



Université Hadj Lakhdar - BATNA 1

Faculté des Sciences de la Matière

Département de Physique



# THÈSE

Présentée en vue de l'obtention du  
Diplôme de Doctorat de troisième cycle

par :

**Mlle. BOUBIR Abir**

Sous la direction de Dr. MAMMERI Ster

Thème :

---

**Étude de la pulvérisation en surface et des effets de dommages induit dans des matériaux solides minces sous l'impact des ions lourds énergétiques (~MeV).**

---

*Domaine :* Sciences de la Matière.  
*Filière :* Physique.  
*Spécialité :* Physique des Rayonnement et Astrophysique.  
*Intitulé de la Formation :* Physique des Rayonnement et Astrophysique.  
*Laboratoire de recherche :* LRPRIM.

Soutenue le: 12 /12 / 2022

## Devant le jury:

Président :	Pr. SID Abdelaziz	Professeur	Université BATNA 1
Rapporteur :	Dr. MAMMERI Ster	Chercheur Expert	Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (C.R.N.A.)
Co-Rapporteur :	Pr. BOULDJEDRI Abdelhamid	Professeur	Université BATNA 1
Examineurs :	Pr. OUICHAOUI Saâd	Professeur	USTHB Bab Ezzouar
	Pr. ZERGUINE Salima	Professeur	Université BATNA 1

*À mes parents, qui ont vécu avec moi tous les moments difficiles avec une patience exemplaire et représentant pour moi un véritable soutien lors de l'élaboration de cette thèse.*

*À mes frères : Mamdouh, Yassine, Youssef et Salim et à toute ma famille chacun à son nom.*

## **REMERCIEMENTS**

Ce travail a été effectué au **Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (C.R.N.A.)**, en collaboration avec le **Laboratoire LRPRIM du Département de Physique de l'Université de Batna 1**. Je tiens à remercier, la **Directrice Générale du C.R.N.A.** pour m'avoir accueillie dans les meilleures conditions.

**Monsieur Ster Mammeri, Chercheur Expert** au (C.R.N.A.) qui est à l'origine de ce travail. Il a initialement assuré ma formation en Master II et par la suite en Doctorat LMD. Ses conseils et suggestions m'ont été d'un grand apport pour l'aboutissement de ce travail de recherche. Qu'il reçoit ici l'expression de ma sincère gratitude et de mes vifs remerciements.

J'adresse mes sincères remerciements à **Monsieur Abdelhamid BOULDJEDRI, Professeur au laboratoire LRPRIM**, pour avoir accepté de codiriger ce travail. Je lui suis très reconnaissante pour tous les efforts qu'il a fournis afin de m'aider.

Monsieur **SID Abdelaziz, Professeur et Directeur du laboratoire LRPRIM**, m'a fait l'honneur de présider ce Jury de thèse, qu'il reçoit l'expression de mes vifs remerciements et aussi pour son aide et ses encouragements.

J'exprime tous mes remerciements à Monsieur **Saâd Ouichaoui** et **Madame Salima Zerguine**, respectivement, Professeurs à l'USTHB de Bab-Ezzouar et à l'Université de Batna 1, pour avoir accepté de faire partie du Jury de thèse, leurs remarques et suggestions m'ont été très bénéfiques.

Je remercie vivement Monsieur **Saïd TOBBECHE**, Professeur à l'université de Batna 1, qui m'a toujours conseillé et encouragé et ce durant tous mes stages de formation de Master et de Doctorat au C.R.N.A.

Une partie du travail expérimental relatif à l'élaboration des échantillons et à leur irradiation aux ions lourds a été effectuée à **iThemba Laboratories for Accelerator Based Science (iThemba LABS)** en Afrique du Sud dans le cadre de la collaboration bilatérale C.R.N.A.-iThemba LABS. Je tiens à remercier les chercheurs **M. Msimanga, C. Matshali, N. Mlungisi** et le staff de l'accélérateur tandem 5 MV de Johannesburg.

Mes remerciements vont également au staff technique et les chercheurs **A. DIB, H. AMMI et Z. IDIRI** de l'accélérateur Van de Graaff 3.75MV du C.R.N.A. où j'ai effectué l'analyse RBS des échantillons irradiés.

Finalement, je remercie mes collègues du LRPRIM sans exception et à toute personne qui a, de près ou de loin, contribué d'une manière ou d'une autre à ce travail.

# TABLEAU DES MATIÈRES

**INTRODUCTION ÉNÉRALE.....1**

**CHAPITRE I :.....**

**RAPPELS THÉORIQUES SUR L'INTERACTION ION-MATIÈRE.....**

I.1. Interaction ion-matière.....	4
I.2. Processus et paramètres de l'interaction ion-matière.....	4
I.2.1. Cinématique de collisions élastiques.....	5
I.2.2 Diffusion de Rutherford.....	6
I.2.3 Les collisions inélastiques.....	7
I.2.4. Pouvoir d'arrêt des ions dans la matière.....	8
I.2.4.1. Pouvoir d'arrêt nucléaire.....	9
I.2.4.2. Pouvoir d'arrêt électronique.....	11
-Le domaine des basses énergies.....	11
-Le domaine d'énergies intermédiaires.....	12
-Le domaine de hautes énergies.....	12
I.2.4.3. Pouvoir d'arrêt total dans un matériau composé.....	13
I.2.4.4. Traitement semi-empirique du pouvoir d'arrêt électronique.....	14
I.3. Le parcours d'ions $R$ et le parcours projeté $R_p$ dans une cible solide.....	15
I.4. Déplacements atomiques dans les solides.....	16
I.5. La pulvérisation par impact d'ions.....	17
I.5.1. Pulvérisation induite par collisions nucléaires élastiques.....	18
I.5.1.1. Modèle linéaire de Sigmund.....	20
I.5.1.2. Modèle non-linéaire de Sigmund-Claussen.....	20
I.5.1.3. Formules semi-empiriques correctives du rendement de pulvérisation.....	21
I.5.1.4. Simulation numérique de la pulvérisation.....	21
I.5.2. Pulvérisation induite par collisions électroniques inélastiques.....	22
I.5.2.1. Modèle d'explosion colombienne.....	23
I.5.2.1. Modèles des pointes thermiques.....	24
I.5.2.1. Le modèle analytique des pointes thermique (a-TS) .....	24

I.5.2.2. Le modèle des pointes thermiques inélastique (i-TS) .....	25
--	----

## **CHAPITRE II :**

### **MODELE DE POINTES THERMIQUES : CALCUL & TRAITEMENT NUMERIQUE.**

II.1. Formalisme Théorique.....	29
II.2. Densités de distribution d'énergie radiale.....	30
II.2.1. Densité d'énergie électronique radiale $A_e(r, t)$ .....	30
II.2.1.1. Modèle de Katz et al. de la densité d'énergie radiale.....	32
II.2.1.2. Corrections semi-empiriques sur le modèle de Katz.....	33
II.2.1.3. Calcul du pouvoir d'arrêt électronique via le Code CasP .....	35
II.2.2. Densité d'énergie nucléaire radiale $B_n(r, t)$ .....	36
II.2.2.1. Largeur à-mi-hauteur initiale de la densité d'énergie nucléaire déposée.....	37
II.3. Les propriétés thermo-physiques du matériau.....	40
II.4. Traitement numérique du modèle i-TS.....	44
II.4.1. Discrétisation par la méthode explicite des différences finis.....	44
II.4.2. Procédure numérique et conditions initiales aux limites.....	46

## **CHAPITRE III :**

### **METHODES EXPERIMENTALES ET DISPOSITIFS D'ANALYSES.**

III.1. Préparation des échantillons cible.....	50
III.2. Caractérisation en surface des échantillons cibles déposés.....	52
III.2.1. Analyse de l'état de surface par le MEB.....	52
III.3.2. Analyse de la microstructure par DRX .....	54
III.3. Irradiation des échantillons cibles aux ions lourds.....	56
III.3.1. L'accélérateur TANDEM 6MV d'iThemba LABS.....	56
III.3.2. Conditions et paramètres d'irradiation des échantillons cibles.....	57
III.4. Caractérisation en épaisseur via la technique de rétrodiffusion de Rutherford (RBS) .....	59
III.4.1. Principe physique de la méthode rétrodiffusion de Rutherford (RBS) .....	58
III.4.2. Cinématique de collisions .....	60
III.4.3. Sensibilité de la technique RBS .....	61
III.4.3.1. Résolution en énergie.....	61
III.4.3.2. Résolution en masse.....	61

III.4.3.3. Résolution en profondeur.....	61
III.4.3.4. Limitation de la technique RBS.....	62
III.4.4. Dispositif expérimental associé à la technique RBS.....	63
III.4.4.1. L'accélérateur Van de Graaff (V.d.G.) .....	63
III.4.4.1.1. Etalonnage en énergie de l'accélérateur V.d.G. ....	64
III.4.4.2. La chambre à diffusion.....	65
III.4.4.3. La chaîne de détection.....	66
III.4.4.4. Etalonnage de la chaîne de détection pour l'analyse RBS .....	67
III.4.5. Détermination de l'épaisseur des cibles via la cinématique de collisions.....	68
III.4.5.1. Simulation des spectres RBS via le code SIMNRA.....	69
III.5. Détermination expérimentale du rendement de pulvérisation.....	70

## **CHAPITRE IV :**

### **PRESENTATION DES RESULTATS, ANALYSE, COMPARAISON ET DISCUSSION.**

IV.1. Présentation et analyse des résultats expérimentaux.....	72
IV.1.1. Analyse RBS des échantillons cibles.....	72
IV.1.2. Détermination expérimentale du rendement de pulvérisation.....	77
IV.2. Présentation et analyse des résultats numériques.....	79
IV.2.1 Profils de distributions des températures électronique et atomique...79	
IV.2.2. Calcul des rayons de traces latentes pour différents énergies incident.....	84
IV.3. Comparaison des résultats expérimentaux et numériques du rendement de pulvérisation total.....	85
<b>CONCLUSION.....</b>	<b>90</b>
<b>Référence.....</b>	<b>92</b>

# INTRODUCTION GÉNÉRALE

L'étude de l'interaction des particules chargées ou "ions" énergétiques avec la matière peut être étudiée de deux manières différentes. On peut s'intéresser au projectile incident en déterminant sa perte d'énergie, l'évolution de son état de charge, la formation de ses états excités, comme on peut aussi étudier parallèlement les effets induits sur le matériau cible bombardé, allant de simples défauts atomiques jusqu'à la formation des traces latentes et des dommages créés en volume et en surface, avec l'émission ou la pulvérisation des particules atomiques ou poly-atomiques hors de la cible solide, etc....

Les premières expériences utilisant des particules chargées (alphas ou  $\text{He}^{2+}$ ) émises de la matière radioactive pour bombarder une feuille mince d'or ont été faites par Rutherford et al. [1], et grâce à ces expériences de diffusion, il a été mis en évidence le noyau et la structure de l'atome. Par la suite, et avec l'avènement des accélérateurs de particules modernes délivrant des faisceaux d'ions intenses d'énergies de l'ordre du keV jusqu'au GeV, le phénomène de l'interaction ion-matière a connu un essor fulgurant avec le développement de nouvelles techniques nucléaires d'analyse et d'irradiation par faisceau d'ions. Ces techniques nucléaires ont beaucoup aidé à l'exploration des propriétés physiques de plusieurs classes de matériaux de natures différentes, tout en mesurant les données atomiques et nucléaires des paramètres pertinents régissant l'interaction ion-matière. La capacité de prédire et de comprendre les modifications structurales dans les matériaux induites par irradiation ionique présente des avantages considérables pour la science et la technologie moderne, comme par exemple, l'industrie nucléaire où les effets des rayonnements limitent la durée de vie d'un réacteur, en technologie des accélérateurs de particules où les effets de pulvérisation induits sur les parois des sources d'ions et les diagrammes de focalisation du faisceau d'ions et en nanotechnologie où des nanostructures sont créées et modifiées par irradiation ionique. Les ions lourds avec des énergies supérieures à 25 keV/A sont essentiellement ralentis par interaction avec les électrons du solide le long de leur parcours par des interactions coulombiennes inélastiques (excitations électroniques). Ces interactions électroniques inélastiques peuvent conduire à la mise en mouvement et au déplacement des atomes de la cible et ainsi à la pulvérisation des particules atomiques

ou poly-atomiques vers le vide. Le retour à l'équilibre s'accompagne souvent de la création d'une zone cylindrique fortement endommagée autour de la trajectoire du projectile, communément appelées trace latente. La présence et la nature de ces déformations structurelles ne dépendent pas uniquement de l'excitation directe par l'ion lourd incident mais aussi du mécanisme de transfert d'énergie entre les électrons et les noyaux de la cible. Ces traces sont principalement associées à des matériaux isolants plus sensibles aux excitations électroniques [2, 3], bien qu'il existe également des preuves qu'elles peuvent être produites dans des métaux où le pouvoir d'arrêt électronique est très élevé [4, 5, 6].

Plusieurs modèles théoriques ont été proposés pour prédire quelques paramètres régissant les effets d'irradiations ioniques pour des cas bien précis et vérifiables expérimentalement, notamment ceux relatifs à la formation des traces latentes. Parmi ces modèles, nous citons celui de l'explosion Coulombienne [7,8] et de pointes thermiques inélastiques (i-TS) [9,10 et 11]. Pour un ion lourd rapide qui se déplace dans la matière et perd progressivement son énergie aux constituants (électrons et atomes) du matériau solide jusqu'à ce qu'il s'immobilise (s'implante) en profondeur, le modèle des pointes thermiques fournit de meilleurs résultats pour expliquer les effets d'irradiation ionique, en décrivant la dépendance des déformations sur la température de la cible. Ce modèle i-TS à deux-températures a été développé initialement pour les métaux [12], et plus tard appliqué pour les isolants et les semi-conducteurs [13] ainsi que pour l'étude de la pulvérisation en surface, en se servant de l'évolution des deux températures (électronique & atomique). Ce qui donne des informations détaillées sur quelques effets d'irradiation ionique induits [14]. Durant ces cinq dernières décennies, les dommages induits aux énergies élevées (~MeV) n'ont pas encore été suffisamment bien étudiés, en particulier, dans le cas des matériaux solides sous forme de couches minces avec des propriétés thermo-physiques réduites [15, 16, 17]. De plus, les modèles théoriques et les codes de simulation numérique proposés sur la base de deux principales approches de l'explosion coulombienne ou de pointes thermiques n'arrivent toujours pas à bien élucider tous les aspects régissant ces effets d'irradiation ionique dans ce type de matériaux avec des dimensions réduites [18-22].

