Microscopie électronique par transmission

par Jean-Pierre MICHEL
Laboratoire de Physique des Matériaux
École des Mines - Parc de Saurupt - 54042 Nancy Cedex
michel@mines.u-nancy.fr

RÉSUMÉ

L'article présente les caractéristiques du microscope électronique par transmission et de la préparation des échantillons. Il décrit les mécanismes de formation des images. Les origines et l'évolution de cet appareil sont également abordées.

1. INTRODUCTION

L'électron a fêté en 1997 le centenaire de sa découverte. En un siècle, il a montré de multiples talents et participé à de nombreuses réalisations qui ont bouleversé le monde. L'une d'elles, le microscope électronique par transmission (MET) joue un rôle déterminant dans la recherche scientifique. Comme l'indique le terme transmission, les électrons traversent l'objet observé et donnent une image agrandie de sa structure interne. Le MET est utilisé aussi bien pour observer la matière vivante (souvent post-mortem) que les minéraux ; nous ne nous intéresserons ici qu'au deuxième cas.

Dans une première partie, nous décrirons l'intérêt du MET. Ensuite nous donnerons ses caractéristiques puis nous décrirons la façon d'obtenir des images et enfin nous dirons un mot de son futur.

2. INTÉRÊT DU MET

La caractéristique importante d'un microscope, quelle qu'en soit sa nature, est la résolution R de son objectif. Sa valeur théorique est :

$$R = \frac{0{,}61\,\lambda}{n \sin u} \qquad (1)$$

où n est l'indice du milieu objet (1 en général)

n est le demi-angle au sommet du cône formé par les rayons extrêmes limités par la monture de l'objectif.

0,61 provient de la diffraction de FRAUNHOFER par un trou circulaire.

λ est la longueur d'onde du rayonnement dans le cas de la lumière ou la longueur d'onde de DE BROGLIE

$$\lambda = \frac{h}{mv}$$

dans le cas de particules en mouvement (*h* : constante de PLANCK, *m* est la masse et *v* la vitesse de la particule).

Pour avoir la meilleure résolution possible, c'est-à-dire *R* le plus petit possible, on ne peut guère jouer sur n et u qui ne peuvent guère être augmentés. D'où la course aux courtes longueurs d'onde dans le cas des photons (visibles, ultraviolets, rayons X, ...) aux masses et vitesses importantes pour les particules (électrons, protons, ions). En fait la résolution théorique n'est pas le seul critère de performance du microscope. Il faut :

– une source qui émette continûment des particules,

– des lentilles de qualité, ce qui limite aux particules chargées,

– que l'irradiation se fasse sans dommage pour l'objet, ce qui élimine dans de nombreux cas les particules plus lourdes que les électrons,

– un faisceau suffisamment pénétrant pour que l'épaisseur d'objet traversé soit suffisante, c'est-à-dire permette une vision représentative des choses que l'on veut observer. Une épaisseur de 1 micron est un bon ordre de grandeur. Pour les photons, l'épaisseur traversée varie fortement avec le matériau. Pour les électrons, elle augmente avec leur énergie cinétique et diminue quand le numéro atomique des atomes constituant l'objet augmente.

Finalement, le meilleur compromis est obtenu avec des électrons accélérés sous quelques centaines de kilovolts. Si on compare (tableau 1) les caractéristiques des photons et de tels électrons on observe que :

– la longueur d'onde des électrons devrait permettre de gagner un facteur 10^5 sur la résolution,

– mais, malheureusement, l'ouverture des faisceaux d'électrons est très faible ($u \cong 1°$) soit un *sin u* cent fois plus faible que pour un bon objectif de microscope optique qui peut atteindre 0,95. La faible ouverture de l'objectif du MET est due au fait qu'on ne sait pas faire de lentilles magnétiques divergentes et qu'on ne peut donc constituer de doublets permettant d'éviter les aberrations.

– finalement le MET permet de gagner un facteur 10^3 sur la résolution ce qui est quand même considérable.

Souvent, après avoir fait cette comparaison, on explique que le MET est une application directe de la relation de DE BROGLIE et qu'il y a là un bel exemple d'application de la recherche fondamentale. C'est tout à fait séduisant, mais faux. Ernest RUSKA qui a obtenu tardivement le prix NOBEL, en 1986, pour avoir inventé le premier MET en avril 1931 raconte, dans un historique de sa découverte [1] que son espoir d'excellente résolution du MET était fondé sur la petite taille de l'électron. Étant ingénieur de formation, il ignorait tout de la thèse de DE BROGLIE soutenue en 1924. Il en entendit parler au cours de l'été 1931 et fut fort déçu que son microscope n'échappait pas à une limite de résolution due à un problème de longueur d'onde. Il reprit courage après une rapide application numérique et redevint persuadé que le MET aurait, un jour, une résolution meilleure que le microscope optique. D'ailleurs il estima, en 1932, que sa limite de résolution serait 0,22 nm ; cette valeur fut atteinte quarante ans plus tard.

