structures sur la largeur L à partir desquels nous n'avons pas observé de point de cross-over. Malgré le faible nombre de points, nous pouvons constater sur la FIGURE 5.25 que le rendement d'émission électronique de l'argent ne présente pas de points de cross-over à partir d'une hauteur plus faible pour les damiers que pour les rainures. Toutefois, nous nous attendons à ce que cet écart soit moins marqué pour les structures de faibles dimensions.

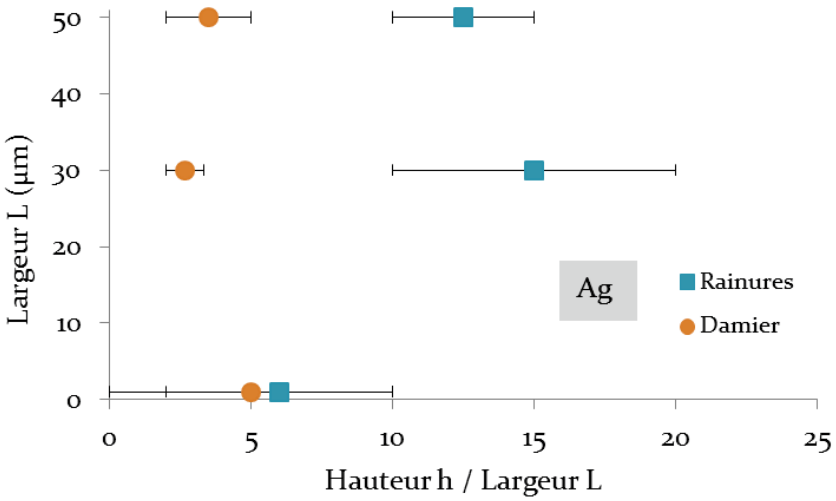


FIGURE 5.25. Comparaison des rapports de la hauteur h sur la largeur L pour lesquels il n'y a pas de points de cross-over pour la courbe de rendement d'émission électronique de l'argent, dans le cas de rainures et de damiers. L'incertitude correspond à l'écart des paramètres entre deux simulations.

Un comportement similaire est visible sur la FIGURE 5.26, qui présente une comparaison du maximum du rendement d'émission électronique en fonction du rapport de la distance d entre deux structures voisines sur la largeur L pour les deux types de structures. Nous pouvons observer que pour des rapports L/d très faibles, dans le cas de hauteur $h = 10\,d$, les deux structures permettent d'obtenir un rendement d'émission électronique constant. Ce rendement est beaucoup plus faible dans le cas de motifs en damiers que dans le cas des rainures. La diminution maximale du rendement

d'émission électronique est d'environ 98 % pour les damiers, et d'environ 84 % pour les rainures.

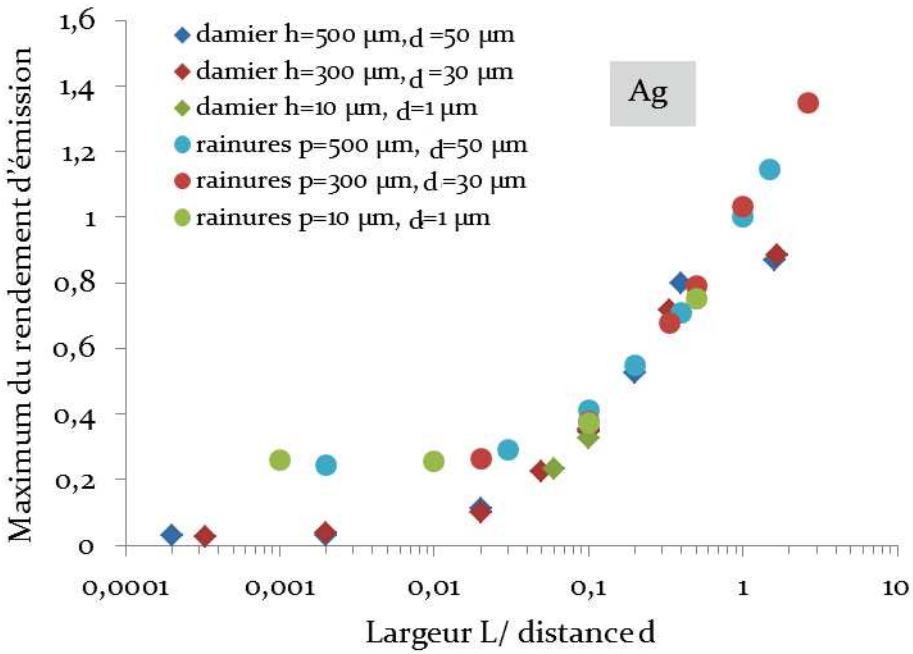


FIGURE 5.26. Comparaison du maximum du rendement d'émission électronique de l'argent en fonction du rapport de la distance *d* entre deux structures voisines sur la largeur *L* dans le cas rainures et de damiers.

5.4. DISCUSSION : APPLICATIONS Á DES SYSTÈMES RÉELS

Dans ce chapitre 5, grâce aux modifications que nous avons apportées au module MicroElec, nous avons modélisé des échantillons d'aluminium et d'argent avec des rugosités simples à leur surface. Toutefois, les matériaux étudiés ne présentent pas d'oxydation, ni de contamination. Le relief ayant un effet purement géométrique, nous nous attendons à ce que, pour un matériau oxydé, contaminé ou possédant une couche d'eau à sa surface, ces structures morphologiques entraînent la même diminution relative du rendement d'émission électronique. La comparaison de cette diminution relative entre les simulations MicroElec et des mesures expérimentales du dispositif DEESSE sur de l'argent exposé à l'air présentant des damiers à sa surface est illustrée sur la

FIGURE 5.27. Nous pouvons voir un bon accord entre les simulations et les données expérimentales, l'écart moyen sur les rendements relatifs étant au maximum d'environ 7 %. Toutefois, il s'agit d'un rendement relatif et nous devons, pour estimer correctement les rendements d'émission électronique des matériaux réels prendre en compte la contamination et l'oxydation à leur surface.

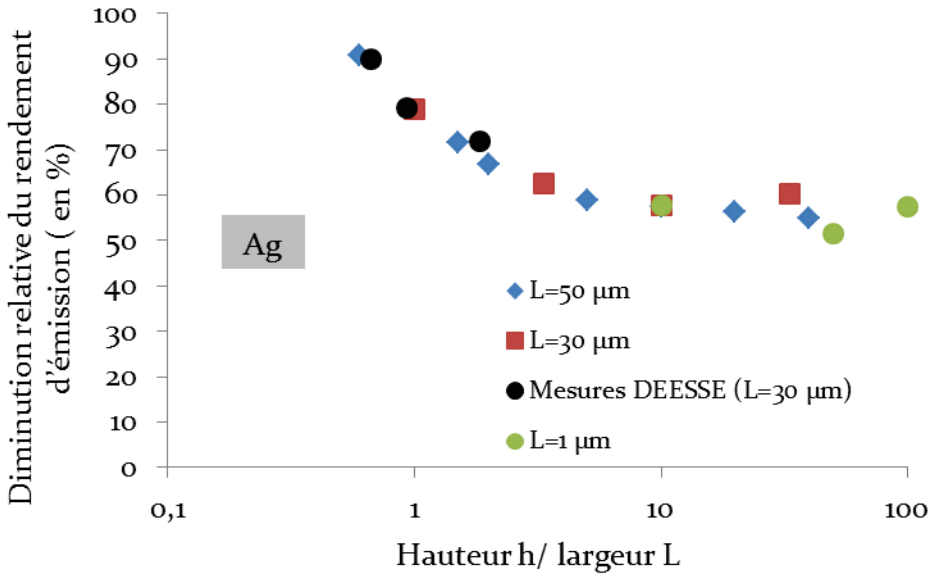


FIGURE 5.27. Diminution relative en % du rendement d'émission électronique pour de l'argent présentant des damiers à sa surface. Le rendement d'émission électronique de l'argent sans rugosité est de 100 %. Les mesures du dispositif DEESSE sont des mesures sur de l'argent exposé à l'air.

Nous avons présenté, dans ce chapitre, des simulations de rendement d'émission électronique pour une incidence normale $\theta = 0°$. Dans le cas de systèmes réels, les électrons peuvent arriver sur la surface du matériau avec un angle d'incidence rasant ou différent pour chaque électron. La FIGURE 5.28 montre, dans le cas de rainures, que lorsque les électrons arrivent avec une incidence isotrope (distribution lambertienne), la diminution du rendement d'émission électronique est moins importante que pour une incidence normale $\theta = 0°$. Ce résultat, qui peut s'expliquer par l'augmentation de l'angle d'incidence moyen des électrons, ne remet pas en cause le fait que l'atténuation du rendement d'émission en fonction des rapports entre les différentes dimensions des structures reste similaire.

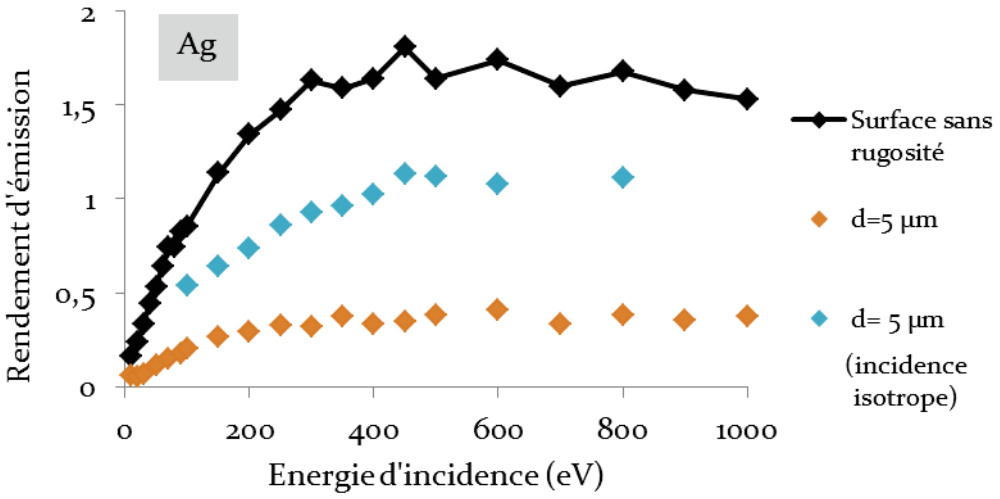


FIGURE 5.28. Rendement d'émission électronique pour un angle d'incidence $\theta = 0°$ et un angle d'incidence aléatoire entre 0 et 90°, suivant une distribution lambertienne pour de l'argent présentant des rainures de hauteur $h = 500\ \mu m$ et de largeur $L = 50\ \mu m$ à sa surface.

Par ailleurs, dans le cas de systèmes réels, nous devons également prendre en compte des contraintes ou des effets supplémentaires liés au fonctionnement du système. Par exemple, dans certaines applications comme les accélérateurs de particules, l'utilisation d'un champ magnétique peut avoir un fort impact sur l'incidence des électrons et ainsi modifier les rendements d'émission électronique **[WANG07]**. Par exemple, dans le cas d'un champ magnétique parallèle à la base des structures, l'effet du champ magnétique tend à réduire les rendements car il a tendance à augmenter les angles d'incidences **[WANG07]**.

Dans les équipements radiofréquences, les dimensions de la rugosité sont contraintes par les besoins de l'application. En effet, si les dimensions des structures $d_{structure}$ sont du même ordre de grandeur que la longueur d'onde $\lambda_{onde\ RF}$ du signal à transmettre, des effets d'interférences peuvent se produire. L'effet du relief de la surface étant le même à différentes échelles, tant que les rapports entre les dimensions sont conservés, cela permet de toujours trouver des conditions de réduction de l'émission électronique compatibles avec les ondes radiofréquences utilisées dans les systèmes. Par exemple, en utilisant des structures de dimensions comprises entre le nanomètre et le millimètre, nous obtenons la condition $d_{structure} \ll \lambda_{onde\ RF}$ où $\lambda_{onde\ RF} \approx 50\ mm$ pour une onde de 6 GHz. Cependant, les aspérités de la surface peuvent entraîner une perte de la puissance de l'onde radiofréquence que l'on souhaite transmettre. Dans le

but d'éviter le déclenchement de l'effet multipactor dans ces composants (chapitre 1), il est alors nécessaire de réaliser un compromis entre la diminution du rendement d'émission électronique et la perte de puissance de l'onde radiofréquence.

5.5. CONCLUSION

Nous avons vu, à travers ce chapitre 5, que l'impact de la rugosité sur le rendement d'émission électronique est le résultat d'une compétition entre différents mécanismes. D'une part, l'effet de bord, qui correspond au fait que les électrons incidents arrivant sur les sommets des structures morphologiques rencontrent peu de matière et est donc plus susceptibles d'entraîner une augmentation du rendement d'émission. D'autre part, l'augmentation de l'angle d'incidence moyen des électrons, due à la présence de pentes, entraîne également une augmentation du rendement d'émission électronique car en moyenne les électrons secondaires sont produits plus près de la surface du matériau. A l'opposé, l'effet de recollection, qui correspond au fait que les électrons émis entre deux structures morphologiques sont susceptibles d'être capturés par les reliefs avoisinants, permet une diminution du rendement d'émission électronique. Afin d'étudier l'effet de recollection, nous nous sommes intéressés au cas de structures morphologiques simples telles que les rainures et les damiers.

Nos simulations pour l'argent et l'aluminium théoriques ont montré que la présence de rainures ou de damiers, de largeur L entre le nanomètre et le millimètre, de hauteur $h = 10d$, et de largeur $L = 0{,}1\ d$ entre les structures, permettait de diminuer le rendement d'émission électronique d'environ 80 % par rapport au rendement du matériau sans relief, pour une incidence normale du faisceau incident. Nous avons pu constater que pour des dimensions égales, les damiers permettent d'obtenir une meilleure diminution du rendement. Pour des structures de grande hauteur et de faible largeur telles que $h = 10d$ et $L = 0{,}001d$, la diminution du rendement, pour des électrons arrivant en incidence normale, est d'environ 84 % pour les rainures et d'environ 98 % pour les damiers. En comparant, les simulations de l'argent théorique à des mesures expérimentales du dispositif DEESSE sur de l'argent exposé à l'air, et à des simulations sur de l'aluminium théorique, nous avons pu constater que l'effet de la rugosité est purement géométrique. Ce résultat signifie que l'utilisation de rainures ou de damiers pour diminuer le rendement d'émission électronique peut également s'appliquer à des maté-

riaux techniques, qui présentent de l'oxydation ou de la contamination. En ce sens, les résultats de ces travaux de thèse offrent des perspectives intéressantes pour les applications nécessitant des matériaux avec un faible rendement d'émission électronique, telles que les applications spatiales **[SEM08]**, ou les accélérateurs de particules **[WANG07]**.

CONCLUSION

L'espace est un milieu très contraignant pour les équipements embarqués à bord des satellites. Les électrons, ions, et protons de haute énergie qui les bombardent continuellement peuvent pénétrer à l'intérieur de leurs composants électroniques et engendrer des dysfonctionnements **[STA88]**. C'est le cas, par exemple, de l'effet multipactor, qui correspond à l'apparition d'une avalanche d'électrons de basse énergie dans les composants radiofréquences, et des effets de dose qui se produisent dans les composants microélectroniques.

Afin d'atténuer les effets des particules de l'environnement spatial dans les composants des satellites, il est nécessaire d'obtenir une meilleure compréhension du transport des électrons et, notamment, à basse énergie. La prise en compte de ces électrons nécessite des outils numériques, tels que les codes de transport de particules utilisant la méthode statistique de Monte-Carlo, valides jusqu'à des énergies de quelques eV et à des échelles de l'ordre du nanomètre. De tels codes permettent d'accéder à un grand nombre de paramètres critiques pour les applications, tels que le rendement d'émission électronique, les spectres en énergies, les parcours, les profondeurs caractéristiques, les doses ionisantes, les profondeurs d'échappement, etc. Au cours de ces travaux de thèse, nous nous sommes tout particulièrement intéressés au rendement d'émission électronique qui régit le seuil de déclenchement de l'effet multipactor **[KIS98]**.

Aux énergies considérées (10 eV – 2 keV), les électrons restent dans les premiers nanomètres de la surface des matériaux. En conséquence, l'état de la surface, tel que l'oxydation, la contamination ou la rugosité, peut avoir un impact important sur les propriétés d'émission électronique des matériaux **[GIN15]** — et donc pour les applications. L'état de la surface n'est habituellement pas pris en compte dans les codes de transport. Dans ce contexte, l'objectif de ces travaux de thèse est double : d'une part, il s'agit d'obtenir une meilleure compréhension du transport des électrons de basse énergie dans les matériaux, et notamment, de déterminer des paramètres critiques pour les applications tels que le rendement d'émission électronique ou les densités d'ionisations produites ; d'autre part, il s'agit de développer un code de transport pour les électrons à basse énergie permettant la modélisation de géométries 3D complexes pour prendre en compte l'état de la surface dans les simulations.

A basse énergie, le transport des électrons est le résultat d'une compétition entre différentes interactions : les interactions avec les noyaux, les interactions individuelles avec les électrons faiblement liés de la bande de conduction (métal) ou de la bande de valence (semi-conducteur, isolant), les excitations de plasmons de volume ou de plasmons de surface, les interactions avec les électrons de cœur, les processus de désexcitation Auger, les interactions avec les phonons (semi-conducteur, isolant), et la traversée de la barrière de potentiel de la surface. Dans un code de Monte-Carlo, cette compétition est gérée par l'entremise des libres parcours moyens associés aux sections efficaces de chacune des différentes interactions.

La détermination de ces libres parcours moyens est complexe et dépend, entre autres, aux énergies qui nous intéressent, de la structure des bandes électroniques des matériaux. Pour s'affranchir des disparités des structures de bandes électroniques, nous avons choisi d'utiliser la théorie de la fonction diélectrique **[NIK12]**, en particulier le modèle de Ritchie et Howie **[RIT77]**, aussi appelé « modèle de Drude étendu », qui présente l'avantage de fournir, à partir de données expérimentales **[PALI97]**, des informations sur les transferts en énergie avec les électrons les plus faiblement liés de la bande de valence et de la bande de conduction. Ce modèle a ainsi l'avantage de pouvoir décrire, à la fois, les métaux, les semi-conducteurs et les isolants.