Dans le cadre de ce sujet de thèse de doctorat, nous avons étudié expérimentalement la pulvérisation induite par des ions lourds Au<sup>q+</sup> aux énergies du 10-40 MeV dans un matériau solide



isolant de dioxyde de silicium ( $\text{SiO}_2$ ) sous forme de couches minces. Cette investigation expérimentale a été complétée et interprétée dans le cadre d'une approche théorique modifiée du modèle des pointes thermiques inélastiques, en élucidant tous les aspects de l'interaction ion-matière, notamment, ceux liés à la détermination précise de la distribution radiale de la perte d'énergie électronique et des propriétés thermo-physique réduites du matériau  $\text{SiO}_2$  en couche mince irradié [18-22]. La partie expérimentale consiste, en premier lieu, au dépôt par évaporation thermique (canon à électrons) des couches minces de dioxyde de silicium ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) sur des substrats de silicium, puis les irradier par des ions lourds  $\text{Au}^{+q}$  ( $q = +4, +6, +7, +9$ ) d'énergies comprises entre 10 et 40 MeV au niveau de l'accélérateur Tandem d'iThemba LABS (Johannesburg, Afrique du Sud). Par la suite, l'analyse de ces échantillons cibles irradiés a été effectuée via la technique de spectrométrie de Rétrodiffusion de Rutherford (RBS) avec un faisceau d'ions  $^4\text{He}^+$  d'énergie de 2 MeV délivré par l'accélérateur Van de Graaff 3.75 MV du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (C.R.N.A.). Les mesures expérimentales du rendement de pulvérisation ont été effectuées en utilisant la méthode expérimentale dite "*méthode de changement d'épaisseur*" basée sur la réduction de l'épaisseur de l'échantillon sous irradiation ionique. Finalement, nous avons aussi utilisé d'autres techniques de caractérisation complémentaires comme la diffraction des rayons X (DRX), la microscopie électronique à balayage (MEB) pour contrôler l'état de surface et la microstructure des échantillons cibles ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) étudiés.

Ce manuscrit de thèse est organisé en quatre chapitres. Dans le premier chapitre, nous faisons une synthèse sur les principaux paramètres régissant le phénomène de l'interaction ion-matière et les effets d'irradiation ionique, en relatant notamment les différents modèles proposés pour décrire le phénomène de pulvérisation en surface. Le deuxième chapitre est consacré au calcul numérique et traitement semi-empirique du modèle des pointes thermiques inélastiques, en décrivant les différents paramètres d'entrée nécessaires au calcul du rendement de pulvérisation dans le cas du dioxyde de silicium. Le troisième chapitre sera consacré au travail expérimental effectué en décrivant les différentes techniques et méthodes expérimentales utilisées dans nos expériences d'irradiation et d'analyse par faisceaux d'ions. Finalement, nous présentons les résultats expérimentaux et numériques obtenus, avec leur discussion, interprétation et comparaison. Nous terminons ce manuscrit par une conclusion générale.

**CHAPITRE I :****RAPPELS THÉORIQUES SUR L'INTERACTION ION-MATIÈRE****I.1. Interaction ion-matière :**

Lorsqu'un ion incident pénètre dans un solide, il entre en collision avec des atomes cibles du matériau bombardé en perdant une grande quantité de son énergie cinétique via deux principaux processus : (i) des collisions inélastiques dues aux chocs électroniques, conduisant à l'ionisation et à l'excitation des atomes cibles (perte d'énergie électronique), et (ii) des collisions élastiques dues aux chocs nucléaires (perte d'énergie nucléaire). La prédominance d'un processus sur l'autre dépend essentiellement de l'énergie de l'ion incident et de sa nature (sa masse atomique). Ainsi, pour un ion incident de masse intermédiaire d'énergie cinétique élevée (de l'ordre du MeV), il cède initialement une grande partie de son énergie via des chocs électroniques inélastiques et à la fin de son cheminement dans le solide, il perd la quantité restante de son énergie cinétique par des chocs élastiques nucléaires en s'implantant dans la cible. L'ensemble de ces collisions provoque un grand nombre de déplacements atomiques directs ou indirects en créant une zone instable autour de la trajectoire de l'ion incident, à l'origine de la création des dommages et défauts atomiques en volume avec la formation des traces latentes autour de la trajectoire de l'ion incident. Ces dommages atomiques créés sont également accompagnés par l'émission ou la pulvérisation des particules atomiques et/ou moléculaires de la surface du matériau solide bombardé.

**I.2. Processus et paramètres de l'interaction ion-matière :**

L'interaction entre l'ion incident et le matériau solide bombardé peut être traitée par différents processus relativement simples. Néanmoins, leurs additions et le plus souvent un grand nombre d'évènements successifs formant un système complexe. Pour comprendre les mécanismes d'ensemble, il convient donc de décrire les interactions à l'échelle atomique et par types de collisions. Les ions lourds sont des particules chargées qui possèdent une masse supérieure ou égale à celle du Lithium ( $Z = 3$ ) et qui ont une vitesse comparable ou plus grande que celle des électrons de la couche K d'un atome ( $v_0 \approx e/\hbar \sim c/137 \sim 25 \text{ keV/u}$  étant la vitesse de Bohr et  $c$  celle de la lumière). Lors de leur accélération, ces ions perdent une partie de leurs électrons en possédant un état de charge  $q$  donnée. Au cours des interactions avec les atomes cibles du

matériau bombardé, ces ions cèdent une quantité importante de leur énergie cinétique via des processus de captures ou de pertes d'électrons supplémentaires, ce qui fait que leur état de charges est modifié.

Les séries de collisions entre l'ion incident et le milieu ralentisseur peuvent être donc classées en deux catégories : les collisions élastiques nucléaires qui décrivent le mouvement du centre de masse des atomes à travers la diffusion dans le solide (perte d'énergie nucléaire) et les collisions inélastiques électroniques complexes correspondantes aux modifications des configurations électroniques des deux partenaires projectile-atome cible (perte d'énergie électronique).

### 1.2.1. Cinématique de collisions élastiques :

Les collisions élastiques sont considérées comme le principal mécanisme de transfert de quantité de mouvement des ions lourds au sein de la matière à basse énergie ( $\sim \text{keV}$ ). Pour ce processus, l'énergie cinétique reste conservée et les particules ne se déforment pas et ne changent pas de nature, c.-à-d., les interactions sont uniquement de type de diffusion coulombienne entre les deux noyaux partenaires (ion-atome cible), en absence des réactions nucléaires et aussi pas de grandes perturbations électroniques.

Ainsi, pour un ion rapide de numéro atomique  $Z_1$ , de masse  $M_1$  et d'énergie  $E_0$  ( $E_0 = \frac{1}{2} M_1 V_0^2$ ) arrivant sur un atome cible de numéro atomique  $Z_2$  et de masse  $M_2$  au repos dans le référentiel du laboratoire (voir Fig. I-1), il sera rétrodiffusé à la surface de la cible après collision avec un angle de détection  $\theta$  par rapport à sa direction initiale d'incidence.

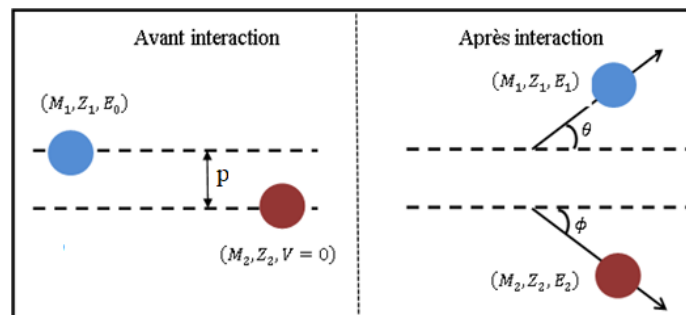


Fig. I-1 : Cinématique de collisions dans le référentiel du laboratoire (L).

Le traitement de l'interaction entre le projectile et l'atome cible est effectué en utilisant les lois de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie totale via différents calculs [23]. Cependant, l'interaction entre l'ion incident et l'atome cible peut être traitée différemment dans le référentiel du centre de masse des deux partenaires (voir Fig. I-2). Nous considérons simplement que le projectile et l'atome cible comme une seule particule de masse  $\mu =$

$M_1M_2/(M_1 + M_2)$  et d'énergie  $E_c = \frac{1}{2}\mu v_0^2$  venant de l'infini et qui s'approche d'une zone où règne un champ de force centrale (potentiel d'interaction coulombien) agit uniquement le long de la ligne droite entre les deux particules. La particule sera défléchie durant son passage près du centre de force et va émerger avec la même énergie mais se déplacera avec un angle  $\theta_c$  par rapport à sa direction initiale [23].

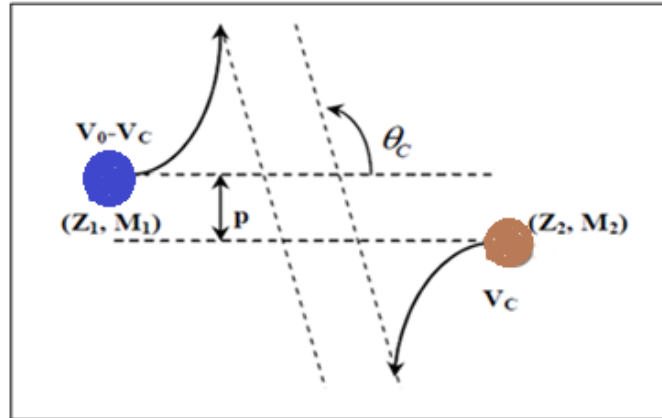


Fig. I-2 : Cinématique de collisions dans le référentiel du centre de masse (c.d.m.).

L'énergie transférée à la cible est donnée par la relation suivante :

$$T = \frac{4M_1M_2}{(M_1+M_2)^2} E_0 \sin^2 \frac{\theta_c}{2} = \gamma E_0 \sin^2 \frac{\theta_c}{2} \quad (I.1a)$$

avec 
$$\theta_c = \pi - \int_{r_{min}}^{\infty} \frac{2pdr}{r^2 \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_c} - \frac{p^2}{r^2}}} \quad (I.1b)$$

où  $p$  est la distance entre les droites parallèles passants par le centre des deux noyaux en interaction (voir Fig. I-2) et  $V(r)$  le potentiel d'interaction interatomique. Le transfert d'énergie prend une valeur maximale  $T_{max} = E_0$  lorsque  $\theta_c = \pi$  et  $M_1 = M_2$ , tandis que sa valeur minimale  $T_{min}$  est donnée par la relation suivante en fonction du paramètre d'impact [23] :

$$T_{min} = \frac{\gamma E_0}{\left(1 + \left(\frac{2r_{min}}{b}\right)^2\right)}, \quad (I.1c)$$

où  $r_{min}$  est la distance minimale de séparation entre les deux partenaires (ion-atome cible) et  $b$  le diamètre de collision correspondant à un choc frontal ( $\theta_c = \pi$ ) :

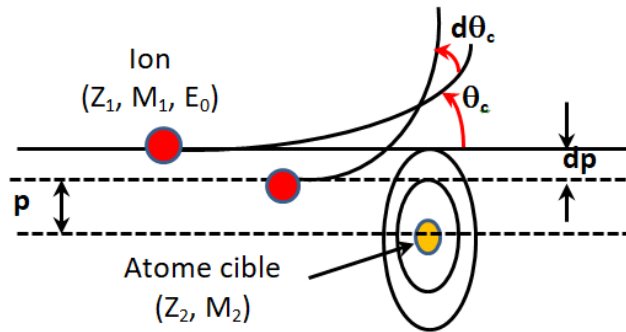
$$b = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{E_0} \frac{M_2}{M_1 + M_2}, \quad (I.1d)$$

où  $e$  est la charge élémentaire de l'électron ( $e = 1.602 \times 10^{-19}$  C).

### I.2.2 Diffusion de Rutherford :

La probabilité de transfert d'une quantité d'énergie comprise entre  $T$  et  $T + dT$  à la cible où la probabilité de diffusion coulombienne du projectile par la cible avec un angle compris entre  $\theta$  et

$\theta + d\theta$  est décrite par la section efficace différentielle de diffusion de Rutherford qui dépend du potentiel coulombienne entre l'ion et l'atome cible (voir Fig I-3).



**Figure I-3 :** Schéma descriptif de la diffusion de Rutherford dans le référentiel (c.d.m.) [23].

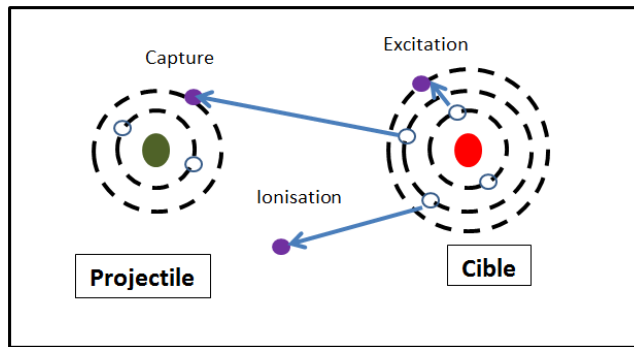
Pour un potentiel purement coulombien ( $\sim 1/r$ ), la section efficace différentielle d'interaction est donnée par la formule de Rutherford :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{k}{4E_c}\right)^2 \frac{(Z_1 Z_2 e^2)^2}{(\sin^2 \frac{\theta_c}{2})^4}, \quad (1.2)$$

où  $k = \frac{1}{4\pi\epsilon_0}$  est la constante liée à la permittivité diélectrique dans le vide,  $E_c$  est l'énergie cinétique dans le référentiel (c.d.m.). Nous pouvons remarquer que la section efficace différentielle de Rutherford augmente lorsque l'angle de diffusion  $\theta_c$  diminue. Ce qui implique que la section efficace diminue avec l'augmentation de l'énergie incidente. Egalement, cette grandeur physique est proportionnelle au carré de la charge de l'ion incident et de l'atome cible, ce qui fait qu'elle est plus importante pour les ions ou les atomes les plus lourds.

### 1.2.3 Les collisions inélastiques :

Comme évoqué précédemment, l'ion incident peut interagir de façon inélastique avec les nuages électroniques des atomes de la cible bombardée qui rassemblent tous les types de collisions d'excitations, de captures électroniques et d'ionisations atomiques, en conduisant à la perte d'énergie électronique (Figure I-4). L'énergie cinétique totale du système (projectile-atome cible) n'est pas conservée, car l'énergie interne de chaque particule qui participe à l'interaction peut être modifiée à cause des excitations électroniques. Ces trois processus prépondérants dans le régime de haute énergie ( $\sim$ MeV) dépendent aussi de la nature du matériau bombardé, c.-à-d., dans le cas, par exemple, des isolants et pour certaines cibles métalliques, la densité d'ionisation est très grande. L'interaction entre l'ion incident et les électrons de l'atome cible ne peut pas être décrite par des collisions binaires à deux corps, car l'ion interagit avec plusieurs électrons liés eux-mêmes aux noyaux de la cible.