	λ **(nm)**	u **(°)**	**Épaisseur d'objet traversée**	**Résolution pratique**
Photons	400 à 700	65	variable	0,5 µm
Électrons	1 à 3 10^{-3}	1	0,1 à 1 µm	0,2 nm

Tableau 1 : Comparaison des caractéristiques du microscope optique et du MET.

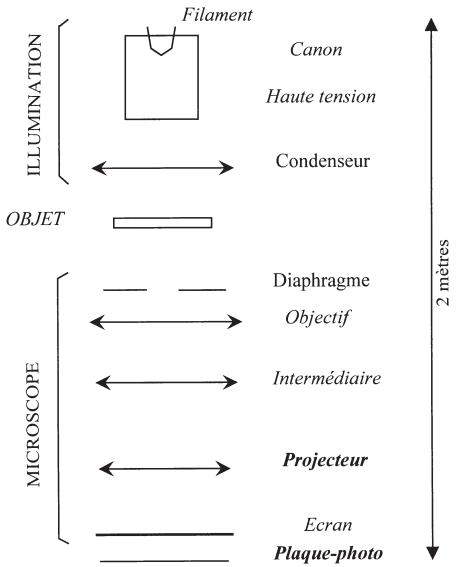

Figure 1 : Schéma de principe du MET.

3. CARACTÉRISTIQUES ACTUELLES DU MET

Les électrons sont émis par un cristal d'hexaborure de lanthane (LaB_6) chauffé, plus brillant que les anciens filaments de tungstène. Ils sont accélérés par une anode portée à une haute tension souvent égale à 200 ou 300 kV (figure 1). Des MET à 1000 kV sont commercialisés mais leur prix et leurs problèmes de fonctionnement et de maintenance font qu'ils sont peu utilisés. Cette haute tension est régulée à mieux qu'un volt ; on a donc un faisceau monocinétique d'où monochromatique. Le tableau 2 rassemble les caractéristiques des électrons pour les valeurs usuelles de la haute tension, V. Des lentilles magnétiques constituées d'une pièce polaire en fer dans une

bobine focalisent le faisceau sur l'objet. D'autres lentilles en donnent une image agrandie (de 3 10^3 à 10^6 fois) et au point, soit sur un écran fluorescent au sulfure de zinc, soit sur une plaque photo. Le grandissement et la mise au point sont obtenus en faisant varier la distance focale des lentilles par l'intermédiaire du courant parcourant les bobines.

V (kV)	100	200	300	1000
λ (nm)	3,70 10^{-3}	2,51 10^{-3}	1,97 10^{-3}	8,7 10^{-4}
m/m_o	1,196	1,391	1,587	2,957
v / c	0,548	0,695	0,776	0,941

Tableau 2 : Longueur d'onde, masse et vitesse réduites d'électrons accélérés sous différentes hautes tensions (m_o : masse au repos, c : vitesse de la lumière).

L'image est mise au point à l'œil sur l'écran. Pour prendre la photo, on escamote l'écran. Bien que le film soit situé plusieurs centimètres sous l'écran, l'image est encore au point car la profondeur de champ et très grande, à cause de la faible ouverture du faisceau. De même on est simultanément au point sur toute l'épaisseur de l'objet sans qu'on puisse distinguer, par exemple, sa face supérieure (face d'entrée des électrons) de sa face inférieure. L'image est ainsi une projection de toute l'épaisseur de l'objet.

Pour permettre le déplacement des électrons, il règne dans le microscope un vide de 10^{-5} Pa environ.

Le prix du MET n'a pratiquement pas évolué au cours des vingt dernières années malgré l'amélioration de ses performances. Il coûte environ 15 F/Volt ; malheureusement on ne peut pas acheter un microscope de moins de 10^5 V de haute tension.