La principale difficulté rencontrée a été d'obtenir de manière séparée, en utilisant des critères pour l'énergie de l'électron incident, pour l'énergie transférée et pour le moment transféré dans les équations du modèle, les libres parcours moyens associés aux interactions avec les électrons de cœur, aux interactions individuelles avec les électrons faiblement liés des bandes de conduction et de valence, et aux interactions avec les plasmons de volume. En adaptant les équations du modèle **[KUH99]**, nous avons aussi calculé le libre parcours moyen associé aux interactions avec les plasmons de surface. Les libres parcours moyens, que nous avons obtenus pour les différentes interactions, étant en bon accord avec les données de la littérature, ces premiers travaux nous ont permis d'étendre le code OSMOSEE, développé par l'ONERA et le CNES, et le module MicroElec, implémenté par le CEA dans le code GEANT4, à trois matériaux : l'aluminium, l'argent et le silicium.

Afin de valider les simulations des nouvelles versions des codes OSMOSEE et MicroElec, nous nous sommes intéressés aux grandeurs caractéristiques de l'émission électronique, telles que les spectres en énergie et les rendements d'émission. Ces grandeurs, accessibles par des mesures expérimentales, permettent de vérifier la cohérence des énergies transférées pour les différentes interactions, ainsi que le nombre

d'électrons émis par le solide. Pour ces deux grandeurs, les simulations des deux codes se sont révélées être en bon accord avec les mesures issues du dispositif DEESSE de l'ONERA réalisées sur des solides massifs décapés *in situ* sous ultravide **[GIN15]**, et les données disponibles dans la littérature, en particulier les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]** sur des couches minces évaporées *in situ* sous ultravide. Nous retrouvons, sur les spectres en énergie, les pics caractéristiques associés aux interactions avec les plasmons de surface, les plasmons de volume (et leurs multiples), ainsi que les interactions avec les électrons cœur (électrons Auger). Pour les rendements d'émission électronique, l'écart entre les simulations et les mesures expérimentales est d'environ 20 % en moyenne pour les trois matériaux, et ce, à différents angles d'incidence. Cet écart est du même ordre de grandeur que celui entre les mesures expérimentales du dispositif DEESSE **[GIN15]** et les mesures de Bronstein et Fraiman **[BRO69]**.

Toutefois, nous avons observé des différences pour les spectres en énergies des électrons, principalement à basse énergie, entre les simulations du code OSMOSEE et les mesures du dispositif DEESSE. Ces différences, davantage marquées pour l'aluminium et le silicium, peuvent être attribuées, d'une part, à une légère oxydation de la surface de l'échantillon, d'autre part, au fait que les simulations ne prennent pas en compte la réponse de l'analyseur (par exemple, les convolutions des pics). Des différences sur les rendements d'émission électroniques sont également apparues pour l'argent dans le cas d'un angle d'incidence rasant de θ=60°. Cela pourrait être dû à la présence de rugosité à la surface de l'échantillon **[GIN15]**. A très basse énergie, en dessous de 30 eV, les rendements d'émission obtenus par les codes sont du bon ordre de grandeur, mais des différences notables apparaissent avec les mesures expérimentales de Bronstein et Fraiman **[BRO69]**. A très basse énergie, nous atteignons certaines limites de la modélisation, notamment pour les modèles décrivant les interactions élastiques **[SAL05]**, la traversée de la barrière de potentiel de la surface, et les plasmons de surface, qui pourraient expliquer ces écarts.

Ces résultats nous ont permis d'obtenir une meilleure compréhension de la physique de l'émission électronique et ont, notamment, montré l'existence de deux régimes de transport d'électrons à basse énergie.

A très basse énergie, en dessous de 100 eV, les profondeurs de pénétration présentent un palier **[PIE17, ING17]**. Cela signifie qu'à ces énergies les électrons sont principalement déviés dans toutes les directions par les noyaux des atomes, et interagissent peu avec les autres électrons du solide. On peut alors assimiler le transport des électrons à ces énergies à une sorte de mouvement Brownien. Ces électrons restent en

moyenne concentrés dans les premiers nanomètres sous la surface. A ces énergies, où les interactions élastiques dominent le transport des électrons, l'énergie des électrons incidents est dissipée dans une épaisseur qui reste constante. En conséquence, le rendement d'émission électronique à très basse énergie augmente assez vite lorsque l'énergie d'incidence augmente.

Au-delà d'une centaine d'eV, par contre, le parcours des électrons augmente. Les électrons incidents vont alors atteindre des profondeurs plus élevées, et dissiper leur énergie plus en profondeur dans le solide. Les électrons secondaires produits le long de la trajectoire des électrons primaires sont créés plus loin de la surface, ce qui entraîne la diminution du rendement d'émission électronique à plus haute énergie.

Durant ces travaux de thèse, nous nous sommes également intéressés à l'effet de structures morphologiques simples telles que les rainures et les damiers sur le rendement d'émission électronique. Cette étude a été rendue possible grâce à l'implémentation de nos modèles physiques dans le module MicroElec du code GEANT4, qui permet la modélisation de géométries 3D complexes. La nouvelle version du module MicroElec, qui permet désormais la modélisation des rendements d'émission des électrons à basse énergie, permet ainsi de nous rapprocher des matériaux réels dans nos simulations.

Les simulations pour l'argent et l'aluminium, pour un faisceau d'électrons arrivant à incidence normale, nous ont montré que la présence de rainures ou de damiers, de largeur L entre le nanomètre et le millimètre, de hauteur $h = 10L$, et d'espacement $d = 0{,}1\,L$ entre deux structures voisines, permettait de diminuer le rendement d'émission électronique d'environ 80 % en incidence normale par rapport au rendement du matériau sans rugosité. Nous avons constaté que pour des dimensions égales, les damiers permettent d'obtenir une meilleure diminution du rendement. Pour des structures de grande hauteur et de faible largeur telles que $h = 10\,L$ et $d = 0{,}001\,L$, la diminution du rendement est d'environ 84 % pour les rainures et d'environ 98 % pour les damiers. Une comparaison de nos simulations avec des mesures expérimentales du dispositif DEESSE sur de l'argent exposé à l'air et présentant des structures en damier à sa surface, nous a confirmé que l'effet de la rugosité est purement géométrique. Ce résultat, qui peut aussi être mis en évidence par un modèle analytique simple, signifie que l'utilisation de rainures ou de damiers pour diminuer le rendement d'émission électronique peut s'appliquer aussi bien à des matériaux théoriques qu'à des matériaux réels dont la surface est oxydée ou contaminée. En ce sens, les résultats de ces travaux de thèse sur la rugosité offrent des perspectives intéressantes pour les applications nécessi-

tant des matériaux avec un faible rendement d'émission électronique dans le domaine spatial **[SEM08]**, ou dans les accélérateurs de particules **[WANG07]**.

Afin d'affiner la modélisation du transport des électrons de basse énergie dans le code OSMOSEE et le module MicroElec, il serait intéressant de prendre en compte l'oxydation et la contamination de la surface, par exemple en créant des multicouches dans les simulations. Toutefois, ces perspectives futures passent par l'implémentation de nouveaux matériaux dans les codes, en particulier le dioxyde de silicium pour les besoins de la microélectronique, ou l'oxyde d'aluminium pour les applications spatiales. L'implémentation de ces oxydes nécessite des modèles plus complexes pour décrire les interactions entre les électrons et les phonons. Par ailleurs, les matériaux diélectriques possèdent dans leur structure de bandes électroniques des niveaux de pièges qui sont susceptibles, sous l'effet d'un champ électrique, de modifier fortement les mesures de rendement d'émission électronique **[BEL09]**. Ajouter aux codes existants la possibilité de prendre en compte le transport des charges représente une perspective très intéressante pour étudier les phénomènes de charges dans ces matériaux, que ce soit pour les applications spatiales ou la microélectronique.

BIBLIOGRAPHIE GÉNÉRALE

[ADA80] A. Adams, and P. K. Hansma, "Practical range and energy loss of 0.1—3-keV electrons in thin films of N2, 02, Ar, Kr, and Xe", *Physical Review B*, vol. 22, no. 9, pp. 4258- 4263, 1980.

[AGO03] S. Agostinelli *et al.*, « Geant4—a simulation toolkit", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 506, no. 3, pp. 250–303, Jul. 2003.

[AGU13] L. Aguilera *et al.*, "CuO nanowires for inhibiting secondary electron emission", *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 46, no. 16, p. 165104, Mar. 2013.

[AKK05] A. Akkerman, J. Barak, and D. Emfietzoglou, "Ion and electron track-structure and its effects in silicon model and calculations", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 227, no. 3, pp. 319-336, 2005.

[AKK09] A. Akkerman, M. Murat, and J. Barak, "Monte Carlo calculations of electron transport in silicon and related effects for energies of 0.02-200 keV". *Journal of Applied Physics*, vol. 106, no. 11, p. 113703, Dec. 2009.

[AKK15] A. Akkerman, and M. Murat, «Electron-phonon interactions in silicon: Mean free paths, related distributions and transport characteristics», *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms,* vol. 350, pp. 49-54, May 2015.

[AKK94] A. Akkerman, T. Boutboul, A. Breskin, R. Chechik, and A. Gribrekhterman, "Low-energy electron transport in alkali halide", *Journal of Applied Physics*, vol. 76, no. 8, pp. 4656-4662, 1994.

[AKK96] A. Akkerman *et al.*, "Inelastic Electron Interact ions in the Energy Range 50 eV to 10 keV in Insulators: Alkali Halides and Metal Oxides", *Physica Status Solidi (b)*, vol. 198, no. 2, pp. 769-784, 1996.

[ALI75] R.C. Alig, and S. Bloom. «Electron-hole pair creation energies in semiconductors» *Physical Review Letters*, vol. 35, no. 22, pp. 1522-1525, 1975.

[ALL16] J. Allison *et al.*, "Recent developments in Geant4", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 835, pp. 186-225, Nov. 2016.

[ASH75] J. C. Ashley, C. J. Tung, Anderson, and R. H. Ritchie, "Inverse mean free path, stopping power, CSDA range and straggling in aluminum and aluminium oxide for electrons of energy <= 10 keV." Oak Ridge National Laboratory. National Technical Information Service. U.S. Department of Commerce, 1975. Disponible sur : http://www.dtic.mil/docs/citations/ADA019507

[ASH91] J. C. Ashley, "Energyloss probabilities for electrons, positrons, and protons in condensed matter", *Journal of Applied Physics*, vol. 69, no. 2, pp. 674-678, 1991.

[ASS98] A. Assa'd, and M. El-Gomati, "Backscattering coefficients for low energy electrons", *Scanning Microscopy,* vol. 12, no. 1, pp. 185-192, 1998.

[BAC13] R. Bach, D. Pope, S.H. Liou, H. Batelaan, "Controlled double-slit electron diffraction", *New Journal of Physics*, vol 15, no. 3, p. 033018, Mar. 2013.

[BAG00] V. Baglin *et al.*, "The secondary electron yield of technical materials and its variation with surface treatments", *Proc. of EPAC, Vienna, Austria,* pp. 217-221 , 2000.

[BAL12] N. Balcon, D. Payan, M. Belhaj, T. Tondu, and V. Inguimbert, "Secondary electron emission on space materials: Evaluation of the total secondary electron yield from surface potential measurements", *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 40, no. 2, pp. 282-290, Feb. 2012.

[BAR50] Baroody EM. "A Theory of Secondary Electron Emission from Metals", *Physical Review,* vol. 78, no. 6, pp. 780-787, 1950.

[BAT16] G. Battistoni *et al.*, "The FLUKA Code: An Accurate Simulation Tool for Particle Therapy", *Frontiers in oncology*, vol. 6, May 2016

[BATS83] P. E. Batson, and J. Silcox, "Experimental energy-loss function Im[-1/ε(q,ω)] for aluminum*". Physical Review B*, vol. 27, no. 9, pp. 5224-5239, 1983.

[BEA67] J. A. Bearden, and A. F. Burr, "Reevaluation of X-Ray Atomic Energy Levels," *Review of Modern Physics*, vol. 39, no. 1, pp. 125-142, 1967.

[BEL09] M Belhaj, T Tondu and V Inguimbert, "Experimental investigation of the effect of the internal space charge accumulation on the electron emission yield of insulators submitted to e-irradiation: application to polycrystalline MgO", *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 42, no. 14, p. 145306, 2009.

[BER00] M. J. Berger, and S. M. Seltzer, "Database of Cross Sections for the Elastic Scattering of Electrons and Positrons by Atoms", NIST Interagency/Internal Report 6573, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg MD, Nov. 2000.

[BET05] M. H. Bettega, M. A. P. Lima, and L. G. Ferreira, "Electron collisions with CS2" *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol 38, no. 13, pp. 2087-2095, Jun. 2005.

[BOU02] S. Boundarie, «Radiation belts and models» dans *Environnement spatial : prévention des risques liés aux phénomènes de décharge. Cours de technologie spatiale.* ONERA-CNES. Avril 2002.

[BRA91] J.N. Bradford, and S. Woolf, "Electron-acoustic phonon scattering in SiO2 determined from a pseudo-potential for energies of E≳EBZ", *Journal of Applied Physics*, vol. 70, no. 1, pp. 490-492, 1991.

[BRO69] M. Bronstein and B. S. Fraiman, *Vtorichnaya Elektronnaya Emissiya (in Russian),* Nauka Moscow, 1969.

[BRU54] H. Bruining, "Physics and Applications of Secondary Electron Emission", McGraw-Hill, New York, 1954.

[CAL14] L. Calliari, M. Dapor, G. Garberoglio, and S. Fanchenko, "Momentum transfer dependence of reflection electron energy loss spectra: theory and experiment", *Surface Interface and Analysis*, vol. 46, no. 5, pp. 340-349, 2014.

[CAO15] N. Cao *et al.*, «Monte Carlo simulation of full energy spectrum of electrons emitted from silicon in Auger electron spectroscopy », *Surface and Interface Analysis*, vol. 47, no. 1, pp. 113-119, 2015.

[CAR00] F. Cargnoni, C. Gatti, E. May, and D. Narducci, "Geometrical reconstructions and electronic relaxations of silicon surfaces. I. An electron density topological study of h-covered and clean Si(111)(1×1) surfaces", *The Journal of Chemical Physics*, vol. 112, no. 2, pp. 887-899, 2000.

[CARD78] M. Cardona, and L. Ley, Eds., Photoemission in Solids I: General Principles (Springer-Verlag, Berlin) with additional corrections, 1978.

[CAZ01] J .Cazaux, "Correlation between the x-ray induced and the electron-induced electron emission yields of insulators " *Journal of Applied Physics,* vol. 89, no. 12, pp. 8265-8272, 2001.

[CHE02] Y.F. Chen, "Surface effects on angular distributions in X-ray-photoelectron spectroscopy", *Surface Science,* vol. 519, no. 1-2, pp. 115-124, 2002.

[CHE75] C. H. Chen, J. Silcox, and R. Vincent, "Electron-energy losses in silicon: bulk and sur-face plasmons and Cerenkov radiation*", Physical Review B.*, vol. 12, no. 1, pp. 64-71, 1975.

[CHE96] Y. F. Chen and C. M. Kwei, "Electron differential inverse mean free path for surface electron spectroscopy", *Surface science,* vol. 364, no. 2, pp. 131-140, 1996.
Y.F. Chen, and Y. T. Chen, "Background removal in surface electron spectroscopy: Influence of surface excitations", *Physical Review B.,* vol. 53, no. 8, pp. 4980-4988, Feb. 1996.

[CHU70] M. F. Chung, and L. H. Jenkins. «Auger electron energies of the outer shells electrons», *Surface Science*, vol 22, no. 2, pp. 479-485, Sep. 1970.

[CIM15] R. Cimino *et al.,* "Detailed investigation of the low energy secondary electron yield of technical Cu and its relevance for the LHC", *Physical Review Special Topics - Accelerators and Beams*, vol. 18, no. 5, p. 051002, May 2015.

[COH94] C. Cohen-Tanoudji, B. Diu, and F. Laloe, « *Mécanique quantique* », vol. 2, Ed. Hermann, Paris, 1994.

[COL06] T. Colladant, A. L'Hoir, J. Sauvestre, and O. Flament, "Monte-Carlo simulations of ion track in silicon and influence of its spatial distribution on single event effects", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 245, no. 2, pp. 464-474, 2006.

[CUT58] P. H. Cutler, and J. J. Gibbons, « Model for the surface potential barrier and the periodic deviations in the Schottky effect », Physical Review, vol. 111, no. 2, pp. 394-402, 1958.

[CZY90] Z. Czyzewski, D.O Mac Callum, A. Romig, D.C. Joy, «*Calculations of Mott scattering cross section",* Journal of Applied Physics, vol. 68, no. 7, pp.3066-3072, Jun. 1990.

[DA14] B. Da, H. Shinotsuka, H. Yoshikawa, Z. J. Ding, and S. Tanuma, "Extended Mermin Method for Calculating the Electron Inelastic Mean Free Path", *Physical Review Letters*, vol. 113, no. 6, p. 063201, 2014.

[DAP08] M. Dapor, L. Calliari, and M. Filippi, "REEL spectra from aluminium: experiment and Monte Carlo simulation using two different dielectric functions", *Surface Interface Analysis,* vol. 40, no. 3-4, pp. 683-687, 2008.

[DAP11] M. Dapor, L. Calliari, and G. Scarduelli, "Comparison between Monte Carlo and experimental aluminum and silicon electron energy loss spectra", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 269, no. 14, pp. 1675-1678, 2011.

[DAP12] M. Dapor, L. Calliari, and S. Fanchenko, "Energy loss of electrons backscattered from solids: measured and calculated spectra for Al and Si", *Surface Interface and Analysis*, vol. 44, no. 8, pp. 1110–1113, Jan. 2012

[DAP17] M. Dapor, "Role of the tail of high-energy secondary electrons in the Monte Carlo evaluation of the fraction of electrons backscattered from polymethylmethacrylate", *Applied Surface Science*, vol. 391, pp. 3-11, 2017.

[DEK54] A.J. Dekker, "On the escape mechanism of secondary electrons from insulators, *Physica*, vol. 21, no. 1-5, pp.29-38, 1954

[DEM11] H. Demers *et al.*, "Three-dimensional electron microscopy simulation with the CASINO Monte Carlo software", *Scanning*, vol. 33, no 3, p. 135-146, Jun. 2011.