**Figure I-4 :** Schéma descriptif des trois processus majoritaires lors des collisions inélastiques.

L'énergie interne noyau-électrons est modifiée au cours de l'interaction et le pouvoir d'arrêt électronique des ions dans la cible est calculé avec précision lorsque l'interaction est considérée comme une perturbation (faible transfert d'énergie, faible durée d'interaction ou charge peu élevée). Ceci peut être simplement vérifié pour les ions légers très rapides. Comme évoqué précédemment, lors de l'irradiation d'un matériau, les deux types de collisions élastiques et inélastiques coexistent et leur importance relative dépend à la fois de l'énergie et de la charge du projectile et aussi de sa nature (sa masse) ainsi que celle de l'atome cible.

**I.2.4. Pouvoir d'arrêt des ions dans la matière :**

Dans le cas d'un ion incident en interaction avec une cible solide, on utilise habituellement la notion du pouvoir d'arrêt pour comprendre les différents processus mis en jeu tels que le ralentissement de l'ion, l'endommagement du solide et aussi les mécanismes d'émission des particules de la surface cible ou pulvérisation en surface. Cette grandeur physique représente l'énergie moyenne déposée localement par l'ion incident par unité de longueur parcourue dans le matériau cible considéré, c.-à-d. :

$$S(E) = -\frac{dE}{dx} \tag{1.3}$$

C'est une grandeur caractéristique du milieu traversé et de la particule incidente (nature et énergie cinétique). L'unité du pouvoir d'arrêt est le (keV/nm), ou en (MeV.mg<sup>-1</sup>.cm<sup>2</sup>), ce qui correspond à  $\left(\frac{dE}{\rho dx}\right)$ , où  $\rho$  étant la densité massique du matériau. Cette quantité dépend du processus de collisions considéré, le pouvoir d'arrêt total est obtenu donc en sommant les deux composantes principales nucléaire et électronique :

$$-\frac{dE}{dx}\Big|_{tot} = \left(-\frac{dE}{dx}\Big|_n\right) + \left(-\frac{dE}{dx}\Big|_e\right), \tag{1.4}$$

où l'indice  $n$  ou  $e$  représente le pouvoir d'arrêt nucléaire ou électronique. Comme évoqué précédemment, l'importance relative de ces deux composantes de perte d'énergie dépend principalement de la vitesse du projectile. Le pouvoir d'arrêt nucléaire est prédominant pour des

vitesse faibles (énergies cinétiques dans la gamme du keV), tandis que le pouvoir d'arrêt électronique est prédominant pour des vitesses élevées (énergies cinétiques dans la gamme du MeV et du GeV). Une telle comparaison entre ces deux composantes peut être effectuée en utilisant le terme de l'énergie réduite ( $\varepsilon$ ) donnée par la relation suivante :

$$\varepsilon = \frac{a_{TF} M_2}{Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)} E_0, \quad (1.5)$$

où  $e$  est la charge élémentaire de l'électron ( $e^2 = 1.44 \text{ eV} \cdot \text{nm}$ ) et la quantité :

$$a_{TF} = \frac{0.885 a_0}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}} \quad (1.6)$$

représente la distance d'écran de Thomas-Fermi défini par Lindhard et al. [24] en termes du rayon de Bohr ( $a_0 \approx 0.053 \text{ nm}$ ).

#### 1.2.4.1. Pouvoir d'arrêt nucléaire :

Les chocs élastiques entre l'ion incident et les atomes cibles peuvent être traités par les lois de la mécanique classique où l'interaction est purement coulombienne. Le transfert d'énergie entre les deux particules conduit à des déplacements atomiques directs. La grandeur qui décrit ce transfert d'énergie est la section efficace d'arrêt [25] :

$$d\sigma(E, T) = \pi \frac{M_1}{M_2 E} Z_1^2 Z_2^2 e^4 \frac{dT}{T^2}. \quad (1.7)$$

Elle est définie comme la probabilité pour que la particule incidente cède de l'énergie à une particule cible pendant son ralentissement.

L'énergie perdue au cours des collisions nucléaires par l'ion incident tout au long de son parcours dans le milieu traversé est donnée par la relation suivante :

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_n = N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T \cdot \sigma(E, T) dT. \quad (1.8)$$

Et après intégration de cette dernière équation (1.8), l'expression du pouvoir d'arrêt nucléaire devient donc :

$$S_n(E) = - \left. \frac{dE}{N dx} \right|_n = \pi \frac{M_1}{M_2} \frac{Z_1^2 Z_2^2 e^4}{E} \ln \frac{T_{max}}{T_{min}}, \quad (1.9)$$

où  $T_{max} = \gamma E_0$  est l'énergie maximale transférée pour un angle de diffusion  $\theta_c = \pi$  et  $\gamma$  étant un rapport des masses défini par l'éq. (1.1a).  $T_{min}$  est l'énergie minimale transférée donnée par la relation (1.1c). Lindhard et al. [24] ont proposé une expression réduite de  $S_n(E)$ , soit :

$$S_n(E) = \frac{\pi a_{TF} \gamma E_0}{\varepsilon} S_n(\varepsilon), \quad (1.10a)$$

$$\text{avec : } S_n(\varepsilon) = \frac{1}{\varepsilon} \int_0^\varepsilon f(t^{1/2}) dt^{1/2}, \quad (1.10b)$$

$$\text{et } t^{1/2} = \varepsilon^2 \sin^2 \left( \frac{\theta_c}{2} \right), \quad (1.10c)$$

où la fonction  $f(t^{1/2})$  contient les mêmes informations que la section efficace différentielle du pouvoir d'arrêt nucléaire [2].  $f(t^{1/2})$  peut être évaluée en utilisant différents modèles de potentiels d'interaction interatomiques, notamment, le potentiel de Thomas-Fermi (TF) [26], le potentiel KrC [27] ou celui de Ziegler et al. (ZBL) [28]. Ces deux potentiels dépendent d'un terme  $\sim \frac{1}{r}$  dû à la répulsion coulombienne entre les deux noyaux projectile-cible multiplié par une fonction d'écran  $\Phi(r/a_{TF})$  due au couplage de leurs nuages électroniques, soit :

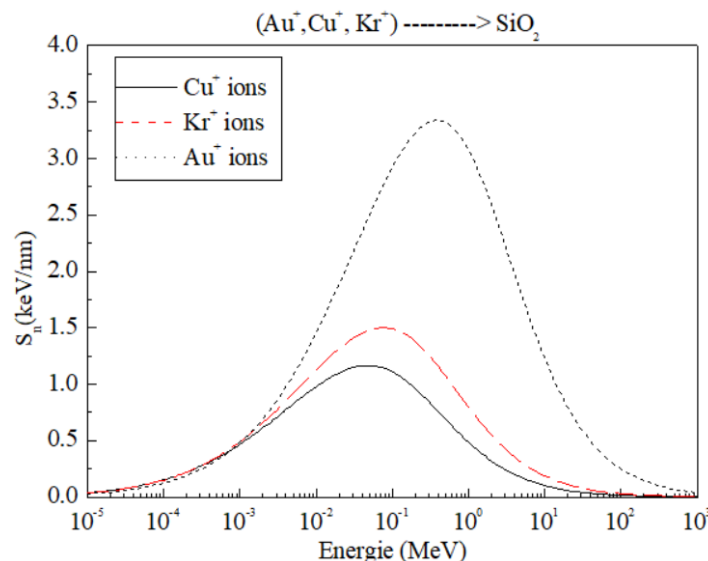
$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \times \Phi(r/a_{TF}), \quad (1.10a)$$

avec  $\Phi(r/a_{TF}) = \sum_{i=1}^n c_i \exp(-d_i \frac{r}{a_{TF}}), \quad (1.10b)$

où  $c_i$  et  $d_i$  sont des constantes d'ajustement relatives à chaque type de potentiel [29]. Ainsi, le pouvoir d'arrêt nucléaire réduit dans le cas du potentiel ZBL, qui sera utilisé tout au long de ce travail, peut être donné par la formule suivante :

$$S_n^{ZBL}(\varepsilon) = \begin{cases} \frac{0.5 \ln(1+1.1383\varepsilon)}{\varepsilon+0.0132\varepsilon^{0.21226}+0.19593\varepsilon^{0.5}} & \varepsilon < 30 \\ \frac{\ln(\varepsilon)}{2\varepsilon} & \varepsilon \geq 30 \end{cases} \quad (1.11)$$

La perte d'énergie nucléaire est due aux collisions élastiques entre l'ion incident et l'atome cible et ça n'a rien à voir avec les forces nucléaires ou l'interaction forte. Cette quantité d'énergie est négligeable partout sauf pour les plus basses énergies, mais si la masse de l'ion incident devient plus grande la contribution nucléaire croît aussi. Ceci peut être vérifié pour des ions lourds incidents sur une cible d'éléments légers aux énergies du MeV, comme dans le cas des ions ( $\text{Cu}^+$ ,  $\text{Kr}^+$  et  $\text{Au}^+$ ) incidents sur une cible d'oxyde de silicium ( $\text{SiO}_2$ ) qui sera étudiée dans ce travail de thèse.



**Figure I-5 :** Variation du pouvoir d'arrêt nucléaire  $S_n(E)$  en fonction d'énergie pour trois ions lourds ( $\text{Au}^+$ ,  $\text{Cu}^+$  et  $\text{Kr}^+$ ) incidents sur une cible de  $\text{SiO}_2$ .



Sur la figure (I-5), est tracée la variation en fonction de l'énergie du pouvoir d'arrêt nucléaire  $S_n(E)$  calculé via la formule ZBL (éq. I-11) pour les trois ions précités dans une cible de  $\text{SiO}_2$ . Nous observons que le pouvoir d'arrêt nucléaire croît en fonction du numéro atomique de l'ion incident et aussi n'est pas négligeable aux énergies de quelques MeV correspondantes à la gamme d'énergie qui sera explorée dans le présent travail.

#### I.2.4.2. Pouvoir d'arrêt électronique :

Au cours de son cheminement dans la matière, l'ion perd une quantité de son énergie cinétique via différents processus inélastiques (la capture électronique, l'excitation ou l'ionisation atomique). Ces trois mécanismes de perte d'énergie électronique sont beaucoup plus compliqués que celui de la perte d'énergie nucléaire, car l'interaction entre l'ion incident et les électrons du milieu ralentisseur n'est pas considérée comme une collision binaire à deux corps mais à plusieurs particules. L'ion incident passe ainsi par différents états de charges lors de son passage à travers le matériau solide bombardé, pour cela on distingue trois régions de vitesses délimitées approximativement par rapport à la quantité  $Z_1^{2/3} v_0$  ( $v_0 = \frac{e^2}{h} \approx \frac{c}{137} \sim 25 \text{ keV}/u$ ,  $v_0$  étant la vitesse de Bohr et  $c$  la vitesse de la lumière).

##### a) Le domaine des basses énergies :

Dans ce domaine de basses énergies, la durée de collision entre l'ion incident et l'atome cible devient très grande par rapport à la période de révolution de l'électron autour du noyau. Ce qui fait que la vitesse de l'ion incident dans le solide est inférieure à la vitesse orbitale de la majorité des électrons du milieu ralentisseur ou de ses propres électrons. L'ion garde ainsi pratiquement une grande partie de ses électrons en interagissant avec les atomes cibles via le recouvrement de leurs nuages électroniques, et la capture électronique devient donc le processus inélastique le plus probable. Dans cette région, l'ensemble des électrons du milieu participant au ralentissement (électronique) est considéré comme un fluide visqueux où le pouvoir d'arrêt  $S_e(E)$  est proportionnel à la vitesse du projectile (i.e., le pouvoir d'arrêt augmente avec l'énergie de l'ion). Le réarrangement de ces électrons induit un transfert d'énergie décrit théoriquement par le modèle de Lindhard, Schiott et Scharff [24]. Dans cette région d'énergie, la formule de Bethe-Bloch applicable à haute énergie n'est plus valable ici et la région dénommée région LSS. Le calcul du pouvoir d'arrêt électronique à basse énergie est donné par la relation suivante :

$$S_e(E) = \frac{8N\pi e^2 a_0 Z_1^{7/6} Z_2 v_1}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2} v_0} = k_L \sqrt{E}, \quad (I.12a)$$

$$\text{avec } k_L = 3.83 \frac{Z_1^{7/6} Z_2}{M_1^{1/2} (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}}, \quad (I.12b)$$

est une constante exprimée en unité d'eV/ (10<sup>15</sup> at. /cm<sup>2</sup>) et qui dépend de la masse et du numéro atomique de l'ion incident ainsi que celui de la cible. La relation (I-12a) est souvent exprimée en termes de l'énergie réduite  $\varepsilon$  :

$$S_e(\varepsilon) = \frac{(M_1 + M_2)^{3/2}}{12.6 M_1^{3/2} M_2^{1/2}} \frac{Z_1^{2/3} Z_2^{1/2}}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/4}} \sqrt{\varepsilon} = k_e \sqrt{\varepsilon}. \quad (I.13)$$

### b) Le domaine des énergies intermédiaires:

Dans cette région d'énergie, le dépôt d'énergie passe par un maximum, appelé "pic de Bragg", où le pouvoir d'arrêt de l'ion incident est proportionnel à 1/E. Le projectile capture des électrons et devient partiellement épluché avec une charge électronique moyenne  $\langle q \rangle$  inférieure à  $(Z_1 e)$  et le pouvoir d'arrêt diminue progressivement au fur et à mesure que l'énergie cinétique de l'ion incident augmente. Il n'existe aucune formule simple pour calculer le pouvoir d'arrêt dans cette région, mais la formule de Bethe-Bloch est souvent utilisée en employant la notion de la charge effective ( $Z_1^* e = \gamma Z_1 e$ , où  $\gamma$  est le facteur sans dimension qui dépend principalement de la vitesse de l'ion incident).

### c) Le domaine de hautes énergies :

Dans cette région d'énergie, les projectiles sont suffisamment rapides pour considérer les interactions brèves, les ions sont complètement épluchés (c.-à-d., tous les électrons participent au ralentissement). L'interaction est décrite par un potentiel purement coulombien et l'ion peut être considéré comme un ion de charge ponctuelle  $Z_1 e$ . L'évaluation de la perte d'énergie électronique a été entamée au début de 20<sup>ième</sup> siècle avec le modèle classique du Bohr [30] et l'approche quantique de Bethe [31]. Par la suite, Bloch [32] a combiné les deux modèles en remplaçant l'onde plane de l'électron atomique par une fonction d'onde coulombienne due au champ électromagnétique créée par l'ion incident. Selon cette approche, la perte d'énergie électronique est prédominante si la vitesse de l'ion incident est supérieure à la vitesse de Bohr ( $v \gg v_0$ ,  $v_0$  étant la vitesse de Bohr). La formule finale du pouvoir d'arrêt électronique de Bethe-Bloch est donnée par la relation suivante :

$$S_e(E) = \frac{k Z_1^2 Z_2^2}{\beta} \left\{ \ln \frac{2m_e v^2}{(I)(1-\beta^2)} - \beta^2 - \frac{c}{Z^2} + \frac{\delta}{2} + Z_1 L_1 + Z_1^2 L_2 \right\} \quad (I.14)$$

avec  $\beta = \frac{v}{c}$  et  $Z_1^2 L_2$  sont les termes de correction de Bloch [31],  $I$  est défini comme étant le potentiel d'ionisation et d'excitation moyen,  $\frac{c}{Z^2}$  est l'effet de correction de couches,  $\frac{\delta}{2}$  est l'effet de densité valable pour des vitesses relativistes. Et finalement,  $Z_1 L_1$  représente l'effet de corrections de Barkas [33] dues à la polarisation de la charge de l'ion incident.