Une des difficultés du MET est la préparation de l'objet, une lame mince d'épaisseur inférieure au micron, à partir d'un échantillon massif. Il faut amincir le matériau sans le perturber. L'amincissement se fait en plusieurs étapes :

– découpe mécanique d'une tranche d'épaisseur 0,5 mm,

– préamincissement soit par abrasion mécanique douce soit par attaque chimique,

– amincissement final par une méthode très douce conservant la structure interne du matériau. Par exemple, si l'échantillon est conducteur, il peut constituer l'anode soluble d'une cellule d'électrolyse jusqu'à ce que des trous apparaissent. La méthode la plus utilisée actuellement est l'amincissement ionique. On bombarde les deux faces de l'échantillon, en incidence rasante, avec des ions argon de quelques keV d'énergie cinétique jusqu'à ce qu'un trou apparaisse. Les bords de trous ont une épaisseur inférieure au micron sur des distances de l'ordre de la dizaine de microns.

Une nouvelle technique, dite du «tripode», est en plein développement. Elle consiste à réaliser un échantillon en forme de coin de faible angle (inférieur au degré). La bande, le long de l'arête du coin, possède une épaisseur utilisable sur une assez grande largeur. Le préamincissement est réalisé par des abrasifs dont la granulométrie passe, par étapes, de 30 à 0,5 µm. L'amincissement final est dû à la double action, abrasive et chimique, d'une suspension de grains de silice de 0,06 µm de diamètre dans une solution basique.

L'amincissement demande de la minutie et de la persévérance mais le principe des microscopistes qui dit que «tout matériau peut être aminci jusqu'à être transparent aux électrons» n'a pas encore été mis en défaut.

4. CONTRASTE DES IMAGES

4.1. Images conventionnelles

Il ne suffit pas d'une bonne résolution pour voir, il faut aussi qu'il y ait un contraste suffisant. Le MET utilise deux types de contraste : le contraste d'absorption et le contraste de diffraction.

4.1.1. Contraste d'absorption

Considérons un mélange de particules de deux phases solides A et B. Si la phase B absorbe plus les électrons que la phase A, elle apparaîtra plus sombre que A sur l'écran. La figure 2 montre l'exemple d'une particule d'oxyde de lanthane (La_2O_3), qui contient un élément lourd (La = 139), plus absorbante que les grains environnants de nitrure d'aluminium (AlN) constitués d'éléments légers.

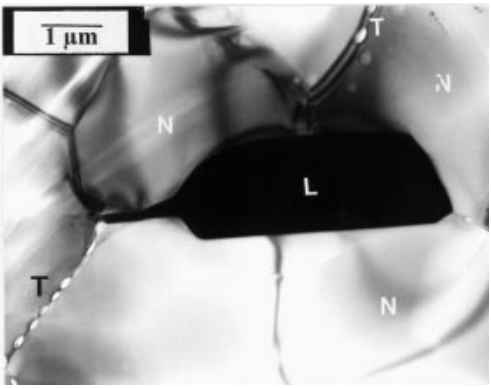

Figure 2 : Un exemple de contraste d'absorption. La particule d'oxyde de lanthane (L) apparaît en noir, les grains de nitrure d'aluminium (N) en gris et les trous de la lame (T) en blanc (cliché S. CHOUX).

4.1.2. Contraste de diffraction

Ce type de contraste ne se rencontre que dans la matière cristallisée ce qui est le cas de la majorité des métaux, céramiques et minéraux. La théorie de ce contraste est compliquée mais on peut expliquer son principe sur un cas simple : le contraste d'une dislocation. La figure 3

montre la section d'une dislocation (ce défaut dans l'arrangement des atomes est une ligne qui serpente dans le cristal ; voir, par exemple [2]).

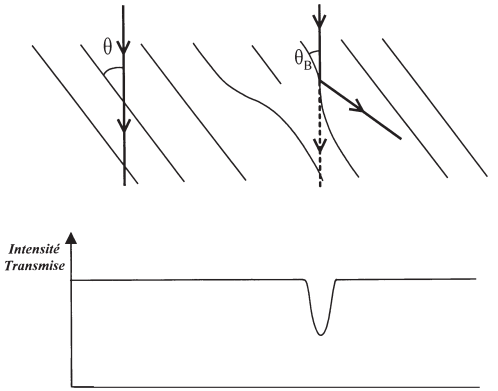

Figure 3 : Principe du contraste de diffraction d'une ligne de dislocation. Quand l'angle d'incidence est égal à l'angle de Bragg, une partie du faisceau incident est diffractée ; l'intensité du faisceau transmis est localement réduite d'où un contraste sur la photo.

Nous avons représenté par un trait continu les seuls plans atomiques qui nous intéressent ici pour la diffraction.