[DIN01] Z.J. Ding, X.D. Tang, and R. Shimizu, « Monte Carlo study of secondary electron emission », *Journal of Applied Physics*, vol. 89, no. 1, pp. 718-726, 2011.

[DIN02] Z. J. Ding, H. M. Li, Q. R. Pu, Z. M. Zhang, and R. Shimizu, "Reflection electron energy loss spectrum of surface plasmon excitation of Ag: A Monte Carlo study", *Physical Review B*, vol. 66, p. 085411, 2002.

[DIN89] Z.-J. Ding, and R. Shimizu, "Inelastic collisions of keV electrons in solids", *Surface Science*, vol. 222, no. 2, pp. 313-331, 1989.

[DIN98] Z.-J. Ding, "Self-energy in surface electron spectroscopy: I. Plasmons on a free-electron-material surface", *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 10, pp. 1733-1751, 1998.
Z.-J. Ding, "Self-energy in surface electron spectroscopy: II. Surface excitation on real metal surfaces", *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 10, no. 8, pp. 1753-1765, 1998.

[DIO73] G. F. Dionne, "Effects of secondary electron scattering on secondary emission yield curves, " *Journal of Applied Physics*, vol. 44., no. 12, pp. 5361-5364, Dec.1973.

[DIO75] G. F. Dionne, "Origin of secondary-electron emission yield curve parameters " *Journal of Applied Physics*, vol. 46, no. 8, pp. 3347-3351, Aug. 1975.

[EHR62] H. Ehrenreich, and H. R. Philipp, "Optical properties of Ag and Cu*", Physical Review*, vol. 128, no. 4, pp. 1622-1629, 1962.

[EHR63] H. Ehrenreich, H. R. Philipp, and B. Segall, "Optical properties of aluminium*", Physical Review*, vol. 132, no. 5, 1963.

[FER56] R. A. Ferrell, « Angular dependence of the characteristic energy loss of electrons passing through metal foils », *Physical Review*, vol. 101, no. 2, pp.554-563, Jan. 1956.

[FERN05] J. Fernandez-Varea, F. Salvat, M. Dingfelder, and D. Liljequist, "A relativistic optical-data model for inelastic scattering of electrons and positrons in condensed matter" *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 229, no. 2, pp. 187-218, 2005.

[FERR82] J. Ferron, E. C. Goldberg, L. S. De Bernardez, and R. H. Buitrago, "Escape depth of Auger electrons, the elastic scattering effect", Surface Science, vol. 123, no. 2-3, pp. 239 -246, Sep. 1982.

[FEY14] R. Feynman, R. Leighton, and M. Sands, "le cours de physique de Feynman – mécanique quantique », Ed. Dunod, 2014

[FIL16] N. Fil, M. Belhaj, J. Hillairet, and J. Puech, "Multipactor threshold sensitivity to total electron emission yield in small gap waveguide structure and TEEY models accuracy", *Physics of Plasmas*, vol. 23, no. 12, p.123118, Dec. 2016.

[FIT01] H.-J. Fitting, E. Schreiber, J.-Ch Kuhr, and A. Von Czarnowski, "Attenuation and escape depths of low-energy electron emission*", Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, vol. 119, no. 1, pp. 35-47, 2001.

[FIT04] H.-J. Fitting, "Six laws of low-energy electron scattering in solids*", Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, vol. 136, pp. 265-272, 2004.

[FRA09] B. C. Franke, Ronald P. Kensek, Thomas W. Laub, and Martin J. Crawford, "ITS Version 6: The Integrated TIGER Series of Coupled Electron/Photon Monte Carlo Transport Code Revision 4*,"* SAND2008-3331 (July 2009).

[FRO52] H. Frohlich, "Interaction of electrons with lattice vibration", *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 215, no. 1122, pp. 291-298, 1952.

[FUG80] J. C. Fuggle and N. Mårtensson, "Core-Level Binding Energies in Metals," *Journal of Electron Spectroscopy and Relatated Phenoma*, vol. 21, no. 3, pp. 275-281, 1980.

[FUR02] M. A. Furman, and M. T. F. Pivi," Probabilistic model for the simulation of secondary electron emission", *Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams*, vol. 5, no. 12, p.124404, 2002.

[GAN79] J. P. Ganachaud, and M. Cailler, « A Monte-Carlo calculation of the secondary electron emission of normal metals. I. The model", *Surface Science*, vol 83, no. 2, p 498-518, Jan. 1979.
J. P. Ganachaud, and M. Cailler, « A Monte-Carlo calculation of the secondary electron emission of normal metals. II. Results for aluminium ", *Surface Science*, vol 83, no. 2, p 519-530, 1979.

[GAR81] H. B. Garrett, "The Charging of Spacecraft Surfaces", *Reviews of Geophysics and Space Physics*, vol. 19, no. 4, pp. 577-616, Nov. 1981.

[GEI97] J. Geist, "Silicon (Si) Revisited (1.1-3.1 eV)" in *Handbook of optical constants of solids*, vol. 3, ed. E. D. Palik, 1997.

[GIN14] T. Gineste, M. Belhaj, G. Teyssedre, N. Balcon, and J. Puech, "A novel experimental setup for the measurement electron backscattering yield", *Measurement Science and Technology*, vol. 25, no. 8, p. 085601, May 2014.

[GIN15] T. Gineste, "Emission électronique sous impact d'électrons : applications spatiales », Ph.D. thesis, ISAE Toulouse, France, Nov. 2015.

[GLE73] J. A. Gledhill, "The range-energy relation for 0.1-600 keV electrons", *Journal of Physics A: Mathematical, Nuclear and General*, vol. 6, no. 9, pp. 1420-1428, Sep. 1973.
La reference *ibid* est :
-R. O. Lane and D. J. Zaffarano, "Transmission of 0-40 kev Electrons by Thin Films with Application to Beta-Ray Spectroscopy", *Physical Review*, vol. 94, no. 4, p. 960, May 1954.

[GRY65] M. Gryzinski, «Classical theory of atomic collisions. I. Theory of inelastic collisions. .» *Physical Review*, vol 138, no. 2A, pp. A336-A358, 1965.

[GUM10] H. Gumus, and O. Kabadayi, "Pratical calculations of stopping powers for intermediate energy electrons in some elemental solids", *Vacuum*, vol. 85, no. 2, pp. 245-252, 2010.

[HIL03] N. Hilleret, C. Scheuerlein, M. and Taborelli, "The secondary-electron yield of air-exposed metal surfaces", *Applied Physics A: Materials Science & Processing,* vol. 76, no.7, pp. 1085–1091, 2003.

[HIR05] H. Hirayama, Y. Namito, A. F. Bielajew, and S. J. Wilderman and W. R. Nelson, "The EGS5 Code System", SLAC-R-730, KEK 2005-8, Menlo Park, CA: Stanford Linear Accelerator Center, 2005.

[HOL59] J. E. Holiday, and E. J. Sternglass, "New method for range measurements of low energy electrons in solids", *Journal of Applied Physics*, vol. 30, no. 9, pp. 1428-1431, 1959.

[HOR07] R. B. Horne, "Plasma astrophysics: Acceleration of killer electrons", *Nature Physics,* vol. 3, no. 9, pp. 590 – 591, 2007.

[HUG14] H. G. Hughes, "Enhanced electron-photon transport in MCNP6", Presented at the Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications+ Monte Carlo, 27-31 Oct., Paris, France, 2013. Edited by D. Caruge, C. Calvin, C.M. Diop, F. Malvagi, and J.-C. Trama, EDP Sciences, p. 03105, 2014.

[ICR84] International Commission on Radiation Units and Measurements. *ICRU Report 37*, Stopping Powers for Electrons and Positrons, 1984.

[INC16] S. Incerti, M. Douglass, S. Penfold, S. Guatelli, and E. Bezak, "Review of Geant4-DNA applications for micro and nanoscale simulations", *Physica Medica*, vol. 32, no. 10, pp. 1187-1200, Oct. 2016

[ING14] C. Inguimbert, M. Belhaj, J., Puech, and J. Pierron, "Monte Carlo simulation of the electron range/energy relationship in the sub-keV energy domain", in Proc. The international workshop on Multipactor Corona and Passive Intermodulation, 2014 Doi : http://dx.doi.org/10.13140/2.1.2159.4880

[ING15] C. Inguimbert, R. Ecoffet, and D. Falguère, "Electron induced SEUs: Microdosimetry in nanometric volumes," *IEEE Transaction Nuclear Science*, vol. 62, no. 6, pp. 2846–2852, Dec. 2015.

[ING17] C. Inguimbert, J. Pierron, M. Belhaj, J. Puech, "An analytical model for secondary electron emission", in Proc. of the 9th International MULCOPIM workshop, ESA/ESTEC, Noordwijk, The Netherlands, 5-7 April 2017.

[JAB03] A. Jablonski, F. Salvat, and C.J. Powell, "NIST Electron Elastic-Scattering Cross-Section Database—Version 3.1", National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg MD, 2003.

[JON57] J. L.H. Jonker, "On the theory of secondary electron emission," *Philips Res. Rep*, vol. 12, pp. 249-258, 1957.

[JOY08] D C. Joy, "A database on electron-solid interactions", *Scanning* , vol. **17**, no. 5, pp. 270-275, 2006. Une version révisée de la base de données est téléchargeable à l'adresse : http://web.utk.edu/~srcutk/htm/interact.htm
Les références *ibid* sont :
-K. O. Al-Ahmad, and D. E. Watt, "Stopping powers and extrapolated ranges for

electrons (1-10 keV) in metals", *Journal of Physics D:Applied Physics*, vol. 16, no. 11, pp. 2257-2267, 1983.
-S. Luo, X. Zhang, and D. C. Joy, "Experimental determinations of electron stopping power at low energies", *Radiation Effects and Defects in Solids*, vol. 117, no. 1-3, pp. 235-242, 1991.
-D. C. Joy and C. S. Joy, SEMATECH Report TT# 96063130A-TR, August 1996
-P. H. Dawson, "Secondary electron emission yields of some ceramics", *Journal of Applied Physics*, vol. 37, no. 9, p. 3644, 1966.
-T. S. Sudarshan, *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, vol. EI-11, p. 32, 1976.

[KAW01] I. Kawrakow, and D. W. O. Rogers, "The EGSnrc code system: Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport*",* NRC Report PIRS-701, NRC, Ottawa, 2001.

[KEA05] V. J. Keast, "Ab initio calculations of plasmons and interband transitions in the low-loss electron energy-loss spectrum*". Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, vol. 143, no. 2-3, pp. 97-104, 2005.

[KIE08] E. Kieft, and E. Bosch, "Refinement of Monte Carlo simulations of electron–specimen interaction in low-voltage SEM", *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 41, no. 21, p. 215310, Oct. 2008.

[KIN12] M. P. King *et al.*, "Radial characteristics of heavy-ion track structure and implications of delta-ray events for microelectronics," *Applied Physics Letter*, vol. 101, no. 5, p. 53509, Jul. 2012.

[KIS98] R. A. Kishek, Y. Y. Lau, L. K. Ang, A. Valfells, and R. M. Gilgenbach, "Multipactor discharge on metals and dielectrics: Historical review and recent theories", *Physics of Plasmas*, vol. 5, no. 5, May 1998.

[KIT71] C. Kittel, « Introduction de la physique de l'état solide », Ed. Dunod Université, 3rd ed., 1971.

[KLA74] M. Klasson *et al.*, « Electron escape depth in silicon*", .Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, vol. 3, no. 6, pp. 427-434, 1974.

[KUM09] K. Kumagai, S. Tanuma, C. J. Powell, "Energy dependence of electron stopping powers in elemental solids over the 100 eV to 30 keV energy range", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 267, no. 1, pp. 167–170, 2009.

[KUH99] J.-Ch. Kurh, and H.-J. Fitting, "Monte-Carlo simulation of low energy electron scattering in solids", *Physica Status Solidi*, A 172, no.2, pp. 433-450, Apr. 1999 J.-Ch. Kuhr, and H.-J. Fitting, "Monte Carlo simulation of electron emission from solids", *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, vol. 105, no. 2-3, pp. 257–273, Dec. 1999.

[KUR07] O. Kurniawan, and V. K. S. Ong, "Investigation of range-energy relationships for low-energy electron beams in silicon and gallium nitride", *Scanning*, vol. 29, no. 6, pp. 208-286, 2007.

[KWE98] C. M. Kwei, C. Y. Wang, and C. J. Tung, "Surface excitation parameters of low-energy electrons crossing solid surfaces", *Surface. Interface and Analysis*, vol. 26, no. 9, pp. 682-688, 1998.

[LEV83] G. Leveque, C. G. Olson, and D. W. Lynch, "Reflectance spectra and dielectric functions for Ag in the region of interband transitions", *Physical Review B.*, vol. 27, no. 8, pp. 4654-4660, 1983.
Les références *ibid* sont :
- G. B. Irani, T. Huen, and F. Wooten, « Optical Constants of Silver and Gold in the Visible and Vacuum Ultraviolet", *Journal of the Optical Society of America*, vol. 61, no. 1, pp. 128-129, 1971.
- M. Schluter, "The optical properties of gold, silver and gold-silver alloys from 2 to 40 eV by energy loss spectroscopy of electrons", Z. Physik, vol. 250, p.87, 1972.

[LIN05] Y. Lin, and D. C. Joy, "A new examination of secondary electron yield data", *Surface and Interface Analysis*, vol. 37, no. 11, pp. 895-900, Oct. 2005.

[LIND54] J. Lindhard, « On the Properties of a Gas of Charged Particles », Kongelige Danske Videnskabernes Selskab, 1954.

[LLA69] J. Llacer, and E. L. Garwin, "Electron-phonon interaction in alkali halides. I. The transport of secondary electrons with energies between 0.25 and 7.5 eV", *Journal of Applied Physics*, vol. 40, no. 7, pp. 2766-2775, 1969.
J. Llacer, and E. L. Garwin, "Electron-phonon interaction in alkali halides. II. Transmission Secondary Emission from Alkali Halides", *Journal of Applied Physics*, vol. 40, no. 7, pp. 2776-2792, 1969.

[LLO14] X. Llovet, C.J. Powell, F. Salvat, and A. Jablonski. «Cross sections for inner-shell ionization by electron impact.» *Journal of Physics and. Chemical Reference Data*., vol. 43, n°1, p. 013102, 2014.

[LYN68] M. J. Lynch, and J. B. Swan, "The characteristic loss spectra of the second and third series transition metals", *Australian Journal of Physics*, vol. 21, no.6, p.811, 1968.

[MAN14] M. Mankos *et al.*, "A novel low energy electron microscope for DNA sequencing and surface analysis", *Ultramicroscopy*, vol. 145, pp. 36-49, Jan. 2014.

[MAO08] S. F. Mao, Y. G. Li, R.G. Zeng, and Z. J. Ding, "Electron inelastic scattering and sec-ondary electrons emission calculated without the single pole approximation", *Journal of Applied Physics*, vol. 104, no. 11, p. 114907, Dec. 2008.

[MAR96] G. Maral, « Systèmes de télécommunications par satellite », *Sciences et techniques de l'ingénieur*, Réf. E7560 V1

[MER70] N. D. Mermin, « Lindhard Dielectric Function in the Relaxation-Time Approximation », *Physical Review B.*, vol. 1, no. 5, pp. 2362-2363, 1970.

[MET49] N. Metropolis, and S. Ulam, « The Monte Carlo Method", *Journal of the American Statistical Association*, vol. 44, no. 247, pp. 335-341, Sep. 1949.

[MOT65] N.F Mott, and Q.S.W Massey, « *The theory of atomic collisions* », Oxford University press, London, 1965.

[NAR12] R. D. Narayan, R. Miranda, and P. Rez, «Monte Carlo simulation for the electron cascade due to gamma rays in semiconductor radiation detectors», *Journal of Applied Physics,* vol. 111, no. 6, p. 064910, Feb. 2012.

[NIK12] H. Nikjoo, S. Uehara, and D. Emfietzoglou, *Interaction of radiation with matter,* CRC Press, 2012.

[NIS94] K. Nishimura, T. Itotani, and K. Ohya, "Influence of surface roughness on secondary electron emission and electron backscattering from metal surfaces", *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 33, no. 8, pp. 4727-4734, Aug. 1994.

[NIST] National Institute of Standards and Technology, U.S. Depatment of Commerce, https://www.nist.gov/

[NUN80] R. Núñez, P. M. Echenique, and R.H. Ritchie, « The energy loss of energetic ions moving near a solid surface », *Journal of Physics C: Solid State Physics*, vol. 13, no. 22, pp.4229-4246, 1980.

[PAL96] A. Palov, *Tech. Phys. Lett.*, vol. 22, p. 49, 1996 (in Russian).

[PAL98] A. Palov, H. Fuiji, and S. Hiro, "Monte Carlo simulation of 1 eV-35 keV electron scattering in Teflon", *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 37, pp. 6170-6176, 1998.

[PALI97] E.D. Palik, *Handbook of optical constants,* Elsevier Inc, 1997.
La base de données de Palik regroupe les mesures des indices optiques de différents auteurs.
Pour l'aluminium, les références *ibid* sont :
- E. Shiles, T. Sasaki, M. Inokuti, and D.Y. Smith, "Self-consistency and sum-rule tests in the Kramers-Kronig analysis of optical data: Application to aluminum," *Physical Review B.* vol. 22, no. 4, pp. 1612-1628, 1980.
- R.W. Ditchburn and G.H.C. Freeman, "The optical constants of aluminum from 12 to 36 eV," *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 294, no. 1436, pp. 20-37, 1966.
- A.G. Mathewson and H.P. Myers, "Absolute value of the UREF optical constants of some pure materials," *Physica Scripta*, vol. 4, no.6, p. 291-292, 1971.
Pour l'argent, les références *ibid* sont :
- H.J. Hagemann, W. Gudat, and C. Kunz, DESY Report SR-74/7, Hamburg (1974); H.J. Hagemann, W. Gudat, and C. Kunz, "Optical constants from the far infrared to the x-ray region: Mg, Al, Cu, Ag, Au, Bi, C, and Al2O3", *Journal of the Optical Society of America,* vol. 65, no. 6, p. 742, 1975.
- P. Winsemius, F.F. van Kampen, H.P. Lengkeek, and C.G. van Went, "Temperature dependence of the optical properties of Au, Ag, and Cu," *Journal of Physics F: Metal Physics*, vol. 6, no. 8, pp. 1583-1606, 1976.
- G. Leveque, C.G. Olson, and D.W. Lynch, "Reflectance spectra and dielectric functions for Ag in the region of interband transitions," Physical Review B., vol. 27, no. 8, pp. 4654-4660, 1983.