#### 1.2.4.3. Pouvoir d'arrêt total dans un matériau composé :

Comme évoqué précédemment (voir eq. 1.4), la perte d'énergie totale d'un ion incident sur un matériau simple dépend de deux processus de collisions électroniques et nucléaires. Cependant, dans le cas d'un matériau solide composé de plus d'un élément cible, la loi de Bragg et Kleeman [34] est appliquée en supposant que le pouvoir d'arrêt dans ce matériau composé est la combinaison linéaire des pouvoirs d'arrêts de chaque élément composant ce matériau, soit :

$$S_{tot}^c(E) = \sum_{i=1}^n w_i S_{tot}^i(E) = \sum_{i=1}^n w_i (S_e^i(E) + S_n^i(E)), \quad (I-15)$$

où  $w_i$  est la fraction de masse du  $i^{\text{ème}}$  élément constituant le matériau composé bombardé. La règle de Bragg stipule donc que le ralentissement de l'ion incident dans ce type de matériau résulte de la somme des séquences de collisions binaires avec les noyaux atomiques et électrons cibles. Et ce quel que soit l'état de phase et les liaisons atomiques du milieu (c.-à-d., les effets d'agrégation sont négligeables pour des énergies cinétiques élevées). Ainsi, pour le matériau cible étudié dans ce travail (dioxyde de silicium  $\text{SiO}_2$ ), la règle d'additivité de Bragg sera ainsi appliquée dans le cas des pouvoirs d'arrêts électronique ou nucléaire :

$$S_e^{\text{SiO}_2}(E) = \frac{2 \times 16}{60} S_e^O(E) + \frac{28}{60} S_e^{\text{Si}}(E), \quad (I-16a)$$

$$S_n^{\text{SiO}_2}(E) = \frac{2 \times 16}{60} S_n^O(E) + \frac{28}{60} S_n^{\text{Si}}(E), \quad (I-16b)$$

Également, cette règle d'additivité sera utilisée tout au long de ce travail pour d'autres paramètres pertinents régissant les effets d'irradiation ionique aux énergies du MeV. Finalement, on doit toutefois noter que différents travaux de recherche publiés dans la littérature [35, 36 et 37] ont montré que la règle d'additivité de Bragg est appliquée avec succès dans le cas des matériaux hydrocarbonés et/ou riches en éléments légers tels que (H, C, N, O, F et S...).

#### 1.2.4.4. Traitement semi-empirique du pouvoir d'arrêt électronique :

Les différentes théories du pouvoir d'arrêt électronique citées ci-dessus peuvent être vérifiées en utilisant d'autres moyens basés sur les tabulations semi-empiriques et les données

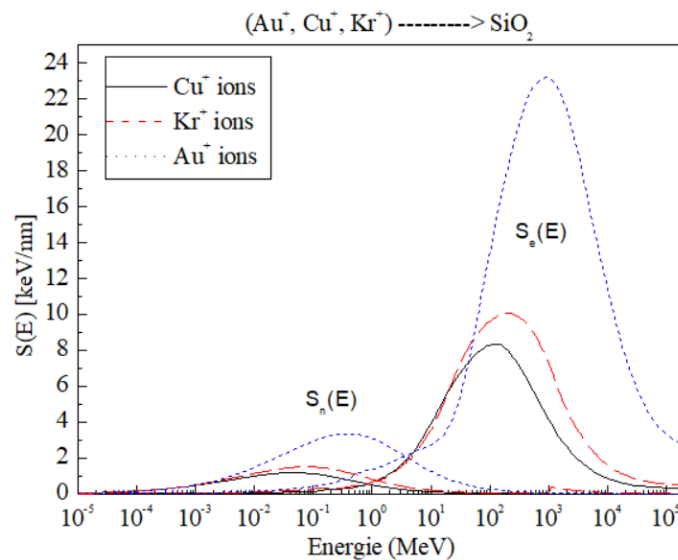
expérimentales. Ces tabulations numériques peuvent évaluer avec une bonne précision le pouvoir d'arrêt des ions énergétiques dans n'importe quel milieu ralentisseur. Parmi ces tabulations semi-empiriques, nous citons celle qui a été proposée par Ziegler et al. (ZBL) [28] en 1985, où on peut à partir des expressions semi-empiriques ajustant des pouvoirs d'arrêt expérimentaux des protons déduire directement le pouvoir d'arrêt des ions lourds dans les solides. Notant que la compilation ZBL est basée principalement sur la combinaison de deux relations semi-empiriques suivantes :

$$S_{low} = aE^b + cE^d, \tag{I.17a}$$

$$S_{high} = \frac{e}{Ef} \ln\left(\frac{g}{E} + hE\right), \tag{I.17b}$$

$$S_e = \frac{S_{high}S_{low}}{S_{high}+S_{low}}. \tag{I.17c}$$

Dans ces trois formules semi-empiriques, les coefficients a, b, c, d, e, f et g sont des paramètres d'ajustement aux données expérimentales. La relation (I.17a) est valable à basse énergie et est similaire à celle de Lindhard et al. (LSS). La relation (I.17b) valable à haute énergie et elle a une similitude avec la formule de Beth-Bloch. Tandis que le pouvoir d'arrêt entre les deux régions d'énergie est donné par la formule (I.17c) de combinaison entre les deux modèles LSS et Beth-Bloch. La compilation ZBL qui fait partie du code de simulation SRIM [28] est périodiquement modifiée pour tenir compte des données expérimentales récentes du pouvoir d'arrêt publiées.



**Figure I-5 :** Variation en fonction de l'énergie des pouvoirs d'arrêt électronique  $S_e(E)$  et nucléaire  $S_n(E)$  pour trois différents ions (Au<sup>+</sup>, Cu<sup>+</sup> et Kr<sup>+</sup>) incidents sur une cible de SiO<sub>2</sub>. Le calcul a été effectué via le code de simulation SRIM-2013 [28].

Le pouvoir d'arrêt des ions lourds peut être déduit de celui des protons (ou de l'hélium) en terme de la charge effective, en utilisant la paramétrisation suivante :

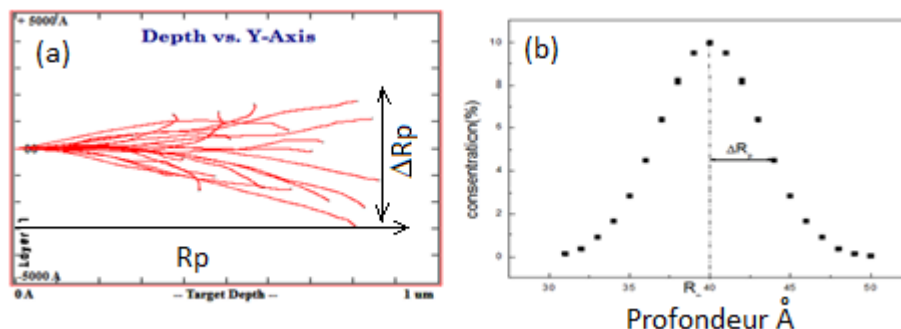
$$S_e^{HI}(Z_1, Z_2, v) = \frac{Z_{HI}^{*2}(Z_1, Z_2, v)}{Z_H^{*2}(1, Z_2, v)} \times S_e^H(1, Z_2, v), \quad (I.17d)$$

où  $S_e^{HI}(Z_1, Z_2, v)$  et  $S_e^H(1, Z_2, v)$  sont les pouvoirs d'arrêt électroniques de l'ion lourd et des protons traversant le même milieu ralentisseur ( $Z_2$ ) avec la même vitesse ( $v$ ).

Sur la figure (I-5) est présentée la variation en fonction de l'énergie cinétique des pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire pour trois ions lourds ( $\text{Cu}^+$ ,  $\text{Kr}^+$  et  $\text{Au}^+$ ) incidents sur une cible de  $\text{SiO}_2$ . Nous observons sur cette figure que le pouvoir d'arrêt nucléaire pour ces trois types d'ions est prédominant à basse énergies dans la gamme du keV jusqu'à 3 MeV pour les ions  $\text{Au}^+$ , tandis qu'au-delà de cette région ( $E > 3 \text{ MeV}$ ), c'est le pouvoir d'arrêt électronique qui prédomine.

**I.3. Le parcours d'ions R et le parcours projeté  $R_p$  dans une cible solide:**

Comme évoqué précédemment, l'ion incident sur une cible solide perd son énergie cinétique principalement par des collisions électroniques et nucléaires avec les atomes cibles et s'arrête en profondeur à une distance R de la surface cible (implantation ionique) (voir Figure I-6). Lors de son cheminement dans la matière, l'ion est dévié par diffusion dans le solide en prenant plusieurs directions successives, ce qui fait que son mouvement à l'intérieur de la cible ne peut être linéaire, la distance réelle parcourue est appelée « parcours R ». D'un point de vue pratique, la quantité physique souvent considérée dans les mesures expérimentales est le parcours projeté  $R_p$  défini comme la projection du parcours réel sur l'axe orienté vers la direction initiale de l'ion incident. Une autre quantité physique associée au parcours projeté  $R_p$  est également définie ici, c'est le straggling de parcours  $\Delta R_p$  qui est dû au caractère statistique des collisions atomiques où l'histoire de chaque ion en interaction n'est pas la même (voir Figure I-6).



**Figure I-6:** (a) Simulation par le code SRIM des trajectoires des ions énergétiques traversant une cible solide et (b) distribution du parcours en profondeur et straggling de parcours.

Pour des ions lourds énergétiques traversant une cible solide, leur trajectoire est pratiquement rectiligne, ce qui permet de définir la relation entre le parcours R et le pouvoir d'arrêt total  $S_{tot}(E)$  dans le matériau solide, soit :

$$R = \int_{E_0}^0 \left( \frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE = \int_{E_0}^0 \frac{dE}{N(S_e(E) + S_n(E))}, \quad (I.18)$$

où  $N$  est la densité atomique de la cible solide traversée et  $E_0$  est l'énergie cinétique initiale de l'ion incident.

Notant finalement que les deux paramètres physiques  $R_p$  et  $\Delta R_p$  peuvent être aussi soit mesurés expérimentalement, où évalués numériquement via les codes de simulation, notamment, celui de SRIM [28], basé sur l'approximation des collisions binaires (BCA) combinée au modèle semi-empirique ZBL des pouvoirs d'arrêt nucléaire (voir éq. I.11) et électronique (voir éqs. I.17) et la méthode de Monté Carlo. Dans ce code de simulation, l'histoire de chaque ion incident pendant qu'il pénètre dans le solide est suivie en tenant compte des collisions binaires avec les atomes cibles et des pertes d'énergies électronique et nucléaires dans le matériau solide bombardé.

Dans le cas des ions énergétiques traversant un matériau composé contenant, par exemple, deux éléments simples ( $A_n B_m$ ), le parcours projeté  $R_p$  peut être évalué en utilisant l'expression suivante en fonction des parcours projetés  $R_p(A)$  et  $R_p(B)$  dans les éléments simples A et B séparément [23] ;

$$R_p(A_n B_m) = \rho_c \left( \frac{\left( \frac{R_p(A)}{\rho_A} \right) \times \left( \frac{R_p(B)}{\rho_B} \right)}{\left( \frac{n R_p(A)}{\rho_A} \right) + \left( \frac{m R_p(B)}{\rho_B} \right)} \right), \quad (I.19)$$

où  $\rho_c$ ,  $\rho_A$  et  $\rho_B$  sont les densités atomiques du matériau composé cible et des deux éléments A et B, respectivement.

#### I.4. Déplacements atomiques dans les solides :

Le nombre moyen de déplacements atomiques dans les matériaux solides après irradiation par des ions lourds énergétiques est déterminé en premier lieu par la distribution des atomes primaires mis en mouvement "Primary Knock-on atom" (PKA). Ainsi, lors du bombardement d'un solide par un ion rapide, les atomes cibles reçoivent une énergie de recul, et si cette énergie est assez importante par rapport à l'énergie seuil de déplacement dans le solide ( $E_d \sim 5-40$  eV, [23]), ces atomes primaires deviennent eux-mêmes des projectiles en déplaçant d'autres atomes secondaires (SKA), tertiaires, (TKA), .... Les cascades de déplacements atomiques générées par l'ensemble des collisions provoquent un grand nombre de défauts atomiques dans le solide. La fonction de déplacement  $\overline{N_d}(E)$  qui représente le nombre moyen d'atomes déplacés dans une cascade créée par un atome primaire PKA d'énergie  $E$ , est donnée par la formule modifiée de Kinchin-Pease [23,38]:

$$N_d = \begin{cases} 0 & E_v < E_d \\ 1 & E_d \leq E_v \leq \frac{2E_d}{0.8}, \\ 0.8E_v & E_v \leq \frac{2E_d}{0.8} \end{cases} \quad (I-20a)$$

$$\text{avec } E_v = \frac{E}{1+K_d \cdot g(\varepsilon_d)}, \quad (I-20b)$$

est la quantité d'énergie perdue par collisions nucléaires et  $E_d$  représente l'énergie de seuil de déplacements dans le solide. Les quantités  $g(\varepsilon_d)$ ,  $K_d$  et  $\varepsilon_d$  sont des paramètres semi-empiriques réduits et qui sont définis comme suit [23] :

$$g(\varepsilon_d) = 3.4008 \cdot \varepsilon_d^{1/6} + 0.40244 \cdot \varepsilon_d^{3/4} + \varepsilon_d, \quad (I-20c)$$

$$K_d = 0.1337 \cdot \frac{Z^{2/3}}{M^{1/2}}, \quad (I-20d)$$

$$\varepsilon_d = 0.0115 \cdot Z^{-7/3} \cdot E, \quad (I-20e)$$

Notant que ce modèle est valable pour des énergies de recul ( $E < 25 \text{ keV} \cdot Z^{4/3} \cdot M$ ). Également, le nombre moyen de déplacements atomiques créés dans le solide par un ion énergétique peut être aussi calculé différemment en utilisant les outils de simulation numérique notamment le code SRIM [28] basée sur la méthode de Monté Carlo, en suivant l'histoire de chaque particule en mouvement jusqu'à ce que son énergie devienne inférieure à celle du seuil de déplacement  $E_d$ .