Loin de la dislocation, les plans sont équidistants et parallèles. Près du défaut, constitué par un demi-plan atomique supplémentaire, ils sont déformés. Un faisceau incident sera diffracté quand il fera l'angle θ_B avec les plans atomiques. θ_B est défini par la loi de BRAGG :

$$2d \sin \theta_B = \lambda$$

où d est la distance entre plans atomiques.

Si, loin du défaut, l'angle θ est supérieur à θ_B, il n'y a pas de faisceau diffracté. Par contre, il se trouvera, au niveau de la dislocation, une zone en diffraction car telle que $\theta = \theta_B$. L'intensité du faisceau transmis sera donc diminuée localement. L'image de la dislocation réalisée avec le faisceau transmis apparaîtra donc en sombre sur fond clair, le faisceau diffracté étant arrêté par un diaphragme. La figure 4 montre les images de quelques dislocations. On peut, réciproquement, utiliser le faisceau diffracté pour faire l'image, le faisceau transmis étant éliminé ; dans ce cas, il faut remarquer que l'image obtenue n'est que partiellement complémentaire de la précédente, à cause d'interactions fortes entre les faisceaux transmis et diffractés à l'intérieur de l'objet.

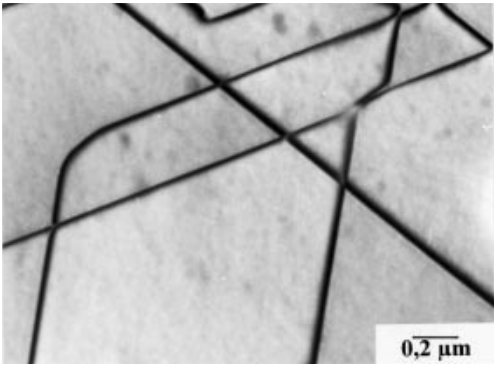

Figure 4 : Un exemple de contraste de diffraction : lignes de dislocations dans le silicium. Les lignes apparaissent en sombre sur fond clair (cliché J.-P. MICHEL).

Seuls les défauts dans l'arrangement des atomes ont du contraste. Un cristal parfait apparaît comme uniformément gris. Il n'est pas possible d'obtenir une image directe des atomes même avec un microscope ayant une résolution suffisante.

4.2. Images en haute résolution

La haute résolution est une technique qui permet de «voir» soit les plans denses d'atomes, soit les colonnes d'atomes d'un cristal à condition que les uns ou les autres soient parallèles au faisceau d'électrons. Schématiquement on s'arrange pour avoir un (cas 1) ou plusieurs (cas 2) faisceaux diffractés qu'on fait ensuite interférer avec le faisceau transmis.

Dans le cas 1 la figure d'interférences a la périodicité des plans atomiques utilisés pour la diffraction. La figure 5 montre des plans de mica distants de 1,0 nm.

Dans le cas 2 la figure reproduit l'arrangement des colonnes d'atomes parallèles au faisceau. La figure 6 montre les colonnes atomiques dans le diamant [3]. Les plus proches, distantes de 0,11 nm, apparaissent distinctes. C'est la meilleure résolution actuelle (la définition de R de la relation 1 ne s'applique pas à ce type d'image). Plusieurs images en haute résolution ont été publiées dans le BUP [4]. La plus belle image reste, pour moi, celle de la phtalocyanine chlorée de cuivre. Publiée initialement en 1978 [5] elle a été constamment améliorée ; la figure 7 montre la dernière version (pour plus de renseignements, voir [6]).

Figure 5 : Image en haute résolution de plans atomiques du mica (cliché J. GHANBAJA).

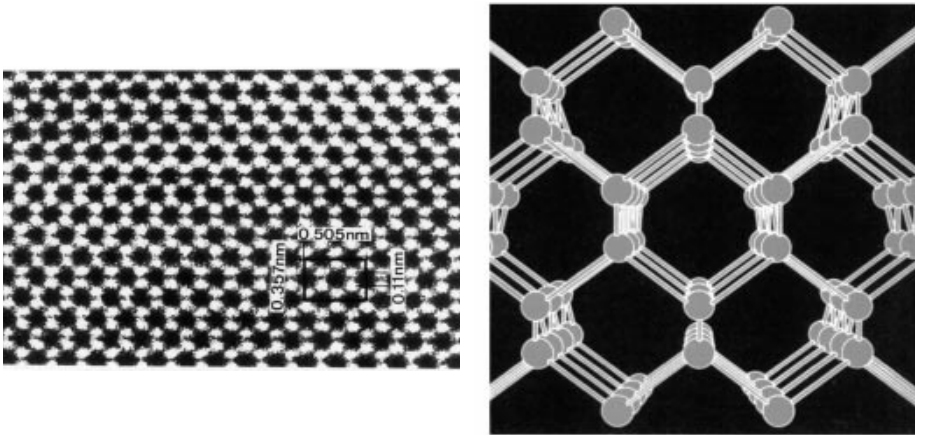

Figure 6

a) Image en haute résolution d'atomes du diamant. Publiée en [3] ; reproduite ici grâce à la fourniture du cliché par le Pr. H. FUJITA et à l'autorisation du Japan Institute of Metals.

b) Schéma, agrandi et en légère perspective, montrant l'arrangement des colonnes d'atomes.