Pour le silicium, les références ibid sont :
- D.E. Aspnes and J.B. Theeten, "Spectroscopic analysis of the interface between Si and its thermally grown oxide," *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 127, no. 6, p. 1359, 1980; D.E. Aspnes and J.B. Theeten, private communication (1980).
- H.R. Philipp, "Influence of oxide layers on the determination of the optical properties of silicon," *Journal of Applied Physics*, vol. 43, no. 6, pp. 2836-2839, 1972 ; H.R. Philipp, private communication (1982).
- W.R. Hunter, private communication of unpublished data (1982).
- B.L. Henke, P. Lee, T.J. Tanaka, R.L. Shimabukuro, and B.K. Fujikawa, "The atomic scattering factor, f1+f2, for 94 elements and for the 100 to 2000 eV photon energy region," in Low Energy X-Ray Diagnostics 1981, (D.T. Attwood and B.L. Henke, eds.), p. 340, AlP Conference Proc., No. 75, American Institute of Physics, New York, (1981).
- C. Gähwiller and F. C. Brown, "Photoabsorption near the L2,3 edge of silicon," in Proc. Int. Conf. Phys. Semicond., 10th, Cambridge, 1970, p. 213, U. S. Atomic Energy Commission, Oak Ridge, Tennessee, (1970).
- F.C. Brown, R.Z. Bachrach, and M. Skibowski, "L2,3 threshhold spectra of doped silicon and silicon compounds," Phys. Rev. B 15, 478 (1977).
- W. Primak, "Refractive index of silicon," Appl. Opt. 10, 759, (1971).
- C.D. Salzberg and J.J. Villa, "Infrared refractive indexes of silicon germanium and modified selenium glass," J. Opt. Soc. Am. 47, 244 (1957).
- D.F. Edwards and E. Ochoa, "Infrared refractive index of silicon," Appl. Opt. 19, 4130 (1980).
- H.H. Li, "Refractive index of silicon and germanium and its wavelength and temperature derivatives," J. Phys. Chem. Ref. Data 9, 561 (1980).
- A. Hordvik and L. Skolnik, "Photoacoustic measurement of surface and bulk absorption in HF/DF laser window materials," Appl. Opt. 16, 2919 (1977).
- F.A. Johnson, "Lattice absorption bands in silicon," Proc. Phys. Soc. London 73, 265 (1959).
- B. Bendow, H.G. Lipson, and S.P. Yukon, "Residual lattice absorptioon in semiconducting crystals: Frequency and temperature dependence," Appl. Opt. 16, 2909 (1977).

[PAP01] E. Paparazzo, "XPS, AES and EELS studies of Al surfaces", *Vacuum*, vol. 62, no. 1, pp. 47-66, 2001.

[PAU09] N. Pauly, and S. Tougaard, "Determination of the effective surface region thickness and of Begrenzungs effect", *Surface Science,* vol. 603, no. 13, pp. 2158–2162, 2009.

[PEN87] D. R. Penn, "Electron mean-free path calculations using a model dielectric function", *Physical review B*, vol. 35, no. 2, Jan. 1987.

[PER91] S. T. Perkins *et al.*, "Tables and Graphs of Atomic Subshell and Relaxation Data derived from the LLNL Evaluated Atomic Data Library (EADL), Z=1-100", Lawrence Livermore National Library UCRL-50400, vol. 30, Livermore, 1991.

[PIE17] J. Pierron, C. Inguimbert, M. Belhaj, T. Gineste, J. Puech and M. Raine, "Electron emission yield for low energy electrons: Monte Carlo simulation and experimental comparison for Al, Ag and Si", *Journal of Applied Physics*, vol. 121, no 21, Jun. 2017.
J. Pierron, C. Inguimbert, M. Belhaj, M. Raine and J. Puech, "Ionizing doses calculations for low energy electrons in silicon and aluminum", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 64, no. 8, Jun. 2017.

[PIL76] J. Pillon, D. Roptin, and M. Cailler, "Secondary electron emission from aluminium", *Surface Science*, vol. 57, no. 2, pp. 741-748, 1976.

[PIN64] D. Pines, « *Elementary Excitations in Solids* », Ed. W. A. Benjamin, New York, 1964.

[PIV08] M. Pivi *et al.*, "Sharp reduction of the secondary electron emission yield from grooved surfaces", *Journal of Applied Physics*, vol. 104, no. 10, p. 104904, Nov. 2008.

[POD14] E.B. Podgorsak, «Production of X Rays» in *Compendium to Radiation Physics for Medical Physicists*, Ed. Springer-Verlag Berlin An, pp. 225-265, 2014.

[POW69] C. J. Powell, "Analysis of optical and Inelastic-Electron-Scattering data. Parametric calculations", *Journal of the Optical Society of America*, vol. 59, no. 6, pp. 738-743, Jun. 1969.
C. J. Powell, "Analysis of optical and Inelastic-Electron-Scattering data. II. Application to Al", *Journal of the Optical Society of America*, vol. 60, no. 1, pp. 78-93, Jan. 1970

[POW99] C. J. Powell, and A. Jablonski, "Evaluation of calculated and measured electron inelastic mean free paths near solid surfaces", *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, vol. 28, no. 1, pp. 19-62, 1999.

[PUE17] J. Puech, E. Sorolla, J. Sombrin, M. Belhaj, P. Mader, and J. Sinigaglia, "Multipactor effect within RF dielectric components", in Proc of the 9th International MULCOPIM workshop, ESA/ESTEC, Noordwijk, The Netherlands, 5-7 April 2017.

[RAE65] H. Raether, «Solid State Excitations by Electrons (Plasma oscillations and single electron transitions) », *Springer Tracts in Modern Physics*, vol. 38, pp. 84-157, 1965.

[RAI12] M. Raine, A. Valentin, M. Gaillardin, and P. Paillet, "Improved Simulation of Ion Track Structures Using New Geant4 Models—Impact on the Modeling of Advanced Technologies Response", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 59, no. 6, p. 2697, Dec. 2012.

[RAI14] M. Raine, M. Gaillardin, and P. Paillet, "Geant4 physics processes for silicon microdosimetry simulation: Improvements and extension of the energy-range validity up to 10 GeV/nucleon", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, vol. 325, pp. 97-100, Apr. 2014.

[RIC10] P. Riccardi *et al.*, « Secondary electron emission spectra from clean and cesiated Al surfaces: the role of plasmon decay and data analysis for applications », *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 22, no. 30, p. 305004, 2010.

[RIT57] R.H. Ritchie, « Plasma losses by fast electrons in thin films », Physical Review, vol. 106, no. 5, pp.874-881, 1957.

[RIT59] R.H. Ritchie, « Interaction of Charged Particles with a Degenerate Fermi-Dirac Electron Gas », *Physical Review*, vol. 114, no. 3, pp.644-654, 1959.

[RIT77] R. Ritchie, and A. Howie, "Electron excitation and the optical potential in electron microscopy", *Philosophical Magazine,* vol. 36, no. 2, pp. 463-481, 1977.

[ROC95] M. Rocca, « Low-energy EELS investigation of surface electronic excitations on metals», *Surface Science Reports,* vol. 22, no. 1-2, pp.1-71, 1995.

[ROU13] J Roupie, O Jbara, T Tondu, M Belhaj, and J Puech, « The study of electron emission from aluminum in the very low primary energy range using Monte Carlo simulations », Journal of Physics D: Applied Physics, vol. 46, no. 12, p. 125306, Feb. 2013.
J. Roupie, "Contribution à l'étude de l'émission électronique sous impact d'électrons de basse énergie (<=1 keV) : application à l'aluminium (in French)", Ph. D. dissertation, ISAE, Toulouse, France, 2013
La reference *ibid* est :
- M.S. Chung, T.E. Everhart, « Role of plasmon decay in secondary electron emission in the nearly-free-electron metals. Application to Aluminium », *Physical Review*, vol. 10, no. 15, pp. 4699-4715, 1977.

[SAL05] F. Salvat, A. Jablonski, and C. J. Powell. «ELSEPA - Dirac partial-wave calculation of elastic scattering of electrons and positrons by atoms, positive ions and molecules", *Computer Physics Communications*, vol. 165, no. 2, pp.157-190, Jan. 2005.

[SAL15] F. Salvat, J. M. Fernández-Varea, and J. Sempau, "PENELOPE-2014: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon", Workshop, Barcelona, Spain, 29 Jun.-3 Jul., 2015. Data bank NEA/NSC/DOC(2015)3. Disponible sur : http://www.oecd-nea.org/dbprog/courses/nsc-doc2015-3.pdf

[SAW76] D. M. Sawyer, and J. I. Vette, "AP-8 trapped proton environment for solar maximum and solar minimum", Greenbelt : National Space Science Data Center (NASA) 1976

[SCH02] E. Schreiber, and H.-J. Fitting. «Monte Carlo simulation of secondary electron emission from the insulator SiO2». *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena,* vol 124, no. 1, pp. 25-37, Jun. 2002.

[SEI83] H. Seiler, "Secondary electron emission in the scanning electron microscope", *Journal of Applied Physics*, vol. 54, no. 11, pp. R1-R18, 1983.

[SEK10] A. Sekiyama *et al.*, « The prominent 5d-orbital contribution to the conduction electrons in gold*", New Journal of Physics*, vol. 12, no. 4, pp. 043045, 2010.

[SEL91] S. M. Seltzer, **«** Electron-photon Monte Carlo calculations: The ETRAN code », *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes*, vol. 42, no. 10, pp. 917-941, 1991.

[SEM08] V. E. Semenov, E. Rakova, R. Udiljak, D. Anderson, M. Lisak, and J. Puech, "Conformal mapping analysis of multipactor breakdown in waveguide irises", *Physics of Plasmas*, vol. 15, no. 3, p. 033501, 2008.

[SHIN15] H. Shinotsuka, S. Tanuma, C. J. Powell, and D. R. Penn, « Calculations of electron inelastic mean free paths. X. Data for 41 elemental solids over the 50eV to

200keV range with the relativistic full Penn algorithm» *Surface Interface and Analysis*, vol 47, no. 9, pp. 871–888, 2015.

[SMR70] L. Smrcka, "Energy band structure of aluminium by the augmented plane wave method", *Czechoslovak Journal of Physics*, vol. 20, no. 3, p 291-300, 1970.

[SOR06] A. P. Sorini, J. J. Kas, J. J. Rehr, M. P. Prange, and Z. H. Levine, "Ab initio calculations of electrons inelastic mean free paths and stopping powers", *Physical Review B.*, vol. 74, no. 16, 2006.

[STA88] E. G. Stassinopoulos, and J. P. Raymond, « The space radiation environment for electronics », *Proceedings of the IEEE*, vol. 76, no. 11, pp. 1423-1442, Nov. 1988.

[STI78] J. Stiebling, and H. Raether, "Dispersion of the volume plasmon of Silicon (16.7 eV) at large wave vectors", *Physical Review Letter*, vol. 40, no. 19, pp. 1293-1295, 1978.

[TAN05] S. Tanuma, C. J. Powell, and D. R. Penn, "Calculations of stopping powers of 100 eV to 30 keV electrons in 10 elemental solids", *Surface Interface and Analysis*, vol. 37, no. 11, pp. 978-988, 2005.

[TAN11] S. Tanuma, C. J. Powell, and D. R. Penn, "Calculations of electron inelastic mean free paths. IX. Data for 41 elemental solids over the 50 eV to 30 keV range", *Surface and Interface Analysis*, vol. 43, pp. 689-713, 2011.

[TOU87] S. Tougaard, and I. Chorkendorff, "Differential inelastic electron scattering cross sections from experimental reflection electron-energy-loss spectra: Application to background removal in electron spectroscopy", *Physical Review B.*, vol. 35, no. 13, pp. 6570-6577, 1987.

[TUN79] C.J. Tung, J.C. Ashley, and R.H. Ritchie. « Electron inelastic mean free paths and energy losses in solid II ». *Surface Science*, vol. 81, no. 2, pp. 427-439, 1979.
Les références *ibid* sont :
- H. Kanter, "Slow-Electron Mean Free Paths in Aluminum, Silver, and Gold", *Physical Review B.*, vol. 1, no. 2, pp. 522-536, 1970.
- J.C. Tracy, "Electron escape depths in aluminum", *Journal of Vacuum Science and Technology*, vol. 11, no. 1, p. 280, 1974.
- T.A. Callcott and E.T. Arakawa, "Volume and surface photoemission processes from plasmon resonance fields", *Physical Review B.*, vol. 11, no. 8, pp. 2750-2758, 1975.
- D.T. Pierce and W.E. Spicer, "Electronic Structure of Amorphous Si from Photoemission and Optical Studies", *Physical. Review B.*, vol. 5, no. 8, pp. 3017-3029, 1972.
- E.O. Kane, "Structure due to transport effects in photoelectric energy distributions", *Journal of Physical Society of Japan Supplement*, vol. 21, p. 37, 1966.
- G.W. Gobeli and F.G. Allen, "Direct and Indirect Excitation Processes in Photoelectric Emission from Silicon", *Physical Review*, vol. 127, no. 1, pp. 141-149, 1962.
- E.O. Kane, "Electron Scattering by Pair Production in Silicon", *Physical Review*, vol. 159, no. 3, p. 624-631, 1967.

-L. Wagner and W.E. Spicer, "Observation of a Band of Silicon Surface States Containing One Electron Per Surface Atom", *Phys. Rev. Letters* , vol. 28, p. 1381, 1972.

[UDI07] R. Udiljak, D. Anderson, M. Lisak, J. Puech, and V. E. Semenov, "Multipactor in a waveguide iris", *IEEE Transactions on Plasma Science,* vol. 35, n°2, Apr. 2007.

[VAL12] A. Valentin, M. Raine, J.-E. Sauvestre, M. Gaillardin, and P. Paillet, « Geant4 physics processes for microdosimetry simulation : Very low energy electromagnetic models for electrons in silicon*", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms.*, Vol. 288, p 66-73, 2012.
La référence *ibid* est :
- G. Gergely *et al.*, "Determination of the inelastic mean free path (IMFP) of electrons in germanium and silicon by elastic peak electron spectroscopy (EPES) using an analyser of high resolution", *Vacuum*, vol. 48, no. 7-9, pp. 621-624, Sep. 1997.
A. Valentin, M. Raine, M. Gaillardin, and P. Paillet, "Geant4 physics processes for microdosimetry simulation: Very low energy electromagnetic models for protons and heavy ions in silicon", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, vol. 287, pp. 124–129, 2012.

[VAS72] P. Vashishta, and K. S. Singwi, « Electron Correlations at Metallic Densities. V », *Physical Review B.*, vol. 6, no. 3, pp.875-887, 1972.

[VET91] J. I. Vette, "the AE-8 trapped electron model environment", Greenbelt: National Science Data Center (NASA), 1991

[WAL08] C. Walker, M. El-Gomati, A. Assa'd and M. Zadrazil, "The Secondary Electron Emission Yield for 24 Solid Elements Excited by Primary Electrons in the Range 250–5000 ev: A Theory/Experiment Comparison", *Scanning*, vol. 30, no. 5, pp. 365-380, 2008.

[WAN08] F. Wang, and V. Agrawal, "Single Event Upset: An Embedded Tutorial", in Proc. of the 21st International Conference on VLSID, Hyderabad, India, 4-8 Jan. 2008.

[WANGD17] D. Wang, M. Ye, Y. He, Y. Li, and W. Cui, "Experimental and numerical study on secondary electron yield of artificially roughened metal surfaces", in Proc. of the 9th International MULCOPIM workshop, ESA/ESTEC, Noordwijk, The Netherlands, 5-7 April 2017.

[WANG07] L. Wang, T.O. Raubenheimer, and G. Stupakov, "Suppression of secondary emission in a magnetic field using triangular and rectangular surfaces", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment,* vol. 571, no. 3, pp. 588-598, 2007.

[WAT11] C. Watts, M. Gilmore, and E. Schamiloglu, "Effects of laser surface modification on secondary electron emission of copper", *IEEE Transaction on Plasma Science*, vol. 39, no. 3, pp. 836-841, Mar. 2011

[WEH75] C. Wehenkel, « Mise au point d'une nouvelle méthode d'analyse quantitative des spectres de pertes d'énergie d'électrons rapides diffusés dans la direction du faisceau

incident : application à l'étude des métaux nobles », *Journal de Physique*, vol. 36, no. 2, pp. 199-213, 1975.

[WEN08] M. R. Went, M. Vos, and W. S. M. Werner, "Extracting the Ag surface and volume loss functions from reflection electron energy loss spectra", *Surface Science*, vol. 602, no. 12, pp. 2069–2077, 2008.

[WER06] W. S. M. Werner, "Differential surface and volume excitation probability of medium-energy electrons in solids", *Physical Review B.*, vol. 74, no. 7, p. 075421, 2006.

[WER08] W. Werner *et al.*, "Role of surface and bulk plasmon decay in secondary electron emission", *Physical Review B.*, vol. 78, no. 23, p. 233403, 2008.

[WER13] W. S. M. Werner *et al.*, "Secondary-electron emission induced by in vacuo surface excitations near a polycrystalline Al surface", *Physical Review B.*, vol. 88, no. 20, p. 201407, 2013.

[YE17] M. Ye, Y. He, D. Wang, "Improvement of suppression efficiency of total secondary electron emission yield of metal surface by micro/nano composite structure", in Proc. of the 9th International MULCOPIM workshop, ESA/ESTEC, Noordwijk, The Netherlands, 5-7 April 2017.

[YOU56] J. R. Young, "Penetration of electrons and ions in aluminum", *Journal of Applied Phys*ics, Vol. 27, no. 1, pp. 1-4, Jan. 1956.

[YUB92] F. Yubero and S. Tougaard, "Model for quantitative analysis of reflection-electron-energy-loss spectra", *Physical Review B.*, vol. 46, no. 4, pp. 2486-2497, 1992.
F. Yubero and S. Tougaard, "Quantitative analysis of reflection electron energy-loss spectra", *Surface Interface and Analysis*, vol. 19, no. 1-12, pp. 269-273, 1992.