### 1.5. La pulvérisation par impact d'ions:

Le phénomène de pulvérisation (ou sputtering en anglais) a été observé pour la première fois dans des décharges de gaz au milieu du dix-neuvième siècle [39]. Actuellement, la pulvérisation n'est plus considérée comme un effet nuisible de détérioration des cathodes ou de contamination d'un plasma, mais elle est largement appliquée au nettoyage et analyse des surfaces solides, pour le dépôt des couches minces et comme mode de fonctionnement des sources d'ions utilisées dans les accélérateurs d'ions lourds. Dans le présent travail, nous nous intéressons à la pulvérisation ou l'éjection des particules atomiques (ou poly-atomiques) induite par une irradiation ionique sur un matériau solide, qui peut conduire donc à l'érosion partielle ou totale de sa surface cible. Ce phénomène est étroitement relié à des processus de collisions séquentielles et de déplacements atomiques directs ou indirects selon la nature de l'ion incident (sa masse, son énergie cinétique). Quel que soit donc la nature du projectile incident et de la cible bombardée, une quantité physique est généralement mesurée expérimentalement ou calculée théoriquement, il s'agit du rendement de pulvérisation ou le nombre moyen d'atomes enlevés par particule incidente :

$$Y = \frac{\text{Nombre moyen d'atomes émis de la surface solide}}{\text{Nombre d'ions incidents}}. \quad (I.21)$$

Les résultats du rendement de pulvérisation peuvent être interprétés via des modèles théoriques basés, soit sur les processus linéaire ou non-linéaires de cascades de collisions atomiques [38,39] (c.-à-d., via les collisions élastiques liées aux chocs nucléaires aux basses énergies), ou sur principalement, les deux processus de pointes thermiques et d'explosion coulombienne qui sont liées aux chocs inélastiques électroniques prédominants aux énergies élevées du MeV [40,41]. Dans tous ces modèles, le nombre de particules pulvérisées de la surface solide dépend de la nature du matériau bombardé (la masse, le volume, la microstructure) ainsi que de la nature de l'ion incident (sa masse, son énergie) et de la géométrie de l'expérience (angle d'incidence et d'éjection en surface et la fluence d'irradiation) [17, 42]. Et d'un point de vue fondamental, le rendement de pulvérisation ainsi que la vitesse et la direction des particules pulvérisées sont principalement dépendants des phénomènes et processus de collisions produits dans la cible sous l'impact des ions incidents. Nous pouvons donc distinguer deux types de pulvérisation, celle nucléaire liée aux déplacements atomiques directs dus aux chocs nucléaires élastiques et celle électronique liée aux déplacements atomiques indirects dus aux excitations électroniques inélastiques via le couplage électron-phonon [20, 21]. Dans ce qui suit, nous allons décrire exhaustivement les deux phénomènes de pulvérisation électronique et nucléaire.

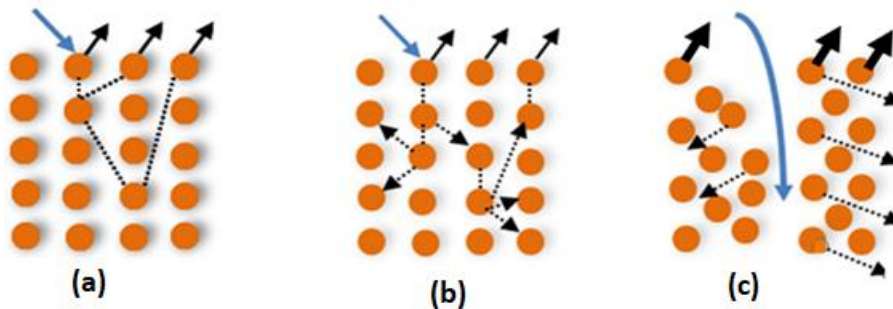
### **I.5.1. Pulvérisation induite par collisions nucléaires élastiques :**

Lorsqu'un ion lourd rapide (d'énergie de l'ordre du keV) pénètre dans la matière, il dépose une grande quantité de son énergie cinétique dans la cible, principalement via des chocs nucléaires élastiques avec les atomes cibles. Si l'énergie transférée aux atomes cibles est supérieur à l'énergie de liaison en surface des atomes cibles ( $E_s > 2$  à 5 eV dans les solides [43]), certains atomes en mouvement peuvent être éjectés loin de la surface solide, où ils subissent des cascades de collisions avec d'autres atomes en profondeur de la cible bombardée. On peut distinguer donc trois régimes de pulvérisation selon la quantité d'énergie déposée sur les atomes cibles primaires ainsi que du nombre d'atomes de recul lors du passage de l'ion à travers la matière : (i) le régime de collisions simples : (ii) le régime des cascades de collisions linéaires et (iii) le régime de cascades de collisions non-linéaires ou de pointes thermiques élastiques (voir Figure I-7). Les processus de collisions simples et de cascades linéaires appartiennent au régime linéaire de pulvérisation, tandis que celui de la pointe thermique appartient au régime non-linéaire de pulvérisation. Le passage d'un régime à un autre correspond à la quantité de particules mises en mouvement lors du passage de l'ion primaire dans le solide.



Le régime de collisions simples est sensible à l'angle d'incidence de l'ion, où peu de particules sont mises en mouvement, car l'énergie moyenne transférée à un atome est insuffisante pour développer une cascade de collisions [44,45]. Cette situation correspond à la pulvérisation induite par des particules incidentes de faible énergie cinétique ou par des ions légers ( $H^+$ ,  $He^+$  de quelques keV) [15]. Ce régime de collisions simples peut être bien décrit par des simulations de type Monté Carlo et les résultats de simulation dans ce régime sont en accord avec les données expérimentales qui montrent un rendement de pulvérisation évoluant suivant l'évolution du pouvoir d'arrêt nucléaire.

Le régime de cascades de collisions est celui que nous rencontrons le plus régulièrement dans la gamme d'énergie comprise entre quelque keV jusqu'à quelques centaines de keV, sauf pour les ions lourds avec des énergies cinétiques jusqu'à quelques MeV et qui induisent une forte densité d'atomes en mouvement. Les collisions de ce type de régime sont habituellement traitées comme des collisions à deux particules. Les collisions entre l'ion projectile et l'atome cible créent ainsi des atomes de recul suffisamment énergétiques qui peuvent à leur tour créer d'autres générations d'atomes de recul sous forme de cascades linéaires de collisions atomiques. C'est pour cette raison que la pulvérisation due à ce processus est sensible à la cible mais également à la nature de l'ion incident et les paramètres de ralentissement. Ce régime linéaire peut être bien décrit par le modèle linéaire de pulvérisation de Sigmund [40].



**Figure I-7** : Régimes de pulvérisation nucléaire : (a) régime de collisions simples, (b) régime de cascades de collisions linéaires et (c) régime de cascades de collisions non-linéaires.

Dans le régime dit non-linéaire, la majorité des atomes sont confinés dans un petit volume appelé volume de pointes thermiques (ou thermal spikes). Ils sont mis en mouvement par des collisions avec d'autres atomes cibles, donc nous ne pourrions pas décrire les mécanismes de pulvérisation par un modèle de cascades de collisions linéaires, mais le concept de pointes thermiques est utilisé, car ces mécanismes sont similaires à l'agitation thermique d'un gaz à une température dite température de pointes dépendante de l'énergie d'impact d'ions. Et tellement le volume de la cascade est petit, tous les atomes sont en mouvement et interagissent entre eux et le régime de

pulvérisation est considéré comme non-linéaire. Ceci peut être vérifié dans le cas par exemple des ions lourds d'énergie supérieure à 100 keV. Ce régime de pulvérisation est bien décrit par le modèle non-linéaire de Sigmund-Claussen [41]. Dans ce qui suit nous allons décrire les deux modèles linéaire et non-linéaire de Sigmund et al. [40, 41].

#### 1.5.1.1. Modèle linéaire de Sigmund :

Ce modèle est basé sur l'approximation des collisions binaires combinée au modèle de Thomas-Fermi [23]. La densité des cascades de collisions est considérée comme faible, c.-à-d., le transfert d'énergie est de l'ordre du keV, et le rendement de pulvérisation dans ce cas est proportionnel au pouvoir d'arrêt nucléaire via l'énergie déposée au voisinage de la surface cible par l'ion incident,  $F_D(E, x = 0)$ , soit :

$$Y_{lin} = \Lambda F_D(E, x = 0) = 0.042\alpha \times \frac{S_n^{TF}(E)}{U_s}, \quad (1.22a)$$

où  $U_s$  est l'énergie de surface supposée comme étant l'énergie de sublimation de matériau solide bombardé,  $\alpha$  est le facteur correctif en surface qui dépend du rapport des masses Cible/Projectile ( $M_2/M_1$ ) et donné par la formule suivante :

$$\alpha = \begin{cases} 0.15 + 0.13 \frac{M_2}{M_1} & \frac{M_2}{M_1} < 1 \\ 0.13 + 0.14 \left(\frac{M_2}{M_1}\right)^{0.65} & \frac{M_2}{M_1} > 1 \end{cases} \quad (1.22b)$$

et  $S_n^{TF}(E)$  est le pouvoir d'arrêt nucléaire calculé via le potentiel d'interaction de Thomas Fermi [2]. Cette relation du rendement de pulvérisation a été développée sur la base des équations linéaires de transport de Boltzmann [40] dans une surface plane avec l'hypothèse d'un ralentissement aléatoire des particules dans une cible amorphe, c.-à-d., les collisions entre atomes en déplacement sont indépendantes avec une probabilité nulle pour se rencontrer. Le processus de pulvérisation se décompose ainsi en trois étapes successives :

- Le ralentissement accompagné de la dissipation de l'énergie de l'ion incident dans le solide.
- Le développement des cascades linéaires de collisions atomiques.
- L'arrivée des atomes déplacés à la surface pour être pulvérisés hors du solide.

#### 1.5.1.2. Modèle non-linéaire de Sigmund-Claussen :

Ce modèle est basé sur le concept de pointes thermiques dans une géométrie cylindrique autour de la trajectoire de l'ion incident avec une dépendance non-linéaire du rendement de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire, c.-à-d., la densité de cascades de collisions est élevée (importante) dans le cas des ions les plus lourds [41], soit :

$$Y_{ther.} = 0.036 \left( \frac{\lambda_0 \alpha^2 F_D^2}{U_s^2} \right) g \left( \frac{U_s}{K_B T_0} \right), \quad (I.23a)$$

$$\text{avec } g \left( \frac{U_s}{K_B T_0} \right) = \begin{cases} 1 - \frac{3}{2} \left( \frac{U_s}{K_B T_0} \right)^2 & \frac{U_s}{K_B T_0} < 1 \\ 3 \exp \left( -\frac{U_s}{K_B T_0} \right) & \frac{U_s}{K_B T_0} > \sim 5' \end{cases} \quad (I.23b)$$

où  $\lambda_0 = 24$  est une constante sans dimension,  $k_B$  est la constante de Boltzmann,  $\alpha$  est le rapport des masses cible/projectile donnée par la relation (I.22b).  $T_0$  est la température initiale du cœur de la pointe thermique à un temps  $t = 0$ , soit :

$$K_B T_0 = \frac{F_D(E, x=0)}{2\pi N \langle \rho_0^2 \rangle}, \quad (I.23c)$$

où  $\langle \rho_0^2 \rangle$  est la largeur radiale initiale de la pointe thermique,  $N$  est la densité atomique de la cible et  $F_D$  la densité d'énergie nucléaire déposée en surface en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire de Thomas-Fermi:

$$F_D(E, x = 0) = \alpha N \times S_n(E). \quad (I.23d)$$

### I.5.1.3. Formules semi-empiriques correctives du rendement de pulvérisation :

Différents traitements semi-empiriques du rendement de pulvérisation ont été par la suite développés [46, 47, 48 et 49] sur la base du modèle linéaire de Sigmund et les compilations expérimentales et/ou numériques publiées dans la littérature. A partir de l'ensemble des formules semi-empiriques proposées, trois principales corrections ont été apportées, en tenant compte de la contribution du pouvoir d'arrêt électronique  $S_e(E)$  qui devient important aux énergies élevées et celle due à l'effet du seuil de pulvérisation ( $E_{th}$ ) qui réduit le rendement de pulvérisation à très basse énergie, et finalement, un facteur correctif spécifique à la cible ajustant les données expérimentales du rendement de pulvérisation. Nous donnons ici, à titre d'exemple, la formule semi-empirique récemment proposée par Wittmaack [49] :

$$Y(E) = k_n \alpha \left( 1 - \left( \frac{E_{th}}{E} \right)^{2/3} \right) \left( 1 - \left( \frac{E_{th}}{E} \right) \right)^2 \times S_n^{Krc}(\varepsilon), \quad (I.24)$$

où  $K_n$ ,  $\alpha$  et  $E_{th}$  sont des paramètres d'ajustement aux données expérimentales.

### I.5.1.4. Simulation numérique de la pulvérisation :

En plus des modèles analytiques avec des corrections semi-empiriques associées, il existe une autre manière de déterminer le rendement de pulvérisation via les codes de simulation numérique qui tiennent en compte principalement les conditions d'irradiation ionique et les propriétés physiques du matériau solide bombardé. Nous pouvons citer deux types de simulations : des codes basés sur l'approximation des collisions binaires combinée à la méthode de Monté Carlo et

ceux de la méthode de la dynamique moléculaire basée sur les équations de la mécanique classique avec une interaction à plusieurs particules. Parmi ces différents codes, nous décrivons ici le code SRIM largement utilisé dans littérature et ici tout au long de travail, soit pour calculer les pouvoirs d'arrêt (électronique & nucléaire) et les parcours des ions rapides dans les solides, ou pour le calcul des défauts atomiques induits en volume et le rendement de pulvérisation en surface. Comme évoqué précédemment, ce code est basé sur la méthode de Monté Carlo et l'approximation des collisions binaires avec le potentiel d'interaction ZBL [28], il permet de suivre le comportement des ions incidents et le développement des cascades de collisions atomiques, avec la possibilité de comptabiliser les atomes déplacés en volume et ceux qui s'approchent de la surface pour être pulvérisés avec une énergie supérieure à celle de l'énergie de surface  $U_s$  dans le solde. A titre d'exemple, un détail de simulation numérique est donné plus loin en Chapitre VI lors de la comparaison avec de nos données expérimentales obtenues du rendement de pulvérisation pour une cible mince  $\text{SiO}_2$  irradiée aux ions lourds ( $\text{Au}^+$ ) aux énergies du MeV.