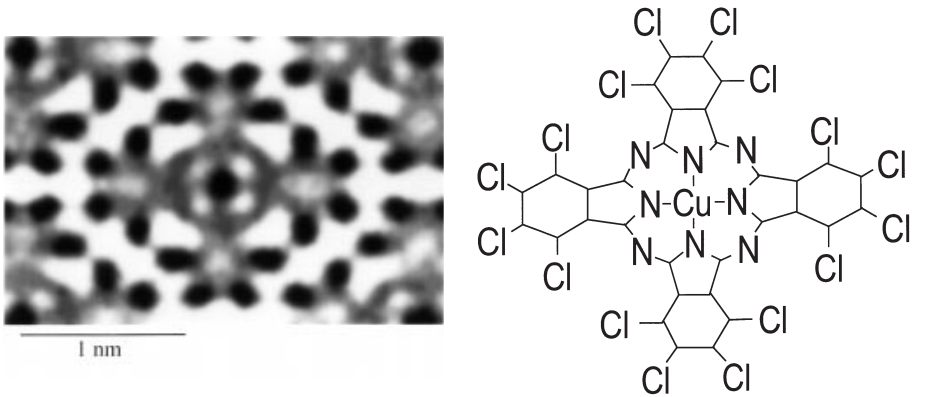

Figure 7

a) Image en haute résolution de la phtalocyanine chlorée de cuivre obtenue avec un microscope fonctionnant sous 1000 kV (cliché aimablement fourni par le Pr. T. KOBAYASHI). Pour de plus amples renseignements voir [5], [6].

b) Schéma de la molécule.

5. DÉVELOPPEMENT

Le MET n'est plus seulement une machine à faire des images. Il est équipé, aujourd'hui, de nombreux accessoires. Par exemple, on peut analyser les rayons X émis par l'échantillon sous l'effet de l'irradiation par les électrons ou mesurer la perte d'énergie des électrons ayant traversé la lame mince. Dans les deux cas on en déduit des renseignements sur la composition chimique du matériau observé. Le MET va devenir, de plus en plus, un laboratoire de physique et chimie à lui tout seul.

CONCLUSION

Le MET est un appareil assez répandu ; il y en a plus de cinq cents en France. C'est le mieux adapté pour avoir directement des images de l'intérieur de la matière. Il permet de voir les atomes lorsqu'ils sont suffisamment nombreux et arrangés régulièrement en un cristal et de nombreux objets ou particules de taille plus importante. Néanmoins, tout ce qu'il a permis de voir avait déjà été imaginé et modélisé par le cerveau humain, appareil dont la résolution n'est pas limitée.

REMERCIEMENTS

L'auteur remercie les professeurs Hiroshi FUJITA (Osaka) et Takashi KOBAYASHI (Kyoto), Sylvie CHOUX (École des Mines, Nancy) Jaâfar GHANBAJA (Université Henri Poincaré, Nancy) pour la fournitures des clichés et Jean POIRSON (École des Mines, Nancy) pour sa collaboration.

BIBLIOGRAPHIE

[1] E. RUSKA : *«The development of the electron microscope and of electron microscopy»* - Review of Modern Physics, 59 (1987) 627.

[2] A. GUINIER, R. JULLIEN : *«La matière à l'état solide»* - Hachette, CNRS (Paris, 1987).

[3] H. FUJITA : *«Usefulness and Applications of Electron Microscopy to Materials Science»* - Materials Transactions, JIM, 31 (1990) 523.

[4] A. BOURRET : *«Image des atomes dans un cristal par microscopie électronique»* BUP, 629 (1980) 401.

[5] N. UYEDA, T. KOBAYASHI, K. ISHIZUKA et Y. FUJIYOSHI : *«High Voltage Electron Microscopy of Image Discrimination of Constituent Atoms in Crystals and Molecules»* - Chemica Scripta, 14 (1978) 47.

[6] A. BOURRET et R. PORTIER : *«Voir les atomes»* - La Recherche, 14 (mai 1983) 650.