[YUB96] F. Yubero, J. M. Sanz, B. Ramskov, and S. Tougaard, "Model for quantitative analysis of reflection-electron-energy-loss spectra: Angular dependence", *Physical Review B.*, vol. 53, no. 15, pp. 9719-9727, Apr. 1996.

[ZAC74] P. Zacharias, "Behaviour of collective volume excitations in aluminum near the 'critical wavevector': transition into single-particle excitation*". Journal of Physics C: Solid State Physics*, vol. 7, no. 1, pp. L26-L28, 1974

[ZAC76] P. Zacharias, and K. L. Kliewer, "Dispersion relation for the 3.8 eV volume plasmon of silver*"*, *Solid State Communications* , vol. 18, no. 1, pp. 23-26, 1976.

[ZHA06] Z. M. Zhang *et al.*, "Effective energy loss function of silver derived from reflection electron energy loss spectra", *Surface and Interface Analysis*, vol. 38, no. 4, pp. 632-635, 2006.

[ZHU98] Y. Zhu, and L. Cao, "Auger chemical shift analysis and its applications to the identification of interface species in thin films", *Applied Surface Science*, vol. 133, no. 3, pp. 213-220, 1998.

[ZIA06] B. Ziaja, R. A. London, and J. Hajdu, "Ionization by impact electrons in solids: Electron mean free path fitted over a wide energy range", *Journal of Applied Physics*, vol. 99, no. 3, p. 033514, 2006.
Les références *ibid* sont :
- V. P. Zhukov, and E. V. Chulkov, "Lifetimes of low-energy electron excitations in metals », Journal of Physics.: Condensated Matter, vol. 14, no. 8, pp. 1937-1947, 2002.
- R. Keyling, W. D. Schoene, and W. Ekardt, "Comparison of the lifetime of excited electrons in noble metals", *Physical Review B.*, vol. 61, no. 3, pp. 1670-1673, 2000.

LISTE DES COMMUNICATIONS

Articles

J. Pierron, C. Inguimbert, M. Belhaj, M. Raine, and J. Puech, "Electron emission yields for low energy electrons: Monte Carlo simulation and experimental comparison for Al, Ag and Si", *J. App. Phys.*, vol. 121, no. 21, Jun. 2107

J. Pierron, C. Inguimbert, M. Belhaj, M. Raine, and J. Puech, "Ionizing dose calculations for low energy electrons in silicon and aluminium", *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 64, no. 8, Jun. 2017

Communications

C. Inguimbert, J. Pierron, M. Belhaj, and J. Puech,, "A secondary electron emission empirical model", presented at the Conf. SIMDALEE 2, Sardinia, Italy, Sep. 18-22, 2017

C. Inguimbert, J. Pierron, M. Raine, M. Belhaj, and J. Puech,, "GEANT4 study of the effect of the surface roughness on the secondary electron emission yield", presented at the Conf. SIMDALEE 2, Sardinia, Italy, Sep. 18-22, 2017

J. Pierron, C. Inguimbert, M. Belhaj, J. Puech, and M. Raine, "Monte Carlo simulations of low energy electron emission and its dependence on surface morphology for aluminum and silver" presented at the 9th Int. MULCOPIM Workshop, Noordwijk, The Netherlands, Apr. 5-7, 2017

C. Inguimbert, J. Pierron, M. Belhaj and J. Puech, « Extrapolated range formula for low energy electrons in various elements », presented at the 9th Int. MULCOPIM Workshop, Noordwijk, The Netherlands, Apr. 5-7, 2017

C. Inguimbert, J. Pierron, M. Belhaj and J. Puech, « An analytical model for secondary electron emission », presented at the 9th Int. MULCOPIM Workshop, Noordwijk, The Netherlands, Apr. 5-7, 2017

J. Pierron, C. Inguimbert, M. Belhaj, M. Raine, and J. Puech, "Monte Carlo simulations of low energy electrons in silicon", in Proc. RADECS 2016, Bremen, Germany, Sep. 19-23, 2016. (poster)

C. Inguimbert, J. Pierron, and M. Raine, "New development of MicroElec model for low energy electron transport: Si, Al, Ag", presented at GEANT4 Developer workshop, Ferrare, Italy, Sep.12-17, 2016.

C. Inguimbert, J. Pierron, M. Belhaj, and J. Puech, "Extrapolated range expression for electrons down to ~10 eV", presented at IEEE NSREC 2016, Portland, USA, Jul. 11-15, 2016.

J. Pierron, C. Inguimbert, T. Gineste, M. Belhaj, M. Raine, and J. Puech, "Monte Carlo transport of low-energy electrons for secondary emission applications", presented at Conf. Low Energy Electrons: Dynamics and Correlation near Surfaces and Nanostructures, Hernstein, Austria, Sep. 10-15, 2015. (poster)

C. Inguimbert, M. Belhaj, J.Pierron, and J. Puech, "Monte Carlo simulation of the electron range/energy relationship in the sub-keV energy domain", presented at the 8th Int. MULCOPIM Workshop, Valencia, Spain, Sep. 17-19, 2014.

ANNEXE 1 : STRUCTURES DES BANDES ÉLECTRONIQUES DES MATERIAUX ÉTUDIÉS

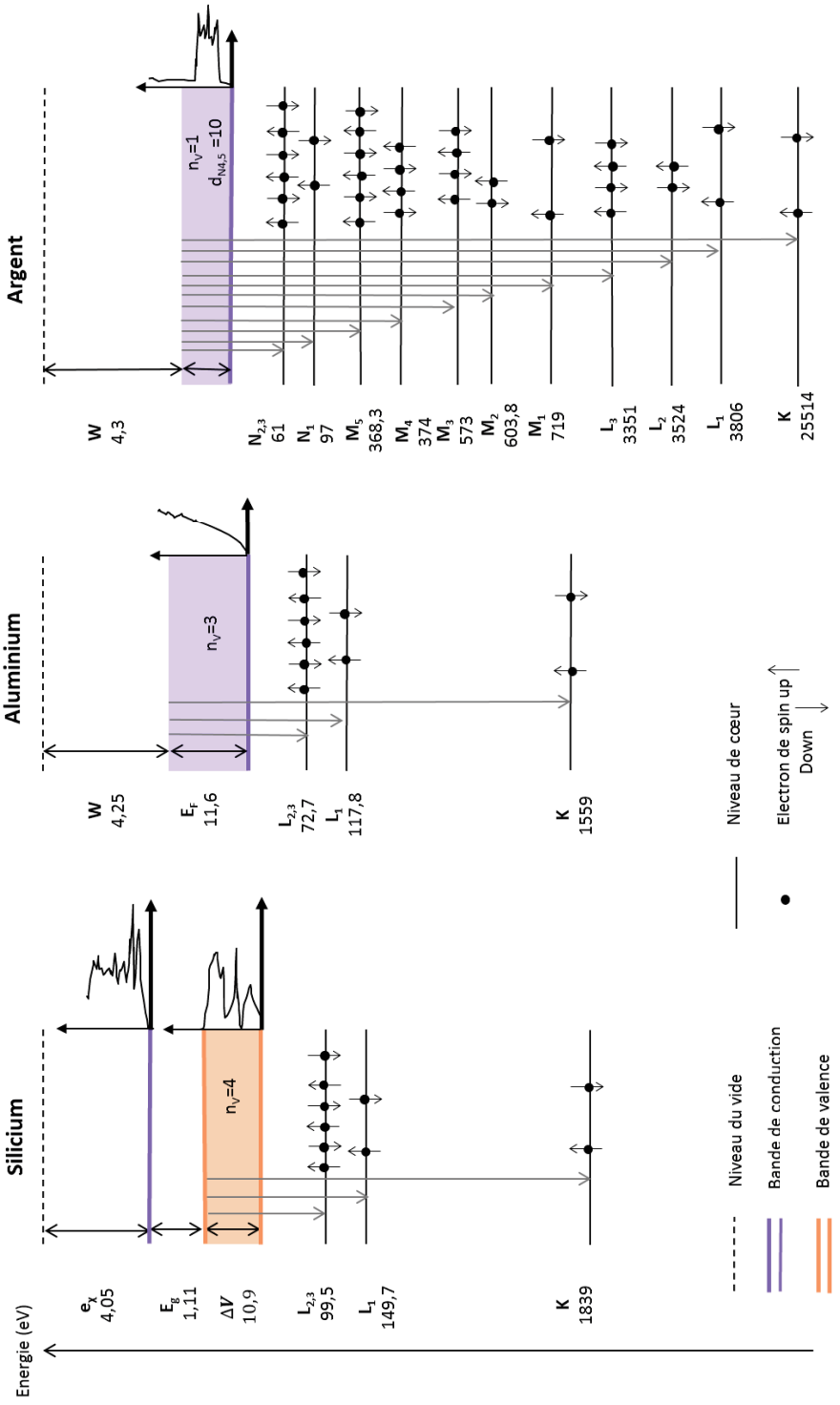


FIGURE A1.1. Schéma simplifié de la structure des bandes électroniques du silicium, de l'aluminium et de l'argent. Les énergies de liaison proviennent de [BEA67, CARD78, FUG80], disponibles sur le site webElement. Les densités d'états proviennent de [KEA05, SMR70. CAR00].

ANNEXE 2 : ORIGINE DU MODÈLE DES FONCTIONS DIÉLECTRIQUES

Considérons un électron incident qui interagit avec un solide. Afin de déterminer la section efficace différentielle associée à l'interaction, nous pouvons établir plusieurs hypothèses dans le cas où nous nous intéressons aux interactions entre l'électron incident et un électron de cœur d'un atome du solide, et dans le cas où nous nous intéressons aux interactions entre l'électron incident et les électrons faiblement liés du solide.

Dans le premier cas, à des fins de simplifications, nous supposons, de manière similaire à la définition de la section efficace du chapitre 2, que les atomes du solide sont suffisamment éloignés les uns des autres pour que l'électron incident n'interagisse qu'avec un seul atome. En ce sens, nous négligeons les phénomènes de diffusion multiple. Les calculs permettant d'obtenir l'expression de la section efficace correspondante sont décrits dans la section C de cette annexe, et s'appuient sur les livres de Cohen-Tannoudji et coll. **[COH94]** et de Nikjoo et coll. **[NIK12]**.

Dans le second cas, pour simplifier le problème, nous supposons que le solide peut être modélisé par un gaz d'électrons libres. Les noyaux des atomes forment alors un fond uniforme de charges positives. Les calculs permettant d'obtenir l'expression de la section efficace correspondante sont décrits dans la section D de cette annexe et s'appuient sur les travaux de Pines **[PIN64]** et de Ritchie et coll. **[RIT59]**.

A. DESCRIPTION GÉNÉRALE DU PROBLÈME

Considérons un électron incident non relativiste de moment initial $\hbar k_0$, et d'énergie E_0. Nous supposons qu'avant l'interaction, à un temps $t = -\infty$, l'électron est situé suffisamment loin du solide pour être considéré comme libre. Avant l'interaction, le solide est situé dans son état fondamental (noté 0). Le système au repos, formé par l'électron isolé et le solide isolé avant l'interaction, est décrit par l'hamiltonien $\widehat{H}_0$. Il vérifie l'équation de Schrödinger (A2. 1) dans laquelle nous notons $|n\rangle$, en utilisant la notation de Dirac **[COH94]**, les n états propres de la fonction d'onde solution de l'équation et E_n ses n valeurs propres.

$$\widehat{H}_0 \, |n\rangle = E_n \, |n\rangle \qquad \textbf{(A2. 1)}$$

Les n états $|n\rangle$ forment une base d'énergie et vérifient la relation (A2. 2).

$$\langle k|n\rangle = \begin{cases} 0 \; si \; k \neq n \\ 1 \end{cases} \qquad \textbf{(A2. 2)}$$

Lorsque l'électron incident se rapproche du solide à un instant $t = t_0$, il est soumis à un potentiel d'interaction associé à un hamiltonien $\widehat{W}$. Cet hamiltonien dépend de la distance entre l'électron et le solide et, en conséquence, est dépendant du temps. Nous supposons qu'après l'interaction, l'électron incident a un moment $\hbar k_f$ et une énergie E_f. De son côté, le solide est dans un état excité noté $|f\rangle$. L'énergie transférée lors de la collision est $E_f - E_0 = \hbar\omega_{f0}$. Le moment transféré est noté $\hbar k = \hbar k_f - \hbar k_0$. Par ailleurs, nous supposons également qu'après l'interaction, à un temps $t = +\infty$, l'électron est situé suffisamment loin du solide pour être considéré comme libre.

Le système électron-solide en interaction est décrit par l'hamiltonien $\widehat{H}$ qui vérifie la relation (A2. 3).

$$\widehat{H} = \widehat{H}_0 + \widehat{W} \qquad \textbf{(A2. 3)}$$

La fonction d'onde $|\psi(t)\rangle$ qui décrit l'ensemble du système en interaction est solution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps (A2. 4).

$$\widehat{H}_0|\psi(t)\rangle + \widehat{W}|\psi(t)\rangle = i\hbar\frac{\partial|\psi(t)\rangle}{\partial t} \qquad \textbf{(A2. 4)}$$

La fonction d'onde solution $|\psi(t)\rangle$ peut se décomposer d'après les n états propres $|n\rangle$ et les n valeurs propres E_n du système au repos selon la relation (A2. 5).

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n a_n(t) e^{-\frac{iEnt}{\hbar}} |n\rangle \qquad \textbf{(A2. 5)}$$

Nous voyons apparaître deux termes dans cette décomposition. Le terme exponentiel tient compte de l'évolution temporelle du système au repos dans le cas où $\widehat{W} = 0$ (les coefficients a_n sont alors constants). Les amplitudes complexes $a_n(t)$ sont

liées à la probabilité que le système passe d'un état initial $|0\rangle$ à un état final $|f\rangle$ lors de l'interaction (dans le cas $\widehat{W} \neq 0$). Cette probabilité est donnée par la relation (A2. 6).

$$P_{0\to f}(t) = \sum_f \left|a_f(t)\right|^2 = \sum_f |\langle f|\psi(t)\rangle|^2 \qquad \textbf{(A2. 6)}$$

Le taux de transition correspond à la probabilité par unité de temps et est donné par la relation (A2. 7). Dans ces deux relations, la somme sur les états $|f\rangle$ prend en compte le fait que ces états peuvent être dégénérés.

$$\tau_{0\to f} = \frac{P_{0\to f}(t)}{t} = \sum_f \frac{\left|a_f(t)\right|^2}{t} \qquad \textbf{(A2. 7)}$$

Dans notre problème, l'équation de Schrödinger dépendante du temps ne possède pas de solution exacte. Afin de la résoudre avec une solution approximative, nous pouvons nous placer dans le cadre de la première approximation de Born. La première hypothèse introduite par cette approximation est l'utilisation de la théorie de la faible perturbation. Cela revient à obtenir la probabilité de transitions sous la forme d'un développement en série. Notre objectif, en ce sens, est de déterminer de manière approchée les coefficients $a_n(t)$.

B. THÉORIE DE LA FAIBLE PERTURBATION

Dans l'hypothèse d'une faible perturbation, nous supposons que l'état final de l'électron après son interaction avec le solide est proche de son état initial. Dans cette hypothèse, nous pouvons réécrire le potentiel de l'interaction associé à l'Hamiltonien $\widehat{W}$ sous la forme αV_1. Le coefficient α caractérise la force de l'interaction et est tel que $\widehat{W} \ll \widehat{H}_0$. En mettant la solution $|\psi(t)\rangle$ dans l'équation de Schrödinger dépendante du temps (A2. 4), nous obtenons la relation (A2. 8).

$$i\hbar \sum_n \dot{a}_n(t) e^{-\frac{iE_n t}{\hbar}} |n\rangle = \alpha V_1 \sum_n a_n(t) e^{-\frac{iE_n t}{\hbar}} |n\rangle \qquad \textbf{(A2. 8)}$$

En multipliant l'équation (A2. 8) par l'état final $\langle f|$, nous obtenons en utilisant (A2. 2) le système d'équation (A2. 9). Ce système, éventuellement infini est exact, aucune approximation n'ayant été faite jusqu'à présent.

$$\dot{a}_f(t) = \frac{1}{i\hbar}\sum_n a_n(t) e^{-\frac{i(E_n - E_f)t}{\hbar}} \langle f|\alpha V_1|n\rangle \qquad \textbf{(A2. 9)}$$

Dans l'hypothèse où, à l'état initial à $t = -\infty$, l'électron incident est suffisamment loin du solide, nous avons les conditions aux limites (A2. 10) :

$$a_n(t = -\infty) = \begin{cases} 1 \; si \; n = 0 \\ 0 \end{cases} \qquad \textbf{(A2. 10)}$$

Dans l'hypothèse d'une faible perturbation αV_1, nous supposons que les coefficients $a_n(t)$ sont une combinaison linéaire de α, même lorsque $\alpha = 1$:

$$a_n(t) = {b_n}^{(0)}(t) + \alpha {b_n}^{(1)}(t) + \cdots + \alpha^p {b_n}^{(p)}(t) \qquad \textbf{(A2. 11)}$$

$$\dot{a}_n(t) = \dot{b}_n{}^{(0)}(t) + \alpha \dot{b}_n{}^{(1)}(t) + \cdots + \alpha^p \dot{b}_n{}^{(p)}(t) \qquad \textbf{(A2. 12)}$$

En utilisant l'équation (A2. 9), nous obtenons :

$$\begin{aligned} &\dot{b}_f{}^{(0)}(t) + \alpha \dot{b}_f{}^{(1)}(t) + \cdots + \alpha^p \dot{b}_f{}^{(p)}(t) \\ &= \frac{1}{i\hbar}\sum_n \left[\alpha {b_n}^{(0)}(t) + \alpha^2 {b_n}^{(1)}(t) + \cdots + \alpha^{p+1} {b_n}^{(p)}(t)\right] e^{-\frac{i(E_n - E_f)t}{\hbar}} \langle f|V_1|n\rangle \end{aligned} \qquad \textbf{(A2. 13)}$$

En identifiant les termes en α, puis en faisant tendre α vers 1, nous obtenons :

$$\dot{b}_f{}^{(0)}(t) = 0 \qquad \textbf{(A2. 14)}$$

$$\dot{b}_f{}^{(1)}(t) = \frac{1}{i\hbar}\sum_n \left[{b_n}^{(0)}(t)\right] e^{-\frac{i(E_n - E_f)t}{\hbar}} \langle f|V_1|n\rangle \qquad \textbf{(A2. 15)}$$

$$\dot{b}_f{}^{(p)}(t) = \frac{1}{i\hbar}\sum_n \left[{b_n}^{(p-1)}(t)\right] e^{-\frac{i(E_n - E_f)t}{\hbar}} \langle f|V_1|n\rangle \qquad \textbf{(A2. 16)}$$

Ce système peut être résolu par itération car les ${b_f}^{(0)}(t)$ sont connus. La première équation indique que les coefficients ${b_f}^{(0)}(t)$ sont constants. En utilisant les conditions initiales (A2. 10) sur les coefficients $a_f(t)$, nous obtenons l'expression de la perturbation à l'ordre nul ${b_f}^{(0)}(t)$, de la perturbation au premier ordre ${b_f}^{(1)}(t)$ et de la perturbation au deuxième ordre ${b_f}^{(2)}(t)$:

$$ {b_f}^{(0)}(t) = \begin{cases} 1 \; si \; f = 0 \\ 0 \end{cases} \quad \textbf{(A2. 17)} $$

$$ {b_f}^{(1)}(t) = \int_{t_0}^{t} e^{-\frac{i(E_0 - E_f)t}{\hbar}} \langle f|V_1|0\rangle \frac{dt}{i\hbar} \quad \textbf{(A2. 18)} $$

$$ {b_f}^{(2)}(t) = \int_{t_0}^{t} \frac{1}{i\hbar} \sum_n \left[\int_{t_0}^{t} e^{-\frac{i(E_0 - E_n)t'}{\hbar}} \langle n|V_1|0\rangle \frac{dt'}{i\hbar} \right] e^{-\frac{i(E_n - E_f)t}{\hbar}} \langle f|V_1|n\rangle dt \quad \textbf{(A2. 19)} $$

Afin de déterminer le taux de transition $\tau_{0\to f}(t)$, nous devons trouver une expression simplifiée du potentiel V_1 caractérisant l'interaction entre l'électron incident et un électron de cœur d'un atome du solide, ou entre l'électron incident et les électrons faiblement liés du solide.