### **1.5.2. Pulvérisation induite par collisions électroniques inélastiques :**

Comme évoqué précédemment, lorsqu'un ion lourd rapide pénètre dans la matière, il interagit avec les constituants des atomes cibles (noyaux et électrons) et perd une grande quantité de son énergie cinétique via des collisions nucléaires élastiques et électroniques inélastiques. Les chocs nucléaires prédominants aux faibles énergies ( $\sim\text{keV}$ ) peuvent conduire aux déplacements atomiques directs, tandis que les chocs électroniques prédominants aux énergies élevées ( $\sim\text{MeV}$ ) conduisent aux excitations et ionisations atomiques. Dans cette gamme d'énergie correspondante au régime de perte d'énergie électronique, bien que l'ion rapide interagisse beaucoup plus avec les électrons, des modifications structurelles au niveau atomique apparaissent le long de sa trajectoire. Ces modifications prennent une forme cylindrique autour de la trajectoire de l'ion incident et le nombre de déplacement créés dépend des conditions d'irradiation ionique (la masse, l'énergie cinétique, l'état de charge du projectile et la fluence ionique) ainsi que de la nature du matériau irradié (métal/isolant, ...) et ses propriétés thermo-physiques. Le phénomène de pulvérisation aux énergies du MeV est donc complexe et indirect, il implique divers mécanismes séquentiels pour convertir les excitations électroniques induites en mouvement des atomes. Ces mécanismes peuvent être compris dans le cadre de différents modèles proposés pour décrire le phénomène d'irradiation ionique aux énergies du MeV. Il s'agit principalement du modèle d'explosion coulombienne [41] valable au moins au début d'interaction et celui des pointes thermiques inélastiques [17] largement utilisé dans la littérature pour tenir compte de

tous les aspects et les processus régissant les effets d'irradiation des ions lourds dans la matière aux énergies du MeV correspondantes au régime du pouvoir d'arrêt électronique. Bien qu'il existe d'autres modèles précédemment proposés et peu utilisés comme ceux basés sur l'approche hydrodynamique en supposant que l'énergie cinétique des ions incidents se dépose dans le matériau irradié par un gradient d'onde de choc ou par impulsion de pression [50-52].

### 1.5.2.1. Modèle d'explosion coulombienne :

Ce modèle proposé par Fleischer [42] est valable au moins durant l'étape initiale de l'interaction. Cet auteur avait supposé que le déplacement des atomes cibles, après leur excitation et ionisation par l'ion incident, est principalement dû à leur répulsion coulombienne mutuelle. Plus précisément, l'ion incident perd graduellement son énergie cinétique en interagissant avec les électrons cibles qui peuvent quitter donc leurs sites atomiques en créant ainsi des atomes ionisés. Ces atomes ionisés se repoussent fortement et se déplacent de leurs positions initiales. Ces déplacements collectifs peuvent créer des défauts atomiques et des dommages en volume autour de la trajectoire de l'ion incident en induisant ainsi la pulvérisation atomique au voisinage de la surface cible. Ces processus ne se produisent que si le temps de neutralisation des charges soit suffisamment grand dépassant  $10^{-14}$  s. La force électrostatique  $\vec{F}$  exercée entre les deux charges de l'ion incident et de l'atome cible ionisé est donnée donc par la relation suivante :

$$F = n^2 e^2 / \varepsilon a_0^2, \quad (1.25a)$$

où  $nxe$  est la charge de l'ion incident,  $\varepsilon$  est la constante diélectrique du matériau irradié et  $a_0$  représente l'espace interatomique moyenne. Également, la force locale par unité de surface est donnée par :

$$\sigma = n^2 e^2 / (\varepsilon a_0^4). \quad (1.24b)$$

La condition pour que l'explosion coulombienne se produise est :

$$\frac{n^2 e^2}{(\varepsilon a_0^4)} > \frac{E}{10}, \quad (1.24c)$$

où  $E$  est le module de Young du matériau irradié. Cette condition peut être vérifiée avec la possibilité de formation de la trace latente dans le cas des matériaux de faible résistance mécanique, de faible constante diélectrique et de petits espacements interatomiques. Cependant, le modèle d'explosion coulombienne ne peut pas prédire les traces latentes observées expérimentalement dans les métaux [53,54].

**I.5.2.1. Modèles des pointes thermiques :**

Dans cette approche thermique, on suppose que les électrons excités transfèrent aux atomes cibles une grande partie de l'énergie ionique déposée par couplage électron-phonon, en conduisant ainsi à une augmentation transitoire de la température autour de la trajectoire de l'ion incident. Et si cette température dépasse une certaine limite correspondante à la chaleur de fusion ou de vaporisation propre au matériau irradié, différents types de dommages en volume ou en surface peuvent se produire. Notant que ce dernier modèle de pointes thermiques proposé avec différentes versions modifiées [19, 55, 56] a été souvent appliqué avec succès pour tenir compte des effets d'irradiation des ions lourds dans la matière, tels que la création des traces latentes et plus tard appliqué dans le cas de la pulvérisation électronique. Dans ce qui suit, nous détaillons deux versions différentes, celle analytique et l'autre inélastique.

**I.5.2.1. Le modèle analytique des pointes thermique (a-TS) :**

Selon le modèle analytique des pointes thermiques (a-TS) proposé par Szenes [56], les différents effets physiques induits par les ions sur le matériau irradié peuvent être déterminés par la température maximale, c.-à-d., l'évolution spatiotemporelle réelle de la température n'est pas prise en compte, mais uniquement une fonction Gaussienne est utilisée avec une solution analytique donnée sous la forme suivante :

$$\Delta T(r, t) = \gamma S_e(E) / \pi \rho C a^2(t) e^{-(r^2/a^2(t))}, \quad (1.26a)$$

où  $\rho$  et  $C$  sont, respectivement, la densité et la capacité calorifique du matériau irradié.  $\gamma S_e$  est la fraction du pouvoir d'arrêt électronique  $S_e(E)$  déposée dans la pointe thermique,

$$\text{et } a(t) = a(0) + 4Dt, \quad (1.26b)$$

où  $a(0)$  est la largeur initiale de la distribution radiale de la température exprimée par une fonction Gaussienne dans le sous-système atomique.  $Dt$  est la valeur au carré de la longueur de diffusion d'énergie en fonction du temps avec  $D$  est la diffusivité thermique du matériau irradié. Szenes avait supposé que la taille maximale de la trace latente initiale (à  $t = 0$ ) peut être exprimée par la relation suivante :

$$\Delta T(R_m, 0) = T_0 = T_m + T_{irr}, \quad (1.25c)$$

où  $T_m$  est la température de fusion et  $T_{irr}$  est la température d'irradiation habituellement de l'ordre de  $300 K^\circ$ . Les deux paramètres libres du modèle sont la fraction  $\gamma S_e$  de perte d'énergie électronique déposée dans les atomes et la largeur gaussienne initiale  $a(0)$ . Le premier paramètre de la fraction de perte d'énergie électronique est donné par la relation suivante :

$$\gamma = \frac{2.7\pi\rho CT_0 R^2}{S_e}, \quad (1.26d)$$

où R est le rayon de la trace donné par les deux équations suivantes en terme du seuil pouvoir d'arrêt électronique ( $S_{th}$ ) de création de la trace latente:

$$R = \begin{cases} a(0)\sqrt{\ln(S_e/S_e^{th})} & S_e < 2.7 S_e^{th} \\ a(0)\sqrt{\frac{S_e}{2.7S_e^{th}}} & S_e > 2.7 S_e^{th} \end{cases} \quad (1.26e)$$

avec  $S_e^{th} = \pi\rho CT_0 a^2(0)/\gamma$ .

Finalement, ce modèle analytique de pointes thermiques (a-TS) a été appliqué avec succès dans le cas de quelques matériaux isolants avec la condition de déduire la largeur Gaussienne initiale  $a(t=0)$  à partir du seuil du pouvoir d'arrêt électronique pour la création des traces latentes [57].

### 1.5.2.2. Le modèle des pointes thermiques inélastique (i-TS) :

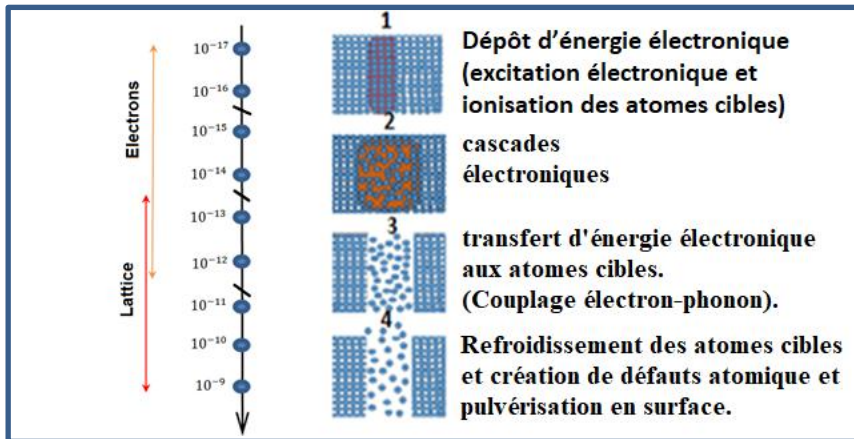
Le modèle de pointes thermiques inélastique (i-TS) a été développé en premier lieu pour les métaux [12, 58]. Par la suite, il a été appliqué aux matériaux isolants et semi-conducteurs [59] en se basant sur une hypothèse qui indique que les électrons excités ont des propriétés similaires aux électrons de conduction dans un métal, bien que cela soit vrai dans une certaine mesure.

Le système électronique dans ce modèle est excité thermiquement pour une courte période ( $\sim 10^{-16}$ s) dans le cas d'un matériau irradiée de façon non-uniforme par des ions lourds énergétiques [60, 61 et 62], c.-à-d., qu'il acquiert une distribution Maxwellienne des vitesses. En effet, le dépôt d'énergie par excitations électroniques est graduel et extrêmement intense le long de la trajectoire de l'ion incident. Ces excitations électroniques provoquent des déformations dans le matériau irradié qui passe par les quatre étapes suivantes d'irradiation (voir aussi la figure I-8) :

- i. Des excitations électroniques et ionisation des atomes cibles sont produites autour de la trajectoire de l'ion durant un laps de temps inférieur à  $10^{-16}$  s ;
- ii. Puis des cascades électroniques sont créées, suivies de la thermalisation du sous-système électronique pour une période de temps de l'ordre de  $\sim 10^{-14}$  s ;
- iii. Un transfert thermique se produit entre les deux sous-systèmes électronique et atomique durant la période de temps  $10^{-13}$ - $10^{-12}$  s et qui dépend du couplage des deux sous-systèmes ;
- iv. Refroidissement rapide des atomes et création de défauts suivi de la pulvérisation en surface durant la période allant de  $10^{-11}$  s jusqu'à  $10^{-9}$  s.

Il est à observer parfois que la région d'irradiation n'est pas parfaitement cylindrique mais intermittente. C.-à-d., la modification le long de la trajectoire est de forme cylindrique mais avec un rayon changeant. Ceci peut être expliqué vraisemblablement par la variation de la charge du

projectile autour de la valeur d'équilibre au cours de son cheminement dans la cible solide (voir plus de détail dans le Chapitre IV relatif à la présentation des résultats expérimentaux).



**Figure I-8:** Schéma descriptif des étapes chronologiques d'irradiation d'un matériau solide par un ion lourd aux énergies du MeV selon le modèle des pintes thermiques.

Le modèle i-TS est basé sur l'approche à deux températures pour les deux sous-systèmes électronique et atomique, dans lequel l'électron a une température bien définie mais en situation de non-équilibre et la température du réseau est différente de la température électronique. L'évolution de ces deux températures est décrite par la diffusion de chaleur selon le formalisme de Boltzmann :

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla K_e \nabla T_e - \mathcal{G}(T_e - T_a), \tag{I.26a}$$

$$C_a \frac{\partial T_a}{\partial t} = \nabla K_a \nabla T_a + \mathcal{G}(T_e - T_a), \tag{I.26b}$$

où  $T$ ,  $C$  et  $K$  sont, respectivement, les températures, les capacités calorifiques et les conductivités thermiques pour les électrons (indice  $e$ ) et les atomes (indice  $a$ ). L'énergie thermique des deux sous-systèmes diffusée dans le temps et en espace peut être évaluée en fonction de la différence entre les températures électronique et atomique multipliée par la constante de couplage électron-phonon  $\mathcal{G}$ .

Ces deux équations seront, par la suite, résolues numériquement dans une géométrie cylindrique pour calculer l'énergie transférée vers les deux sous-systèmes électronique et atomique, en considérant que le dépôt d'énergie est constant tout au long de la trajectoire de l'ion incident. Les conditions initiales de ce calcul sont : la température du matériau cible irradié  $T_0$  (ou bien l'énergie interne équivalente  $E_i(T_0)$ ) et le volume dans lequel les calculs sont effectués. Selon ces conditions, l'énergie interne est calculée par une intégration de la chaleur spécifique de  $0 K$  à  $T_0$ . Aussi, la distance qui définit le volume dans lequel le calcul est effectué doit être suffisamment grande pour être sûr que le gradient de la température est négligeable loin du centre de la



trajectoire (généralement le rayon de cylindre est de l'ordre de 100 à 200 nm). Le modèle i-TS a été aussi lié à des simulations atomistiques qui donnent des informations détaillées sur les déplacements atomiques créés dans le matériau irradié. On suppose que la relaxation du sous-système électronique excité se fait via des collisions électron-électron et électron-atome qui sont caractérisées par la force de couplage électron-phonon. Ces processus de couplage sont des interactions efficaces entre l'électron et l'ion incident, et qui sont principalement responsables du transfert d'énergie. En terme plus claire, le taux d'échange énergétique est proportionnel à la constante de couplage électron-phonon  $\mathcal{G}$ . Ce dernier paramètre de couplage e-p dépend fortement de la température électronique et de la nature et la structure locale du matériau irradié. Il est à noter que les deux sources de chaleur (électronique :  $A_e(\vec{r}, t)$  et nucléaire :  $B_n(\vec{r}, t)$ ) doivent être introduites dans les deux équations (I.26a) et (I.26b), cependant, elles sont réécrites sous la nouvelle forme suivante :

$$\rho C_e \frac{dT}{dt} = K_e \nabla T_e - \mathcal{G}(T_e - T_a) + A_e(\vec{r}, t), \quad (I.27a)$$

$$\rho C_a \frac{dT}{dt} = K_a \nabla T_a + \mathcal{G}(T_e - T_a) + B_n(\vec{r}, t). \quad (I.27b)$$

Dans le cas d'un ion rapide aux énergies du MeV plus élevées ( $S_n/S_e < 10^{-2}$ ), la composante nucléaire  $B_n$  est négligée et on traite uniquement celle de la perte d'énergie électronique  $A_e$ . Plus de détail sur les différentes quantités physiques intervenant dans ce modèle, sera donné dans le Chapitre II qui traite numériquement ce modèle de pointes thermiques inélastique.