C. EXPRESSION DE LA SECTION EFFICACE POUR LES INTERACTIONS AVEC LES ÉLECTRONS DE CŒUR

De manière générale, le potentiel de Coulomb V_1 décrivant l'interaction entre une particule chargée de charge ze ($z = -e$ pour un électron) située à la position r et les $\mathcal{Z}$ électrons de l'atome du solide s'écrit :

$$ V_1 = -\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \sum_{j=1}^{\mathcal{Z}} \frac{ze}{|r - r_j|} \quad \textbf{(A2. 20)} $$

où r_j désigne la position du j-ième électron de l'atome du solide. Afin de simplifier l'écriture de $\langle f|V_1|0\rangle$, nous nous plaçons dans le cadre de l'approximation de Born-Oppenheimer et considérons ainsi que la fonction d'onde de l'ensemble du système en interaction peut être écrite comme un produit de la fonction d'onde de l'électron

incident notée φ_0 avant et φ_f après l'interaction, et de la fonction d'onde de l'atome du solide notée ϕ_0 avant et ϕ_f après l'interaction **[NIK12]**.

$$\langle f|V_1|0\rangle = \langle \varphi_f \phi_f | V_1 | \varphi_0 \phi_0 \rangle \qquad \textbf{(A2. 21)}$$

Dans l'hypothèse où l'électron est suffisamment loin de l'atome avant et après l'interaction, nous pouvons supposer que sa fonction d'onde est décrite par des ondes planes occupant un volume L^3 de la forme :

$$\varphi_n(\vec{r}) = \frac{e^{i\vec{k}_n\vec{r}}}{L^{3/2}} \qquad \textbf{(A2. 22)}$$

Cette hypothèse supplémentaire, ajoutée à la première approximation de Born, constitue l'approximation de Born des ondes planes (notée PWBA en anglais pour Plane Wave Born Approximation). En utilisant la relation (A2. 23), nous obtenons l'expression (A2. 24) **[NIK12]**. Une démonstration analogue à la relation (A2. 23) se trouve dans la section D.

$$\int |r - r_j|^{-1} e^{i\vec{k}\vec{r}} d^3\vec{r} = \frac{4\pi}{k^2} e^{i\vec{k}\vec{r}_j} \qquad \textbf{(A2. 23)}$$

$$\langle f|V_1|0\rangle = \frac{(-ze)}{\varepsilon_0 k^2}\frac{1}{L^3}\left\langle \phi_f \left| \sum_{j=1}^{Z} e^{i\vec{k}\vec{r}_j} \right| \phi_0 \right\rangle = \frac{1}{L^3}\frac{(-ze)}{\varepsilon_0 k^2} F_{0f}(k) \qquad \textbf{(A2. 24)}$$

Par définition, le terme $F_{0f}(k)$ est le facteur de structure dynamique. Pour les atomes isolés ou les molécules, il est souvent remplacé par une quantité $f_{0f}(k)$ légèrement différente que l'on appelle le GOS pour « Generalized Oscillator Strength » **[NIK12]**.

$$f_{0f}(k) = \frac{E_f}{Q}|F_{0f}(k)|^2 \qquad \textbf{(A2. 25)}$$

où $Q = q^2/2m$. Nous obtenons alors l'expression simplifiée :

$$|\langle f|V_1|0\rangle|^2 = \left(\frac{1}{L^3}\right)^2 \left(\frac{ze}{\varepsilon_0 k^2}\right)^2 |F_{0f}(k)|^2 = \left(\frac{1}{L^3}\right)^2 \left(\frac{ze}{\varepsilon_0 k^2}\right)^2 f_{0f}(k)\frac{q^2}{2m}\frac{1}{E_f} \qquad \textbf{(A2. 26)}$$

Le facteur $\left|F_{0f}(k)\right|^2$ représente la probabilité que l'atome du solide soit excité dans l'état $|f\rangle$ après avoir reçu un moment transféré q depuis son état fondamental $|0\rangle$. En reprenant l'équation (A2. 18) et en supposant pour simplifier que le terme $\langle f|V_1|0\rangle$ est indépendant du temps, nous obtenons une expression approchée du coefficient $|b_f{}^{(1)}(t)|^2$:

$$b_f{}^{(1)}(t) \approx \langle f|V_1|0\rangle \left[\frac{e^{-\frac{i(E_0-E_f)t}{\hbar}}}{(E_0-E_f)} - \frac{e^{-\frac{i(E_0-E_f)t_0}{\hbar}}}{(E_0-E_f)}\right] \qquad \textbf{(A2. 27)}$$

$$|b_f{}^{(1)}(t)|^2 \approx |\langle f|V_1|0\rangle|^2 4 \frac{\sin^2\left(\frac{(E_0-E_f)(t-t_0)}{2\hbar}\right)}{(E_0-E_f)^2} \qquad \textbf{(A2. 28)}$$

Par définition de la fonction Dirac (A2. 29), nous déduisons une expression simplifiée du coefficient :

$$\lim_{t-t_0\to+\infty} \frac{2\hbar \sin^2\left(\frac{(E_0-E_f)(t-t_0)}{2\hbar}\right)}{\pi(t-t_0)(E_0-E_f)^2} = \delta(E_0-E_f) \qquad \textbf{(A2. 29)}$$

$$|b_f{}^{(1)}(t)|^2 \approx |\langle f|V_1|0\rangle|^2 \delta(E_0-E_f)\frac{2\pi(t-t_0)}{\hbar} \qquad \textbf{(A2. 30)}$$

Le taux de transition est pour un niveau non dégénéré :

$$\tau_{0\to f} = \frac{\left|a_f(t)\right|^2}{t} = \frac{\left|b_f{}^{(1)}(t)\right|^2}{t} \approx |\langle f|V_1|0\rangle|^2 \delta(E_0-E_f)\frac{2\pi}{\hbar} \qquad \textbf{(A2. 31)}$$

Ce taux de transition correspond à un état final $|f\rangle$ isolé. Dans le cas d'un continuum d'états finaux de densité d'états $\rho(E_f)$ nous devons sommer la relation (A2. 31) sur l'ensemble des états finaux $|f\rangle$ accessibles :

$$\tau_{0\to f} = \int |\langle f|V_1|0\rangle|^2 \delta(E_0 - E_f)\frac{2\pi}{\hbar}\rho(E_f)dE_f \qquad \textbf{(A2. 32)}$$

Par définition de la fonction Dirac, nous retrouvons la règle d'or de Fermi :

$$\tau_{0\to f} = \frac{2\pi}{\hbar}|\langle f|V_1|0\rangle|^2\rho(E_f) \qquad \textbf{(A2. 33)}$$

Dans l'hypothèse où l'électron incident peut être décrit par des ondes planes contenues dans une cavité de volume L^3, la densité d'états finaux est **[COH94]** :

$$\rho(k_f)d^3k_f = \left(\frac{L}{2\pi}\right)^3 {k_f}^2 dk_f d\Omega = \rho(E_f)dE_f \qquad \textbf{(A2. 34)}$$

D'où :

$$\rho(E_f) = \left(\frac{L}{2\pi}\right)^3 {k_f}^2\left(\frac{dk_f}{dE_f}\right)d\Omega = \left(\frac{L}{2\pi\hbar}\right)^3 m\hbar k_f d\Omega \qquad \textbf{(A2. 35)}$$

En utilisant la relation (A2. 36) :

$$k^2 = \left|\vec{k}_f - \vec{k}_0\right|^2 = {k_f}^2 + {k_0}^2 - 2cos\theta k_0 k_f \qquad \textbf{(A2. 36)}$$

Nous déduisons :

$$2kdk = 2k_0 k_f sin\theta d\theta \qquad \textbf{(A2. 37)}$$

$$d\Omega \approx 2\pi sin\theta d\theta \approx \frac{2\pi kdk}{k_0 k_f} \qquad \textbf{(A2. 38)}$$

Nous obtenons alors :

$$\tau_{0\to f} = \frac{1}{L^3}\left(\frac{z^2e^2}{{\varepsilon_0}^2}\right)\frac{1}{k^3}\left|F_{0f}(k)\right|^2\left(\frac{1}{2\pi\hbar}\right)\frac{mdk}{\hbar^2 k_0} \qquad \textbf{(A2. 39)}$$

Par définition, la section efficace différentielle $\sigma(k)/dk$ est obtenue en divisant le taux de transition par le flux de particules incidentes F **[RIT59]**. Pour une onde plane la probabilité associée à la présence de la particule dans le volume L^3 étant uniforme, nous avons :

$$F = \frac{\hbar k_0}{L^3 m} \quad \textbf{(A2. 40)}$$

En posant $v = (\hbar k_0)/m$, nous déduisons l'expression de la section efficace différentielle en moment transféré $\hbar k$ pour un atome **[NIK12]** :

$$\frac{d\sigma}{dk} = \left(\frac{e^2}{2\pi\varepsilon_0{}^2\hbar^2}\right)\frac{z^2}{v^2}\left|F_{0f}(k)\right|^2\frac{1}{k^3} \quad \textbf{(A2. 41)}$$

En utilisant l'expression du rayon de Bohr a_0 en unité SI :

$$a_0 = \frac{4\pi\hbar^2\varepsilon_0}{me^2} \quad \textbf{(A2. 42)}$$

Nous obtenons finalement :

$$\frac{d\sigma}{dk} = \left(\frac{8\pi\hbar^2}{a_0{}^2 m^2 e^2}\right)\frac{z^2}{v^2}\left|F_{0f}(k)\right|^2\frac{1}{k^3} \quad \textbf{(A2. 43)}$$

D. EXPRESSION DU POTENTIEL DE L'INTERACTION DANS L'HYPOTHÈSE D'UN GAZ D'ÉLECTRONS LIBRES

Si nous nous intéresserons aux interactions entre un électron incident et les électrons faiblement liés du solide, nous pouvons, en suivant les travaux de Pines **[PIN64]** et de Ritchie **[RIT59]**, considérer que le solide est un gaz d'électrons libres. Dans cette hypothèse, nous négligeons les effets de la surface.

Dans le cas d'une faible perturbation, nous considérons que la modification de la densité de charges du gaz d'électrons libres due à l'électron incident est suffisamment faible pour être traitée comme une perturbation linéaire. Nous notons $z\rho_{ext}(\vec{r},t)$ la densité de charge induite par l'électron incident dans le solide. Cette densité est dépendante du temps et est définie par la relation (A2. 44) **[RIT59, PIN64]** :

$$z\rho_{ext}(\vec{r},t) = \frac{1}{TL^3}\sum_{k}\sum_{\omega} z\,\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}e^{i(\vec{k}\vec{r}-\omega t)} \qquad \textbf{(A2. 44)}$$

La notation $\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}$ désigne la composante en k et en ω de la transformée de Fourier de la fonction $\rho_{ext}(\vec{r},t)$ qui est définie sur l'intervalle de temps T (pris suffisamment large par rapport à l'interaction) et dans le volume L^3. Par convention, nous avons réciproquement :

$$z\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)} = \int\int z\rho_{ext}(\vec{r},t)e^{-i(\vec{k}\vec{r}-\omega t)}d^3\vec{r}dt \qquad \textbf{(A2. 45)}$$

Le potentiel de Coulomb $V_1(\vec{r},t)$ associé à la densité de charge $z\rho_{ext}(\vec{r},t)$ est défini par :

$$V_1(\vec{r},t) = -\sum_{j=1}^{Z}\int \frac{ez\rho_{ext}(\vec{r},t)}{4\pi\varepsilon_0|r-r_j|}d^3\vec{r} \qquad \textbf{(A2. 46)}$$

Afin de simplifier les calculs, nous allons réécrire ce potentiel en fonction de la transformée de Fourier $\boldsymbol{V_1(k\omega)}$ de V_1 :

$$V_1(\vec{r},t) = -\lim_{\delta\to 0}\left(\frac{1}{L^3T}\sum_{k}\sum_{\omega}\boldsymbol{V_1(k\omega)}e^{i(\vec{k}\vec{r}-\omega t)}\right)e^{\delta t} \qquad \textbf{(A2. 47)}$$

La quantité positive δ tend vers 0 et nous assure que l'électron et le gaz d'électrons libres n'interagissent pas à $t = +\infty$. Cette écriture suppose que l'interaction se produit lentement de manière adiabatique et que le potentiel atteint la valeur $V_1(\vec{r}, t = +\infty) = 0$ après l'interaction. Le potentiel V_1 variant périodiquement, d'après Pines **[PIN64]** la relation (A2. 47) peut être réécrite sous la forme (A2. 48). La notation + désigne le complexe conjugué.

$$V_1(\vec{r},t) = -\lim_{\delta\to 0}\frac{1}{L^3T}\left[\boldsymbol{V_1(k\omega)}e^{i(\vec{k}\vec{r}-\omega t)}e^{\delta t} + \boldsymbol{V_1^+(k\omega)}e^{-i(\vec{k}\vec{r}-\omega t)}e^{\delta t}\right] \qquad \textbf{(A2. 48)}$$

En reprenant les équations précédentes, nous pouvons écrire :

$$V_1(\vec{r},t) = -\frac{1}{TL^3}\sum_{j=1}^{Z}\int\sum_{k}\sum_{\omega} z\,\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}e^{i(\vec{k}\vec{r}-\omega t)}\frac{e}{4\pi\varepsilon_0|r-r_j|}d^3\vec{r} \qquad \textbf{(A2. 49)}$$

$$V_1(\vec{r},t) = -\frac{1}{TL^3}\sum_{j=1}^{Z}\sum_{k}\sum_{\omega}(ez)\,\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}\,e^{-i\omega t}e^{i\vec{k}\vec{r}_j}\int\frac{e^{i\vec{k}|\vec{r}-\vec{r}_j|}}{4\pi\varepsilon_0|r-r_j|}d^3\vec{r} \qquad \textbf{(A2. 50)}$$

Dans le terme le plus à droite, nous retrouvons la définition de la transformée de Fourier d'un potentiel de Coulomb. Obtenir directement l'expression de cette transformée de Fourier n'est pas possible car l'intégrale étudiée diverge. Pour ce faire, nous allons considérer le potentiel de Yukawa $V_\mu(r_i)$ donné par l'expression (A2. 51) où C est une constante réelle.

$$V_\mu(r_i) = \frac{C\,e^{-\mu|r_i-r_j|}}{|r_i-r_j|} \qquad \textbf{(A2. 51)}$$

Pour simplifier, nous posons $r = |r_i - r_j|$. La transformée de Fourier $\boldsymbol{V_\mu(k)}$, selon la direction $\vec{k}$ de ce nouveau potentiel est en utilisant des coordonnées polaires (A2. 54) :

$$\boldsymbol{V_\mu(k)} = \int\frac{C\,e^{-\mu r}e^{-i\vec{k}.\vec{r}}}{r}d\vec{r}^3 \qquad \textbf{(A2. 52)}$$

$$\boldsymbol{V_\mu(k)} = \int_0^{2\pi}\int_0^{\pi}\int_0^{\infty}\frac{C\,e^{-\mu r}e^{-ikcos\theta r}}{r}r^2 sin\theta dr d\theta d\varphi \qquad \textbf{(A2. 53)}$$

$$\boldsymbol{V_\mu(k)} = 2\pi C\int_0^{\infty}e^{-\mu r}\left[\frac{e^{+ikr}}{ikr}-\frac{e^{-ikr}}{ikr}\right]rdr \qquad \textbf{(A2. 54)}$$

$$\boldsymbol{V_\mu(k)} = \frac{2\pi C}{ik}\left[\frac{e^{+ikr-\mu r}}{ik-\mu}-\frac{e^{-ikr-\mu r}}{-ik-\mu}\right]_0^{\infty} \qquad \textbf{(A2. 55)}$$

Lorsque μ tend vers 0, nous obtenons la transformée de Fourier du potentiel de Coulomb :

$$\boldsymbol{V_0(k)} = \frac{4\pi C}{k^2} \qquad \textbf{(A2. 56)}$$

Nous déduisons une expression simplifiée de $V_1(\vec{r},t)$:

$$V_1(\vec{r},t) = -\frac{1}{TL^3}\left(\frac{ez}{\varepsilon_0 k^2}\right)\sum_{\omega}\sum_{k}\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}e^{-i\omega t}\sum_{j=1}^{\mathcal{Z}}e^{i\vec{k}\vec{r}_j} \qquad \textbf{(A2. 57)}$$