Dans ce modèle, l'énergie électronique concentrée dans le centre se transfère aux noyaux cibles par des collisions aléatoires faisant fondre une région cylindrique autour de la trajectoire du projectile et le refroidissement rapide subséquent permet alors une amorphisation cylindrique ou une recristallisation partielle. Le modèle de pointes thermiques explique ainsi la dépendance des déformations sur la température de la cible. Plus celle-ci est chaude, moins elle nécessite d'énergie pour fondre en se déformant, mais si la cible est trop chaude le refroidissement suivant la fusion est ralenti en permettant une recristallisation et donc des déformations disparaissent.

Ce modèle a été appliqué donc avec succès dans le cas de la formation des traces latentes observées expérimentalement pour la première fois via la microscopie électronique à transmission (MET dans du mica) [63, 64]. D'une façon générale, les ions lourds énergétiques suivent une trajectoire rectiligne dans la cible et la sensibilité au dépôt d'énergie électronique  $S_e$  peut être traduite par la création des zones d'endommagement (traces latentes) linéaires localisées au voisinage immédiat de la trajectoire de l'ion incident [65]. La création des traces est caractérisée par un pouvoir d'arrêt électronique de seuil ( $S_e^{th}$ ) qui varie d'un matériau à un autre, et selon sa

valeur, la structure de la trace créée évolue en passant par une structure discontinue jusqu'à une structure continue.

En utilisant ce modèle de pointes thermiques, le nombre moyen de défauts créés en volume par unité de parcours peut être calculé en utilisant la relation suivante :

$$N_d(\text{at./}\mu\text{m}) = \int_0^\infty dt \int_0^\infty v(T_a(r, t)) 2\pi r dr, \quad (1.28a)$$

$$\text{avec } v(T_a(r, t)) = n_a \frac{k_B T_D}{h} \exp\left(\frac{-U_a}{k_B T_a(r, t)}\right), \quad (1.28b)$$

étant la densité d'atomes évaporés selon la distribution de Maxwell-Boltzmann,  $n_a$  est la densité atomique du solide,  $T_D$  et  $U_a$  est la température de Debye et l'énergie d'activation spécifiques au matériau irradié.  $k_B = 8.6173 \times 10^{-5}$  eV/K° est la constante de Boltzmann.

D'autre part, le modèle i-TS a été appliqué récemment aussi avec succès pour décrire le phénomène de pulvérisation en surface aux énergies du MeV. Le rendement de pulvérisation en surface peut être obtenu donc via un calcul d'intégrale double (espace-temps) via la relation suivante :

$$Y(\text{at./ion}) = \int_0^\infty dt \int_0^\infty \Phi(T_a(r, t)) 2\pi r dr, \quad (1.29a)$$

où  $\Phi$  est le flux d'évaporation et aussi donné selon la distribution de Maxwell-Boltzmann :

$$\Phi(T_a(r, t)) = n_a \sqrt{\frac{k_B T_a(r, t)}{2\pi M_a}} \exp\left(\frac{-U_s}{k_B T_a(r, t)}\right), \quad (1.29b)$$

en termes de la densité atomique de la cible ( $n_a$ ), sa masse atomique ( $M_a$ ) et l'énergie de surface ( $U_s$ ) prise comme l'énergie de sublimation par molécule évaporée.

## CHAPITRE II :

### MODELE DES POINTES THERMIQUES INELASTIQUES : CALCUL & TRAITEMENT NUMERIQUE

#### II.1. Formalisme théorique :

Nous allons décrire, au cours de ce chapitre, les différentes méthodes numériques et les formulations semi-empiriques pour divers paramètres physiques intervenant dans le modèle des pointes thermiques inélastiques (i-TS) [44, 45], et ceci avec un principal objectif de calculer le rendement de pulvérisation induit en surface sous l'impact des ions lourds énergétiques.

Comme évoqué précédemment, ce modèle décrit comment l'énergie de l'ion incident est déposée sur les électrons cibles et comment elle peut être transférée aux atomes du matériau bombardé. Les mécanismes d'interaction ion-solide sont décrits dans une géométrie cylindrique à deux dimensions (espace  $r$  et temps  $t$ ), en résolvant numériquement deux équations différentielles non-linéaires de diffusion de la chaleur (loi de Fick) [12, 15, 17 et 44] :

$$n_e C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r K_e \frac{\partial T_e}{\partial r} \right) - \mathcal{G}(T_e - T_a) + A_e(r, t), \quad (\text{II.1a})$$

$$n_a C_a \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r K_a \frac{\partial T_a}{\partial r} \right) - \mathcal{G}(T_e - T_a) + B_n(r, t), \quad (\text{II.1b})$$

où les quantités  $(T_e, T_a)$ ,  $(C_e, C_a)$  et  $(K_e, K_a)$  désignent, respectivement, les températures, les chaleurs spécifiques et les conductivités thermiques des sous-systèmes électroniques (indice e) et atomiques (indice a). Le transfert de chaleur entre les deux sous-systèmes électronique et atomique est décrit dans ces deux équations par un terme d'échange commun  $\mathcal{G}(T_e - T_a)$  qui représente la constante de couplage électron-phonon (e-p). Cette constante de couplage est liée à la fois au temps de relaxation électron-phonon  $\tau_e$  et au libre parcours moyen électron-phonon  $\lambda$  par la relation suivante [42, 44] :

$$\mathcal{G} = D_e C_e / \lambda^2 = C_e / \tau_e, \quad (\text{II.2})$$

où  $D_e = K_e / C_e$  est la diffusivité électronique en terme du rapport de la conductivité thermique électronique sur la capacité calorifique électronique.

Ces deux équations sont caractérisées par deux sources de dépôt d'énergie du projectile (électronique et nucléaire), respectivement, dans le sous-système électronique  $[A_e(r, t)]$  et atomique  $[B_n(r, t)]$ . Une description détaillée de ces deux sources de dépôts d'énergie sera donnée dans le prochain paragraphe.

Ces deux équations non-linéaires décrivent ainsi la température des deux sous-systèmes électronique et atomique en fonction du temps (t) et de la distance radiale (r) autour de la trajectoire de l'ion incident. Elles sont difficiles à résoudre analytiquement. Cependant, pour trouver une solution numérique approchée, nous allons passer d'un problème exact continu régi par des équations aux dérivées partielles (EDP) à un problème approché discret. Nous avons ainsi choisi une méthode numérique plus simple basée sur les différences finies adaptée à la géométrie cylindrique utilisée dans le modèle i-TS. Cette méthode numérique comparée à d'autres méthodes existantes dans la littérature, comme les éléments finis et les volumes finis, a l'avantage d'être plus simple en discrétisation avec un faible temps de calcul [66, 67 et 68]. Plus précisément, la méthode des différences finies consiste à approximer les dérivées des équations de la Physique au moyen des développements en séries de Taylor. Elle est due aux travaux de plusieurs mathématiciens du 18<sup>ème</sup> siècle, notamment Taylor et Euler [68].

## **II.2. Densités de distribution d'énergie radiale :**

### **II.2.1. Densité d'énergie électronique radiale $A_e(r, t)$ :**

Lors de leur passage à travers la matière, les ions lourds énergétiques traversent le milieu en ligne droite où la rétrodiffusion des ions est négligée. Les ions incidents sont capables d'ioniser ou exciter d'une façon directe le milieu traversé constitué d'atomes ou de molécules autour de la trajectoire de l'ion incident. L'ensemble de ces excitations électroniques sont à l'origine de la perte d'énergie électronique dans le matériau solide et de la création d'une zone instable tout au long du parcours de l'ion incident, qui conduisent à différents effets d'irradiation induits autour d'une trace latente. Au milieu de cette trace latente qui peut être étudiée dans une géométrie cylindrique à symétrie axiale, le dépôt d'énergie électronique est maximal et commence à

décroître progressivement au fur et à mesure qu'on s'éloigne du centre de la trace latente. L'ion incident va ainsi neutraliser les électrons des atomes cibles, qui peuvent avoir des énergies suffisantes et parcourir des distances importantes pour ioniser davantage d'atomes cibles. Ces électrons sont appelés électrons delta ( $\delta$ ) ou rayons delta ( $\delta$  rays, en anglais). Par la suite, l'énergie de l'ion primaire diminue progressivement et l'énergie maximale des rayons  $\delta$  est ainsi réduite, ce qui limite la distance radiale de la trace créée à la fin du parcours de l'ion incident dans la cible.

La densité d'énergie électronique déposée possède donc une distribution spatio-temporelle  $A_e(r, t)$  donnée par la relation suivante :

$$A_e(r, t) = A_0 \left( \frac{-dE}{dx} \right)_e \exp \left( -\frac{(t-t_0)^2}{2t_0^2} \right) \times F(r), \quad (II.3)$$

où le premier terme temporel est décrit par une fonction Gaussienne, tandis que le deuxième terme spatial est de forme radiale  $F(r)$ .  $t_0$  est le temps nécessaire aux électrons pour atteindre la température d'équilibre, dont la valeur moyenne est estimée de l'ordre de  $1 \times 10^{-15}$  s.  $A_0$  est une constante de normalisation choisie de telle sorte que l'intégration de la densité d'énergie  $A_e(r, t)$  sur la distance radiale et du temps donne la perte d'énergie électronique moyenne par unité de parcours  $\left( \frac{-dE}{dx} \right)_e$  dans le matériau solide irradié, soit :

$$\int_0^\infty dt \int_0^\infty 2\pi r A_e(r, t) dr = \left( \frac{dE}{dx} \right)_e. \quad (II.4)$$

Concernant la fonction de distribution radiale,  $F(r)$ , différentes expressions analytiques et semi-empiriques ont été proposées sur la base de données expérimentales et de données numériques générées via des calculs Monté Carlo [17, 69 et 70]. Dans toutes ces expressions, on suppose une géométrie cylindrique symétrique et la dose moyenne est calculée sur toute l'enveloppe cylindrique autour de la trajectoire de l'ion incident. La distribution de dose est maximale au milieu de la trace latente, elle décroît rapidement en  $1/r^2$  lorsqu'on s'éloigne du centre, puis elle atteint sa valeur minimale correspondant au parcours maximal des électrons- $\delta$ . Il est à noter que la distribution radiale  $F(r)$  est un paramètre central dans les modèles qui décrivent la structure des traces latentes induites sous l'impact d'ions lourds.

**II.2.1.1. Modèle de Katz et al. de la densité d'énergie radiale :**

La première formulation théorique a été proposée par Katz et al. [71], en considérant un certain nombre d'hypothèses simplificatrices, notamment, (i) celle qui suppose que les électrons  $\delta$  sont produits avec une incidence normale perpendiculairement au chemin de l'ion et (ii) l'utilisation de la section efficace de diffusion de Rutherford, en tenant compte uniquement des forces de répulsion et d'attraction électrostatiques de ces électrons avec les atomes cibles. Ainsi, le nombre d'électrons  $\delta$  par unité de parcours, produits par un ion incident de charge effective  $Z_1^*e$  et possédant une énergie dans l'intervalle  $(w, w + dw)$ , est donné par la relation suivante :

$$\frac{dn}{dw} = \frac{4\pi N_e Z_1^{*2} e^4}{m_e c^2 \beta^2} \frac{1}{(w+I)^2}, \quad (II.5a)$$

où  $m_e c^2$  et  $e$  sont la masse au repos et la charge élémentaire de l'électron  $\delta$ .  $N_e$  est la densité des électrons  $\delta$  dans le matériau solide irradié,  $I$  est le potentiel d'ionisation moyen des atomes cibles arbitrairement fixé à  $\sim 10$  eV,  $\beta = v/c$  est le rapport des vitesses de l'ion incident par rapport à celle de la lumière. La densité d'énergie électronique radiale peut être calculée à partir du flux d'énergie des électrons  $\delta$  dans une région cylindrique autour de la trajectoire de l'ion incident, soit :

$$F(r) = \frac{1}{2\pi r dr \rho_m} \int_0^{W_{max}} \left( -\frac{dw_r}{dr} \right) dr \frac{dn}{dw} dw, \quad (II.5b)$$

où  $W_{max} = \frac{2m_e c^2 \beta^2}{1-\beta^2}, \quad (II.5c)$

et  $\left( -\frac{dw_r}{dr} \right) = \frac{w}{ar} \left( 1 - \frac{r}{R} \right)^{\frac{1}{\alpha}-1}, \quad (II.5d)$

sont, respectivement, l'énergie maximale en choc frontal et la perte d'énergie moyenne par unité de parcours des électrons  $\delta$  dans le matériau irradié. Dans les deux relations (II.5b) et (II.5d),  $\rho_m$  et  $R$  sont, respectivement, la densité volumique et le parcours des électrons  $\delta$  dans le matériau irradié.  $R$  est donnée par :

$$R = kw^\alpha, \quad (II.5e)$$

où  $k = 6 \times 10^{-6}$  est une constante correspondante à un parcours  $R$  évalué en unité de  $g/cm^2$  et l'énergie  $w$  en unité du keV.  $\alpha$  étant une constante d'ajustement aux données expérimentales des électrons dans l'Aluminium [71] :

$$\alpha = \begin{cases} 1.079 & w < 1 \\ 1.667 & w > 1 \end{cases} \quad (II.5f)$$

En intégrant l'éq. (II.5b) sur toute la gamme d'énergie atteinte par les électrons  $\delta$  produits, une formulation analytique de la distribution radiale de dose peut être donnée sous la forme suivante :

$$F(r) = \frac{N_e Z_1^2 e^4}{m_e c^2 \alpha \beta^2} \frac{1}{r(r+R_{min})} \left(1 - \frac{r+R_{min}}{R_{max}+R_{min}}\right)^{1/\alpha}, \quad (II.6a)$$

où  $R_{min}$  et  $R_{max}$  sont, respectivement, les parcours minimal et maximal des électrons  $\delta$  à des énergies  $w = I$  et  $w = W_{max}$  (c.-à-d.,  $R_{min} = kI^\alpha$  et  $R_{max} = kW_{max}^\alpha$ ). Dans la relation (II.6a), la charge effective de l'ion incident est calculée en utilisant l'expression de Barkas [33] :

$$Z_1^* = Z_1 (1 - \exp(-125\beta/Z_1^{2/3})). \quad (II.6b)$$

### II.2.1.2. Corrections semi-empiriques sur le modèle de Katz :

Par la suite, cette formule analytique (éq. II.6a) a été raffinée encore par deux groupes d'auteurs (Waligorsky et al. [69], Fageeha et al. [70]), en se basant sur des mesures expérimentales et des calculs numériques de type Monté Carlo appliqués dans le cas des protons incidents sur une cible d'eau liquide ( $H_2O$ ) et une cible solide de silicium, respectivement. La forme générale des deux corrections apportées à cette formule analytique est donnée par la relation suivante :

$$F_{cor.}(r) = F(r) \times [1 + K(r)]. \quad (II.7a)$$

Notant que ces deux corrections sont significatives dans la région de faibles distances radiales de 0.1 jusqu'à 10 nm. L'expression de  $K(r)$  dans le cas de Waligorsky et al. [69] est écrite sous la forme suivante :

$$K_W(r) = \begin{cases} 0 & r < 0.1 \text{ nm} \\ A_W \left(\frac{r-B_W}{C_W}\right) \times \exp\left(-\frac{r-B_W}{C_W}\right) & r > 0.1 \text{ nm} \end{cases}, \quad (II.7b)$$

avec  $B_W = 0. \text{ nm}$ ,  $C_W = 1.5 \text{ nm} + 5 \text{ nm} \times \beta$ ,

$$\text{et } A_W = \begin{cases} 8\beta^{1/3} & \text{si } \beta < 0.03 \\ 19\beta^{1/3} & \text{si } \beta > 0.03 \end{cases}. \quad (II.7c)$$