En suivant les notations de Pines **[PIN64]**, nous pouvons écrire le potentiel V_1 de l'interaction en fonction des fluctuations de la densité électronique $\rho(\vec{r})$ du gaz d'électrons libres à la position $\vec{r}$. Nous notons $\boldsymbol{\rho_k}$ la transformée de Fourier de $\rho(\vec{r})$. En ce sens, $\boldsymbol{\rho_k}$ représente la fluctuation de la densité par rapport à la densité moyenne.

$$\rho(\vec{r}) = \sum_i \delta(r - ri) = \sum_k \frac{1}{L^3}\boldsymbol{\rho_k}e^{i\vec{k}\vec{r}} \qquad \textbf{(A2. 58)}$$

$$\boldsymbol{\rho_k} = \int_{-\infty}^{\infty}\sum_i \delta(r - ri)\, e^{-i\vec{k}\vec{r}}dr = \sum_i e^{-i\vec{k}\vec{r}i} \qquad \textbf{(A2. 59)}$$

En reprenant les équations **(A2. 48)** et **(A2. 18)**, nous obtenons :

$$V_1(\vec{r},t) = -\lim_{\delta\to 0}\frac{1}{L^3T}\left[\frac{ez\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}}{k^2\varepsilon_0}\boldsymbol{\rho_k}^{+}e^{-i\omega t}e^{\delta t} + \frac{ez\boldsymbol{\rho_{ext}}^{+}\boldsymbol{(k\omega)}}{k^2\varepsilon_0}\boldsymbol{\rho_k}e^{i\omega t}e^{\delta t}\right] \qquad \textbf{(A2. 60)}$$

$$b_f{}^{(1)}(t) = \int_{t_0}^{t} e^{-\frac{i(E_0-E_f)t}{\hbar}}\frac{-1}{L^3T} \times \lim_{\delta\to 0}\left\langle f\right|\left[\frac{ez\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}}{k^2\varepsilon_0}\boldsymbol{\rho_k}^{+}e^{-i\omega t}e^{\delta t} + \frac{ez\boldsymbol{\rho_{ext}}^{+}\boldsymbol{(k\omega)}}{k^2\varepsilon_0}\boldsymbol{\rho_k}e^{i\omega t}e^{\delta t}\right]\left|0\right\rangle\frac{dt}{i\hbar} \qquad \textbf{(A2. 61)}$$

Pour simplifier les calculs, nous notons ω_{0f} la pulsation et ρ_{0f}^{+} les éléments de la matrice de la densité de fluctuation correspondant au passage entre l'état $|0\rangle$ et l'état $|f\rangle$ tels que :

$$\omega_{0f} = \frac{(E_f - E_0)}{\hbar} \quad \textbf{(A2. 62)}$$

$$\left(\rho_{0f}^{+}\right) = \langle f|\boldsymbol{\rho}_{\boldsymbol{k}}^{+}|0\rangle \quad \textbf{(A2. 63)}$$

D'où :

$$b_f{}^{(1)}(t) =$$

$$-\lim_{\delta\to 0}\frac{ez}{\hbar k^2\varepsilon_0}\frac{1}{L^3T}\left[\boldsymbol{\rho_{ext}}(\boldsymbol{k\omega})\left(\rho_{0f}^{+}\right)\left(\frac{e^{-i(\omega-\omega_{0f})t}e^{\delta t}}{-\omega_{0f}+\omega+i\delta}-\frac{e^{-i(\omega-\omega_{0f})t_0}e^{\delta t_0}}{-\omega_{0f}+\omega+i\delta}\right)\right.$$

$$\left.-\boldsymbol{\rho_{ext}}^{+}(\boldsymbol{k\omega})(\rho_{0f})\left(\frac{e^{i(\omega+\omega_{0f})t}e^{\delta t}}{\omega_{0f}+\omega-i\delta}-\frac{e^{i(\omega+\omega_{0f})t_0}e^{\delta t_0}}{\omega_{0f}+\omega-i\delta}\right)\right] \quad \textbf{(A2. 64)}$$

Maintenant que nous avons identifié les coefficients $b_f{}^{(1)}(t)$ solution au premier ordre de l'équation de Schrödinger, nous pouvons calculer le taux de transition. En faisant tendre δ vers 0 et en remarquant que lorsqu'un état $\langle f|$ est couplé avec l'état fondamental $|0\rangle$ par (ρ_{0f}), ce même état ne peut pas être couplé avec l'état fondamental par $\left(\rho_{0f}^{+}\right)$, nous obtenons :

$$\left|b_f{}^{(1)}(t)\right|^2 = \left(\frac{ez}{\hbar k^2\varepsilon_0}\frac{1}{L^3T}\right)^2\left[|\boldsymbol{\rho_{ext}}(\boldsymbol{k\omega})|^2\left|\rho_{0f}^{+}\right|^2 4\frac{sin^2\left(\frac{(\omega-\omega_{0f})(t-t_0)}{2}\right)}{\left(\omega-\omega_{0f}\right)^2}\right.$$

$$\left.+\,|\boldsymbol{\rho_{ext}}^{+}(\boldsymbol{k\omega})|^2\left|(\rho_{0f})\right|^2 4\frac{sin^2\left(\frac{(\omega+\omega_{0f})(t-t_0)}{2}\right)}{\left(\omega+\omega_{0f}\right)^2}\right] \quad \textbf{(A2. 65)}$$

Nous obtenons finalement, en utilisant la définition de la fonction Dirac et la relation $\delta(ax) = \frac{1}{|a|}\delta(x)$ avec $a \neq 0$:

$$\tau_{0\to f} = \frac{2\pi}{\hbar^2}\left(\frac{ez}{k^2\varepsilon_0}\right)^2\left(\frac{1}{L^3T}\right)^2\Big[|\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}|^2\left|\rho_{0f}^{+}\right|^2\delta(\omega-\omega_{0f}) + |\boldsymbol{\rho_{ext}}^{+}\boldsymbol{(k\omega)}|^2\left|(\rho_{0f})\right|^2\delta(\omega+\omega_{0f})\Big] \qquad \textbf{(A2. 66)}$$

A partir des coefficients ${b_f}^{(1)}(t)$ nous pouvons également calculer la fluctuation de la densité de charge électronique $\langle\rho_k(t)\rangle$ due à l'électron incident. Dans l'hypothèse d'une faible perturbation, nous supposons que la réponse est linéaire de la forme **[PIN64]** :

$$\langle\rho_k(t)\rangle = \frac{1}{T}\sum_n \langle 0|\boldsymbol{\rho_k}|n\rangle a_n(t)e^{-i\omega_{0n}t} + \langle n|\boldsymbol{\rho_k}|0\rangle {a_n}^{+}(t)e^{i\omega_{0n}t} \qquad \textbf{(A2. 67)}$$

Comme ${a_n}^{(1)}(t) = {b_n}^{(1)}(t)$ pour $n \neq 0$, nous avons :

$$\begin{aligned}\langle\rho_k(t)\rangle = -\lim_{\delta\to 0}\frac{ez}{\hbar k^2\varepsilon_0}\frac{1}{L^3T^2}\sum_n \langle 0|\boldsymbol{\rho_k}|n\rangle \\ \times\Bigg[\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}(\rho_{0n}^{+})\left(\frac{e^{-i(\omega-\omega_{0n})t}e^{\delta t}}{-\omega_{0n}+\omega+i\delta}-\frac{e^{-i(\omega-\omega_{0n})t_0}e^{\delta t_0}}{-\omega_{0n}+\omega+i\delta}\right) \\ -\boldsymbol{\rho_{ext}}^{+}\boldsymbol{(k\omega)}(\rho_{0n})\left(\frac{e^{i(\omega+\omega_{0n})t}e^{\delta t}}{\omega_{0n}+\omega-i\delta}-\frac{e^{i(\omega+\omega_{0n})t_0}e^{\delta t_0}}{\omega_{0n}+\omega-i\delta}\right)\Bigg]e^{-i\omega_{0n}t} \\ +\langle n|\boldsymbol{\rho_k}|0\rangle\Bigg[\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}(\rho_{0n}^{+})\left(\frac{e^{-(\omega-\omega_{0n})t}e^{\delta t}}{-\omega_{0n}+\omega-i\delta}-\frac{e^{i(\omega-\omega_{0n})t_0}e^{\delta t_0}}{-\omega_{0n}+\omega-i\delta}\right) \\ -\boldsymbol{\rho_{ext}}^{+}\boldsymbol{(k\omega)}(\rho_{0n})\left(\frac{e^{-i(\omega+\omega_{0n})t}e^{\delta t}}{\omega_{0n}+\omega+i\delta}-\frac{e^{-i(\omega+\omega_{0n})t_0}e^{\delta t_0}}{\omega_{0n}+\omega+i\delta}\right)\Bigg]e^{i\omega_{0n}t}\end{aligned}$$

(A2. 68)

Par définition, nous avons la relation ${\rho_{ext}}^{+}(k\omega) = \rho_{ext}(k\omega)$. En choisissant $t_0 = -\infty$ et en faisant tendre δ vers 0, nous obtenons :

$$\langle \rho_k(t) \rangle = -\lim_{\delta \to 0} \frac{ez}{\hbar k^2 \varepsilon_0} \frac{1}{L^3 T^2} \boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)} e^{-i\omega t} e^{\delta t} \times \sum_n \left[\left(\frac{|\rho_{0n}^+|^2}{-\omega_{0n} + \omega + i\delta} - \frac{|(\rho_{0n})|^2}{\omega + \omega_{0n} + i\delta} \right) \right] \quad \textbf{(A2. 69)}$$

La fonction diélectrique ε correspond à la réponse macroscopique de l'ensemble des électrons faiblement liés d'un solide lorsque ce solide est perturbé par une onde électromagnétique, par exemple un flux de photons ou d'électrons. Dans l'hypothèse d'un milieu linéaire, homogène et isotrope, elle est définie pour chacune de ses composantes de Fourier $\boldsymbol{\varepsilon(k\omega)}$, dans le système d'unité SI, par :

$$\boldsymbol{D(k\omega)} = \varepsilon_0 \, \boldsymbol{\varepsilon(k\omega) E(k\omega)} \quad \textbf{(A2. 70)}$$

L'équation de Poisson **(A2. 71)** et l'équation de Maxwell-Gauss **(A2. 72)**, nous indiquent que :

$$ik. \boldsymbol{E(k\omega)} = \frac{1}{\varepsilon_0} [e < \boldsymbol{\rho(k\omega)} > + z\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}] \quad \textbf{(A2. 71)}$$

$$ik. \mathbf{D(k\omega)} = z\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)} \quad \textbf{(A2. 72)}$$

Le terme $< \boldsymbol{\rho(k\omega)} >$ correspond à la composante de Fourier en k et en ω de la fluctuation de charges $\langle \rho_k(t) \rangle$. Lorsque le solide n'est pas soumis à une charge, nous avons $< \boldsymbol{\rho(k\omega)} >= 0$. En reprenant les équations précédentes, nous trouvons :

$$\frac{1}{\boldsymbol{\varepsilon(k\omega)}} = \frac{e < \boldsymbol{\rho(k\omega)} > + z\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}}{z\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}} = 1 + \frac{e < \boldsymbol{\rho(k\omega)} >}{z\boldsymbol{\rho_{ext}(k\omega)}} \quad \textbf{(A2. 73)}$$

Par identification avec les équations précédentes, nous déduisons :

$$\frac{1}{\boldsymbol{\varepsilon(k\omega)}} = 1 - \lim_{\delta \to 0} \frac{e^2}{\hbar k^2 \varepsilon_0} \frac{1}{L^3 T^2} e^{\delta t} \sum_n \left[\left(\frac{|\rho_{0n}^+|^2}{-\omega_{0n} + \omega + i\delta} - \frac{|\rho_{0n}|^2}{\omega + \omega_{0n} + i\delta} \right) \right] \quad \textbf{(A2. 74)}$$

Dans l'hypothèse où $\rho_{n0}^+ = \rho_{n0}$ et avec $\delta \to 0$, nous avons, en utilisant la relation

$$\lim_{\delta \to 0} \frac{1}{x \pm i\delta} = \Re e \left(\frac{1}{x} \right) \mp i\pi\delta(x) \quad \textbf{(A2. 75)}$$

$$Im\left[\frac{-1}{\boldsymbol{\varepsilon}(\boldsymbol{k\omega})}\right] = \frac{\pi e^2}{\hbar k^2 \varepsilon_0}\frac{1}{L^3T^2}\sum_n \left|\rho_{0n}^{+}\right|^2[\delta(\omega-\omega_{0n})-\delta(\omega+\omega_{0n})] \qquad \textbf{(A2. 76)}$$

La partie réelle représente les processus de polarisation qui sont en phase avec le champ extérieur introduit par la particule incidente. La partie imaginaire représente la partie en déphasage, et est donc associée aux transferts en énergie de la particule incidente aux électrons du solide. Par convention, on définit le facteur de forme dynamique $S(k,\omega)$. Ce facteur donne directement accès à la fluctuation de la densité électronique en réponse à la perturbation due à l'électron incident **[PIN64]**.

$$S(k,\omega) = \sum_n |(\rho_{0n}^{+})|^2\delta(\omega-\omega_{0n}) \qquad \textbf{(A2. 77)}$$

D'où :

$$Im\left[\frac{-1}{\boldsymbol{\varepsilon}(\boldsymbol{k\omega})}\right] = \frac{\pi e^2}{\hbar k^2 \varepsilon_0}\frac{1}{L^3T^2}[S(k,\omega)-S(k,-\omega)] \qquad \textbf{(A2. 78)}$$

Par définition, nous avons $|\rho_{ext}(k\omega)|^2 = 1$. La probabilité par unité de temps de transférer une énergie $\hbar\omega$ et un moment $\hbar k$ est en considérant uniquement les transferts d'énergie $\hbar\omega$ positifs **[RIT59, PIN64]** est :

$$\tau_{0\to f}(k\omega) = \frac{2}{\hbar}\left(\frac{z^2}{k^2\varepsilon_0}\right)\frac{1}{L^3}Im\left[\frac{-\mathbf{1}}{\boldsymbol{\varepsilon}(\boldsymbol{k\omega})}\right] \qquad \textbf{(A2. 79)}$$

Dans le cas de solide, les états $|f\rangle$ accessibles à l'électron incident après l'interaction sont regroupés dans un continuum d'états $\mathcal{D}_{k_f}$. Nous avons alors :

$$\tau_{0\to f}(k\omega) = \sum_{k_f\in\mathcal{D}_{k_f}} \frac{2z^2}{\varepsilon_0\hbar L^3}Im\left[\frac{-1}{\boldsymbol{\varepsilon}(\boldsymbol{\omega},\boldsymbol{k})}\right]\frac{1}{k^2} \qquad \textbf{(A2. 80)}$$

Le passage de la somme à l'intégrale est donné par l'équation suivante **[RIT59]** :

$$\sum_{kf} \rightarrow \frac{2m}{\hbar^2}\left(\frac{L}{2\pi}\right)^3 \int k_f d\Omega d(\hbar\omega) \qquad \textbf{(A2. 81)}$$

Par définition, la section efficace différentielle est obtenue, en divisant le taux de transition par le flux de particules incidentes F définie par la relation **(A2. 40)**, par le volume L^3 et par la densité atomique N. Nous obtenons, dans le cas d'un faisceau d'électrons $(z = -e)$, l'expression de la section efficace différentielle en angle solide $d\Omega$ et en énergie transférée $\hbar\omega$ **[RIT59]** :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d(\hbar\omega)} = \frac{1}{4\pi^3\varepsilon_0}\frac{m^2e^2}{N\hbar^4} Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega,k)}\right]\frac{k_f}{k^2k_0} \qquad \textbf{(A2. 82)}$$

Nous pouvons exprimer la section efficace en moment transféré $\hbar k$ en utilisant les relations **(A2. 36)**, **(A2. 37)** et **(A2. 38)** de la section C :

$$\frac{d^2\sigma}{d(\hbar k)d(\hbar\omega)} = \frac{d^2\sigma}{d\Omega d(\hbar\omega)}\frac{d\Omega}{d(\hbar k)} = \frac{me^2}{4\pi^2\varepsilon_0 N\,\hbar^2E_0} Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega,k)}\right]\frac{1}{\hbar k} \qquad \textbf{(A2. 83)}$$

En utilisant l'expression du rayon de Bohr a_0 en unité SI :

$$a_0 = \frac{4\pi\hbar^2\varepsilon_0}{me^2}$$

Nous obtenons finalement l'expression :

$$\frac{d^2\sigma}{d(\hbar k)d(\hbar\omega)} = \frac{1}{\pi a_0 N E_0} Im\left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega,k)}\right]\frac{1}{\hbar k} \qquad \textbf{(A2. 84)}$$

ANNEXE 3 : CARACTÉRISTIQUES DU CODE OSMOSEE ET DU MODULE MICROELEC

TABLEAU A3. 1. Caractéristiques des modèles physiques implémentés dans les versions initiales du code OSMOSEE et du module MicroElec

	OSMOSEE [ROU13]	**MicroElec [VAL12]**
Interactions élastiques	10 eV - 500 keV Modèle des ondes partielles de Mott par le code ELSEPA **[SAL05]**.	5 eV - 100 MeV Pour une énergie supérieure à 50 eV, base de données ICRU calculée à partir du code ELSEPA **[SAL05]** ; pour une énergie inférieure à 50 eV, sections efficaces *ab initio* de CS_2 **[BET05]**
Interactions inélastiques	Modèles analytiques **[ROU13]** Ashley & Ritchie, Chung & Everhart pour les interactions individuelles avec les électrons faiblement liés, Chung & Everhart pour le plasmon de volume, modèle simple pour le plasmon de surface, Gryzinki **[GRY65]** pour les électrons de cœur, modélisation partielle des désexcitations Auger, modélisation de la barrière de potentiel de la surface, pas de phonons	16,7 eV – 100 MeV Modèle des fonctions diélectriques **[VAL12]**, modélisation précise des désexcitations Auger **[ALL16]**, pas de séparation des interactions individuelles et des plasmons de volume, pas de plasmon de surface, pas de modélisation de la barrière de potentiel de la surface, pas de phonons
Energie de seuil	~0 eV dans le vide $E_F + W$ dans le solide	16,7 eV dans le vide 16,7 eV dans le solide
Matériaux implémentés	Aluminium Argent (non validé)	Silicium (non validé)

TABLEAU A3. 2. Caractéristiques des modèles physiques implémentés au cours de cette thèse dans les codes OSMOSEE et MicroElec.

	OSMOSEE	**MicroElec**
Interactions inélastiques	Modèle des fonctions diélectriques **[RIT77]** avec séparation des différentes interactions, extension jusqu'à 10 keV et au plasmon de surface, modélisation plus complète des désexcitations Auger, modélisation simple des phonons pour le silicium.	~ eV – 10 keV modèle des fonctions diélectriques, séparation des interactions individuelles avec les électrons faiblement liés et des plasmons de volume, modélisation de la barrière de potentiel de la surface
Energie de seuil	~0 eV dans le vide	~ 5 eV dans le vide
Matériaux validés	Aluminium Argent Silicium	Aluminium Argent Silicium

LISTE DES FIGURES

Chapitre 1 : Enjeux de l'étude et état de l'art

FIGURE 1.1. Représentation de la position des ceintures de protons et d'électrons qui entourent la terre ainsi que de l'orbite géostationnaire (GEO), et des orbites des systèmes de navigation Galileo et GPS. 12
FIGURE 1.2. Distribution des électrons d'énergie supérieure à 1 MeV à une altitude de 500 km autour de la Terre calculée par le modèle AE-8 MAX. 13
FIGURE 1.3. Profondeurs de pénétration calculées dans l'approximation CSDA (Continous Slowing Down Approximation) pour les électrons dans l'aluminium. 14
FIGURE 1.4. Schéma simplifié de l'architecture du système de télécommunication d'un satellite. 18
FIGURE 1.5. Evolution au cours du temps du déplacement des électrons libres dans un guide d'ondes radiofréquences. Cas d'un effet multipactor à deux points et d'ordre 2. 21
FIGURE 1.6. Courbe de rendement d'émission de l'argent. 23
FIGURE 1.7. Rendement d'émission électronique de l'argent pour un matériau théorique et un matériau technique. 25
FIGURE 1.8. Rendement d'émission électronique de l'aluminium pour différents angles d'incidence. 27

Chapitre 2 : Physique de l'émission électronique et codes de transport deMonte-Carlo à basse énergie

FIGURE 2.1. Schéma simplifié du transport des électrons dans un solide. 33
FIGURE 2.2. Rendement d'émission des électrons secondaires et des électrons rétrodiffusés du silicium. 35
FIGURE 2.3. Spectre en énergie pour le silicium pour des électrons d'énergie d'incidence de E_0=1 keV. 35
FIGURE 2.4. Représentation des transferts d'énergie et de moments lors d'une interaction entre un électron incident et un électron du solide. 38
FIGURE 2.5. Représentation simplifiée de la diffusion d'un faisceau d'électrons par un centre diffuseur. 39
FIGURE 2.6. Représentation en coordonnées polaire de la probabilité de déviation pour un électron réalisant une interaction élastique dans l'aluminium. 45
FIGURE 2.7. Représentation simplifiée du diagramme de bandes du silicium lors du passage d'un atome isolé au solide 48
FIGURE 2.8. Schéma général des populations d'électrons faiblement liés selon la nature du matériau. 49
FIGURE 2.9. Représentation schématique d'un plasmon de volume. 54
FIGURE 2.10. Relation de dispersion du plasmon de volume pour l'aluminium. 55
FIGURE 2.11. Contribution du volume et de surface au libre parcours moyen en fonction de la profondeur pour des électrons de 1 keV dans du cuivre. 57
FIGURE 2.12. Représentation de la transition Auger KL1L2.3 dans l'aluminium. 61

FIGURE 2.13. Probabilité de désexcitation par émission d'un électron Auger ou de photons pour différents matériaux en fonction de leur numéro atomique. 62
FIGURE 2.14. Représentation des références en énergie pour un métal et un semi-conducteur. 65
FIGURE 2.15. Algorithme simplifié du code Monte-Carlo OSMOSEE 71
FIGURE 2.16. Illustration de la méthode des rejets sur la distribution normée dσ(u)/du. 73
FIGURE 2.17. Probabilités de transmission obtenues via le code OSMOSEE pour des électrons primaires de 100 eV dans l'aluminium et définition des profondeurs caractéristiques 76
FIGURE 2.18. Calculs de doses ionisantes issus du code OSMOSEE 78

Chapitre 3 : Modélisation du transport des électrons dans les codes OSMOSEE et MicroElec

FIGURE 3. 1. Fonction de perte d'énergie optique pour l'aluminium. 94
FIGURE 3.2. Fonction de perte d'énergie optique pour l'argent. 95
FIGURE 3.3. Modélisation de la fonction de perte d'énergie optique du silicium. 96
FIGURE 3.4. Somme des Z partiels de l'aluminium 98
FIGURE 3.5. Somme des I partiels de l'aluminium. 99
FIGURE 3.6. Relation de dispersion du plasmon de volume pour l'aluminium à 14,8 eV 102
FIGURE 3.7. Libre parcours moyen inélastique du silicium calculé avec différents coefficients α et β (en 10-16 cm²) pour les relations de dispersion. 104
FIGURE 3.8. Représentation de la fonction de perte d'énergie en 3D pour le silicium en fonction de l'énergie $\hbar\omega$ et du moment $\hbar q$ transférés 105
FIGURE 3.9. Comparaison de a-) la projection de la fonction de perte d'énergie dans le plan ($\hbar\omega$,q) pour le silicium avec b-) les données expérimentales de Chen et coll.. 106
FIGURE 3.10. Comparaison de a-) la projection de la fonction de perte d'énergie dans le plan ($\hbar\omega$,q) pour l'aluminium avec b-) les données expérimentales de Batson et Silcox. 106
FIGURE 3. 11. Fonction de perte d'énergie optique pour la contribution du volume et de la surface pour l'aluminium 109
FIGURE 3. 12. Fonction de perte d'énergie optique pour la contribution du volume et de la surface pour l'argent. 109
FIGURE 3.13. (Gauche) Modélisation de la fonction de perte d'énergie en prenant en compte la contribution de la surface. (Droite) mesure de la fonction de perte d'énergie pour des électrons de 75 keV dans un film de silicium de 1000 A d'épaisseur . 111
FIGURE 3.14. Libres parcours moyens inélastiques totaux pour (a) l'aluminium, (b) l'argent et (c) le silicium. 114
FIGURE 3.15. Pouvoirs d'arrêt totaux pour (a) l'aluminium, (b) l'argent et (c) le silicium. 115
FIGURE 3.16. Libres parcours des électrons de cœur dans l'aluminium. 117
FIGURE 3.17. Libres parcours des électrons de cœur dans le silicium. 117

FIGURE 3.18. Fonction de perte d'énergie optique de l'aluminium et projection dans le plan $\hbar\omega$,q. 118
FIGURE 3.19. Libre parcours moyen de l'aluminium pour les interactions avec les plasmons de volume. 121
FIGURE 3.20. Libre parcours moyen de l'aluminium pour les interactions avec les interactions individuelles avec les électrons faiblement liés. 121
FIGURE 3.21. Comparaison des contributions des électrons faiblement liés au libre parcours moyen de l'aluminium 122
FIGURE 3.22. Pouvoir d'arrêt des électrons dans l'aluminium et contribution des différentes interactions. 122
FIGURE 3.23. Variation de la section efficace différentielle de l'argent en fonction de la profondeur z de l'électron pour une énergie de 292 eV. 124
FIGURE 3.24. Schéma simplifié des structures des bandes d'un métal et d'un diélectrique 126
FIGURE 3.25. Densités d'états pour la bande de conduction de l'aluminium 127
FIGURE 3.26. Densités d'états pour la bande de conduction de l'argent . 128
FIGURE 3.27. Densités d'états pour la bande de conduction et la bande de valence du silicium. 128
FIGURE 3.28. Rendement d'émission électronique de l'argent sans prendre en compte la cascade Auger, en prenant en compte la première étape de la cascade ou l'ensemble de la cascade. 131
FIGURE 3.29. Libres parcours moyens des phonons et des interactions inélastiques pour le silicium. 132
FIGURE 3.30. Libres parcours moyens des interactions inélastiques pour le dioxyde de silicium en prenant en compte la contribution des phonons à basse énergie. 132
FIGURE 3.31. Effet de la prise en compte de la barrière de potentiel de la surface sur le rendement d'émission électronique. 134

Chapitre 4 : Comparaison des simulations numériques avec les mesures expérimentales

FIGURE 4. 1. Schéma du montage de l'enceinte DEESSE pour la mesure des spectres en énergie. 139
FIGURE 4.2. Schéma du montage de l'enceinte DEESSE pour la mesure des rendements d'émission électroniques 141
FIGURE 4.3. Décalage des pics caractéristiques du silicium pour un échantillon présentant une couche d'oxyde à sa surface. 142
FIGURE 4.4. Spectre de perte d'énergie pour les électrons rétrodiffusés dans l'aluminium à (a) E0=1989 eV et (b) E0=130 eV. 145
FIGURE 4.5. Spectre en perte d'énergie pour les électrons rétrodiffusés dans l'argent à (a) E0=1989 eV et (b) E0=130 eV. 147
FIGURE 4.6. Spectre de perte d'énergie pour les électrons rétrodiffusés du silicium à (a) E0=1990 eV et à (b) E0=100 eV. 148
FIGURE 4.7. Spectre en énergie des électrons dans le silicium pour une énergie incidente E0=1000 eV. 151

FIGURE 4.8. Spectre en énergie pour les électrons secondaires de l'aluminium pour une énergie incidente de E0=500 eV. 152
FIGURE 4.9. (a) et (b) rendement d'émission électronique entre 10 eV et 2 keV pour l'aluminium pour différents angles d'incidence. 154
FIGURE 4.10. Écarts relatifs en fonction de l'énergie d'incidence des rendements d'émission électroniques présentés sur la FIGURE 4.9. 155
FIGURE 4.11. Rendements d'émission électronique de l'aluminium issus des simulations du code OSMOSEE pour différentes valeurs de la barrière de potentiel de la surface. 156
FIGURE 4.12. (a) et (b) Rendement d'émission électronique de l'argent pour différents angles d'incidence. Les losanges correspondent aux mesures du dispositif DEESSE. 157
FIGURE 4.13. Écarts relatifs des rendements d'émission électroniques présentés sur la FIGURE 4.12. 158
FIGURE 4.14. Rendement d'émission des électrons à incidence normale dans le silicium. 159
FIGURE 4.15. Écarts relatifs des rendements d'émission électroniques présentés sur la FIGURE 4.14. 160
FIGURE 4.16. Rendement d'émission des électrons secondaires et des électrons rétrodiffusés pour l'aluminium à θ=0°. 161
FIGURE 4.17. Rendement d'émission des électrons rétrodiffusés pour l'argent à incidence normale. 162
FIGURE 4.18. Rendement d'émission des électrons rétrodiffusés élastiques issus du code OSMOSEE pour l'aluminium et l'argent à incidence normale. 163
FIGURE 4.19. Rendement d'émission des électrons rétrodiffusés et secondaires dans le silicium à incidence normale. 164
FIGURE 4.20. Rendement d'émission électronique total (TEY), des rétrodiffusés (BEY) et des secondaires (SEY) à très basse énergie et à incidence normale pour l'aluminium, l'argent et le silicium. 166
FIGURE 4.21. Profondeur de pénétration des électrons dans le silicium. 169
FIGURE 4.22. Probabilité d'interaction élastique calculée pour les libres parcours moyens du code OSMOSEE dans le silicium. 170
FIGURE 4.23. (a) Rendement d'émission électronique et (b) profondeur de pénétration des électrons dans l'aluminium. 171
FIGURE 4.24. Rendement d'émission électronique et énergie déposée (en %) dans le solide par les électrons pour l'aluminium et le silicium. 173
FIGURE 4.25. Dose ionisante pour les électrons dans l'aluminium et le silicium en fonction de la profondeur pour des énergies d'incidence de 20, 50, 200 et 1500 eV. 173

Chapitre 5 : Etude de l'effet de la rugosité sur l'émission électronique

FIGURE 5.1. Illustration simplifiée de la surface d'un matériau présentant de la rugosité. 178
FIGURE 5.2. Évolution du rapport relatif du maximum du rendement d'émission électronique σ pour différents angle d'incidence θ pour l'aluminium et l'argent. 179

FIGURE 5.3. Représentation de la géométrie utilisée pour étudier un matériau avec une surface rugueuse dans l'application MicroElec. 182
FIGURE 5.4. Schéma des rainures utilisées (gauche) dans la première partie de l'étude et (droite) dans la deuxième partie de l'étude. 183
FIGURE 5. 5. Évolution du rendement d'émission électronique en fonction de l'énergie d'incidence pour de l'argent présentant à sa surface des rainures de différentes hauteurs h, de largeur L=50 μm et d'espacement d entre deux rainures voisines d=50 μm. 184
FIGURE 5.6. Évolution (a) du maximum du rendement d'émission électronique et (b) du rendement d'émission des électrons rétrodiffusés associé en fonction du rapport de différentes hauteurs h sur la largeur L des structures pour différentes largeurs entre 1 nm et 1 mm. 186
FIGURE 5.7. Schéma des rainures utilisées dans l'étude (vue de dessus et vue de côté. 188
FIGURE 5.8. Etude via un modèle analytique du maximum du rendement d'émission électronique pour un échantillon d'argent présentant des rainures à sa surface de hauteur h, de largeur L, et de distance d=L entre deux structures voisines. 190
FIGURE 5.9. Évolution de l'énergie du (a) premier et du (b) deuxième points de cross-over en fonction du rapport de la hauteur h sur la largeur L des structures pour différentes valeurs de L entre le μm et le mm. 191
FIGURE 5. 10. Évolution du rendement d'émission électronique en fonction de l'énergie d'incidence pour de l'argent présentant à sa surface des rainures de hauteur h=500 μm, de largeur L de structures entre 1 nm et 1 mm et d'espacement d=50μm entre deux structures voisines. 192
FIGURE 5.11. Évolution (a) du maximum du rendement d'émission électronique et (b) du maximum du rendement d'émission des électrons rétrodiffusés en fonction du rapport de la largeur L sur la distance d entre deux structures pour différentes largeurs entre 1 nm et 1 mm. 194
FIGURE 5.12. Etude via un modèle analytique du maximum du rendement d'émission électronique pour un échantillon d'argent présentant des rainures à sa surface de hauteur h=10 d, de largeur de structures L qui varie, et de distance d fixe entre deux structures voisines. 195
FIGURE 5.13. Etude via un modèle analytique du maximum du rendement d'émission électronique pour un échantillon d'argent présentant des rainures à sa surface de hauteur h=10 d, de largeur L fixe, et de distance d qui varie entre deux structures voisines. 196
FIGURE 5.14. Cas limites de géométrie pour les rainures. La surface est modélisée par (a) des rainures de très faible largeur, (b) des rainures de très grande largeur, (c) des rainures de très faible largeur et très rapprochées les unes des autres. 197
FIGURE 5.15. Évolution du rendement relatif de l'argent présentant des rainures à sa surface en fonction du rapport de la distance d entre deux structures sur la largeur L des structures et une hauteur h de rainures h=10L pour différentes valeurs de d pour l'argent et l'aluminium. 198
FIGURE 5.16. Schéma des rainures utilisées (gauche) dans la première partie de 199

l'étude et (droite) dans la deuxième partie de l'étude.
FIGURE 5.17. Évolution du rendement d'émission électronique en fonction de l'énergie d'incidence pour de l'argent présentant à sa surface des damiers de différentes hauteurs h, de largeur L=50 μm et d'espacement d=L entre deux structures voisines. 200
FIGURE 5.18. Évolution (a) du maximum du rendement d'émission électronique et (b) du rendement d'émission des électrons rétrodiffusés associé en fonction du rapport de la hauteur h sur la largeur L des damiers pour différentes largeurs entre 1 nm et 1 mm. 201
FIGURE 5.19. Schéma des damiers utilisés dans l'étude (vue de dessus et vue de côté). 203
FIGURE 5.20. Etude via un modèle analytique du maximum du rendement d'émission électronique pour un échantillon d'argent présentant des damiers à sa surface de hauteur h=10 L, de largeur L, et de distance d entre deux structures voisines. 204
FIGURE 5. 21. Évolution de l'énergie du (a) premier et du (b) deuxième points de cross-over en fonction du rapport de la hauteur h sur la largeur L des damiers pour différentes valeurs de L entre 1 μm et 1 mm. 205
FIGURE 5. 22. Évolution du rendement d'émission électronique en fonction de l'énergie d'incidence pour de l'argent présentant à sa surface des damiers de hauteur h=500 μm, de largeur L entre 10 μm et 1 mm et d'espacement d=50μm entre deux structures voisines. 206
FIGURE 5. 23. Évolution (a) du maximum du rendement d'émission électronique et (b) du rendement d'émission des électrons rétrodiffusés associé en fonction du rapport L/d pour différentes largeurs entre 1 nm et 1 mm. 207
FIGURE 5. 24. Comparaison du maximum du rendement d'émission électronique de l'argent présentant des rainures ou des damiers en fonction du rapport de la hauteur h sur la largeur L des structures, pour des dimensions d=L=50μm, et d=L=30μm. . 208
FIGURE 5. 25. Comparaison des rapports de la hauteur h sur la largeur L pour lesquels il n'y a pas de points de cross-over pour la courbe de rendement d'émission électronique de l'argent, dans le cas de rainures et de damiers. 209
FIGURE 5. 26. Comparaison du maximum du rendement d'émission électronique de l'argent en fonction du rapport de la distance d entre deux structures voisines sur la largeur L dans le cas rainures et de damiers. 210
FIGURE 5. 27. Diminution relative en % du rendement d'émission électronique pour de l'argent présentant des damiers à sa surface. 211
FIGURE 5. 27. Rendement d'émission électronique pour un angle d'incidence θ=0° et un angle d'incidence aléatoire entre 0 et 90°, suivant une distribution lambertienne pour de l'argent présentant des rainures de hauteur h=500 μm et de largeur L=50 μm à sa surface. 212