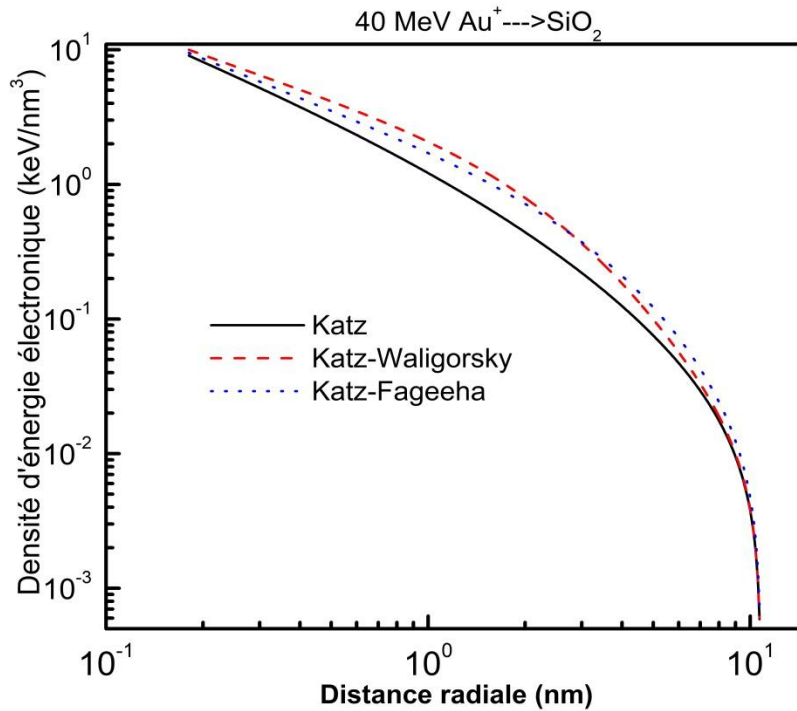
Tandis que Fageeha et al. [51] ont proposé une autre forme différente de  $K(r)$  :

$$K_F(r) = A_F \beta^{B_F} (r - 0.1) \times \exp\left(-\frac{r}{C_F}\right), \quad (II.8a)$$

où  $r$  est unité de  $\text{nm}$ ,  $B_F = 0.215$ ,  $C_F = 3.127 - 0.434\beta$ ,

$$\text{et } A_F = \begin{cases} 0 & \beta < 0.081 \\ 112\beta - 0.899 & 0.081 < \beta < 0.091. \\ 0.674\beta - 9.21 & \beta > 0.091 \end{cases}. \quad (II.8b)$$

Sur la figure (II-1) est présentée la variation de la densité d'énergie électronique radiale en fonction de la distance radiale  $r$  pour les trois différentes formules de  $F(r)$  corrigées (Katz [71], Katz-Waligorsky [69] et Katz-Fageeha [70]).



**Figure II-1 :** Variation de la densité d'énergie électronique radiale  $S_e \times F(r)$  en fonction de la distance radiale.

Nous observons sur cette figure que la fonction  $F(r)$  est décroissante en fonction de  $r$  en suivant la loi en  $1/r^2$ . De plus, les deux corrections de Waligorsky et de Fageeha se situent dans l'intervalle allant de 0.2 jusqu'à 10 nm pour la valeur d'énergie de 40 MeV des ions Au incidents.

Par la suite, et à partir de ce dernier modèle analytique, d'autres formulations ont été proposées avec différentes formes de la fonction  $F(r)$ , elles sont principalement proportionnelles à  $1/r^2$  [71, 72]. Citons par exemple, celle de Chatterjee et Schaefer [24, 25], Butts et Katz [41, 19, 47 et 71], Kiefer et Straaten [73] ainsi que celui de Geiß et al. [31]. A titre d'exemple, le modèle de Chatterjee et Schaefer [44, 45] suppose simplement que la distribution radiale est proportionnelle à  $1/r^2$ . Alors que les autres modèles [15, 69 et 70] utilisent la section efficace différentielle de Rutherford pour décrire le nombre d'électrons secondaires ( $\delta$ ) produits par l'ion incident. Mais cette dernière formule de Rutherford ne considère que l'énergie d'ionisation (c.-à-d. en



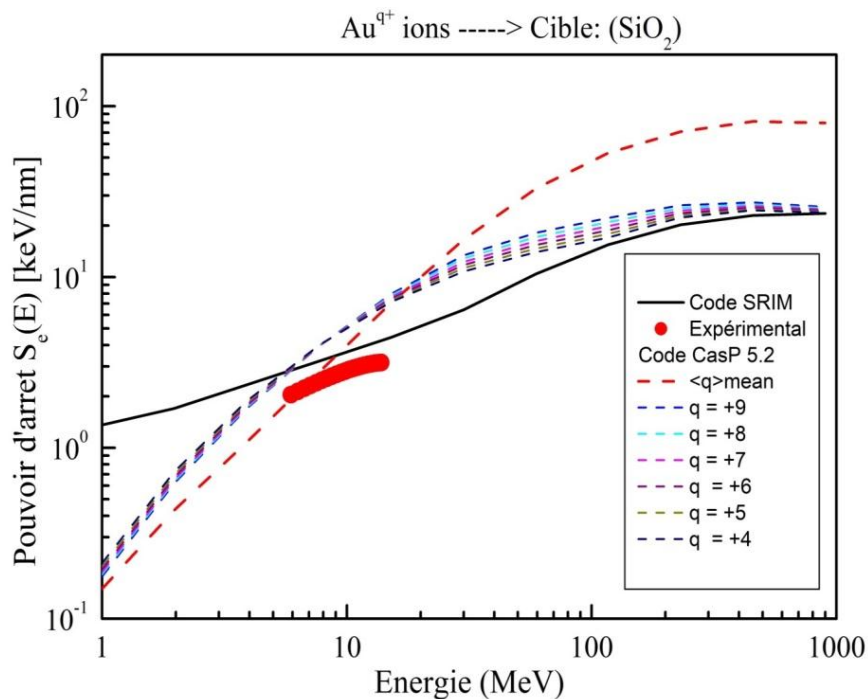
négligeant l'énergie d'excitation). Ce qui fait que l'estimation de l'énergie totale transférée le long du parcours conduit à des valeurs incorrectes. Notant que cette imprécision dans le calcul de la densité d'énergie électronique radiale a été améliorée dans le modèle analytique de Katz et al. [17], en introduisant des facteurs correctifs de Waligorsky et Fageeha [69, 70]. Par la suite, d'autres modèles semi-empiriques, notamment celui d'Akkermann et al. [31], ont été proposés sur la base de calculs Monté Carlo des distributions radiales de la densité d'énergie électronique. Ainsi, il est important de mentionner que ce dernier modèle a été appliqué uniquement dans le cas de quelques matériaux d'éléments simples (ex., le silicium, l'aluminium) et ce malgré qu'ils s'accordent avec les données numériques et expérimentales disponibles dans la littérature.

Finalement, la fonction radiale proposée par Fageeha et al. a été spécialement incluse dans ce travail pour corriger le modèle analytique de Katz. Ceci a permis d'améliorer l'ajustement aux données expérimentales et numériques de la densité de distribution d'énergie électronique pour des petites distances radiales comprises entre 0.1 et 10 nm [27, 28, 74 et 85].

### **II.2.1.3. Calcul du pouvoir d'arrêt électronique via le Code CasP :**

Dans la relation (II.3) définissant la densité d'énergie électronique  $A_e(r, t)$ , le pouvoir d'arrêt  $S_e(E)$  peut être calculé en utilisant le code de simulation SRIM [28] pour des ions lourds incidents avec des états de charges en équilibre. Cependant, pour des ions lourds incidents avec états de charges sélectionnés, comme par exemple, dans le cas de ceux utilisés dans le présent travail ( $Au^{q+}$ ,  $q = +4, +6, +7$  et  $+9$ ), le code de simulation CasP [79] est mieux adapté pour le calcul du pouvoir d'arrêt électronique  $S_e(E)$  à différents états de charges hors équilibre. En effet, différents travaux antérieurs récemment publiés [75-76, 78] ont souligné que le code CasP peut être appliqué avec succès pour prédire la dépendance de l'état de charge des sections efficaces d'arrêt pour les ions lourds rapides incidents sur des éléments cibles légers, comme dans le cas présent (c.-à-d., des ions  $Au^{q+}$  incidents sur une cible  $SiO_2$ ). Ce code peut générer des valeurs numériques du pouvoir d'arrêt électronique en tenant compte de la contribution due aux différents états de charge aux ralentissement, en impliquant ainsi l'excitation et l'ionisation des atomes cibles et les échanges de charges ioniques résultantes de la perte et de la

capture d'électrons dans le matériau cible irradié [79]. Plus précisément, un calcul numérique du pouvoir d'arrêt électronique via ce code peut être effectué pour chaque paramètre d'impact individuel pour une collision, en utilisant deux approximations : (i) l'approximation de convolution perturbative (PCA) qui est basée sur la théorie de perturbation en premier ordre, et (ii) celle unitaire (UCA) obtenue par l'utilisation du terme théorique non-perturbative de Block [79]. la figure (II-2) représente la variation du pouvoir d'arrêt électronique des ions  $Au^{q+}$  dans une cible  $SiO_2$  en fonction de l'énergie incidente avec comparaison des données expérimentales existantes dans la littérature [77]. Nous observons sur cette figure que le code CasP avec la charge d'équilibre  $\langle q \rangle$  utilisée s'accord mieux avec l'expérience par rapport à celui de SRIM dans la gamme d'énergie (6-9) MeV, tandis qu'aux énergies plus élevées, l'écart CasP/SRIM est minimal dans le cas de l'utilisation des états de charges sélectionnés ( $q = +4$  à  $+9$ ). Notons l'absence dans la littérature des données expérimentales du pouvoir d'arrêt dans cette dernière gamme d'énergies élevées.



**Figure II-2 :** Comparaison des données expérimentales du pouvoir d'arrêt électronique [77] aux valeurs numériques générées par les deux codes SRIM [28] et CasP5.2 [79]

### II.2.2. Densité d'énergie nucléaire radiale $B_n(r, t)$ :

La contribution au processus d'interaction ion-matériau solide due aux collisions élastiques (non-linéaires) lorsque le projectile et/ou les atomes cibles sont lourds peut être également prise en compte. Et ceci à travers

l'incorporation de la densité d'énergie nucléaire dans la deuxième équation (II.1b) de diffusion de chaleur reliée au sous-système atomique [17, 74]. Cette source supplémentaire d'énergie introduite contient deux composantes radiale et temporelle. Elle est définie comme suit :

$$B_n(r, t) = B_0 \left( -\frac{dE}{dx} \right)_n \exp\left(-\frac{t}{\tau_a}\right) \times \frac{1}{r} \exp\left(-\frac{r}{R_a}\right), \quad (\text{II-9a})$$

où  $B_0$  est une constante de normalisation liée à l'intégration de la fonction  $B_n(r, t)$  dans l'espace et le temps en donnant exactement l'énergie nucléaire déposée  $\left(\frac{dE}{dx}\right)_n$  dans le matériau cible bombardé.  $\tau_a \sim 10^{-13} \text{s}$  est le temps moyen de dépôt d'énergie nucléaire équivalent au temps qu'il faut aux atomes de recul primaires pour s'immobiliser à la fin de leur parcours dans la zone autour de la trajectoire de l'ion incident, soit :

$$t_a = \int_0^E \frac{dE}{vNS_n(E)} \approx \frac{R(E)}{\frac{1}{2}v}, \quad (\text{II.9b})$$

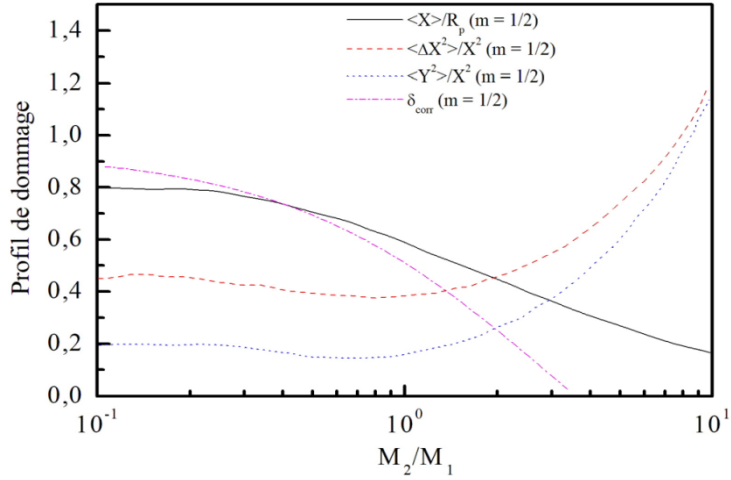
où  $R$  est le parcours de l'ion incident,  $v$  sa vitesse et  $S_n(E)$  est le pouvoir d'arrêt nucléaire dans le matériau bombardé et qui peut être calculé via le code SRIM [28].

### **II.2.2.1. Largeur à-mi-hauteur initiale de la densité d'énergie nucléaire déposée :**

Dans la partie radiale de la fonction  $B_n(r, t)$ , le rayon de la pointe  $R_a$  désigne la largeur à-mi-hauteur de la densité d'énergie nucléaire qui correspond au parcours moyen des atomes de recul diffusés formant une cascade de collisions élastiques [23, 80]. Des valeurs réelles du paramètre  $R_a$  peuvent être recherchées à partir des mesures expérimentales ou des tabulations numériques du rayon de la zone des cascades de collisions atomiques (pointes thermiques élastiques). Dans le présent travail, nous avons ainsi combiné le modèle de pointes thermiques élastiques de Sigmund-Claussen [41] aux calculs Monté Carlo de Winterbon Sigmund et Sanders (WWS) [80] sur la distribution spatiale de la densité d'énergie nucléaire déposée. Ces calculs sont basés sur l'approximation de la loi de puissance de Lindhard et du potentiel d'interaction de Thomas-Fermi de type  $1/r^m$  ( $m$  étant un paramètre d'écrantage de l'ion incident [23]), en négligeant la composante électronique du pouvoir d'arrêt.

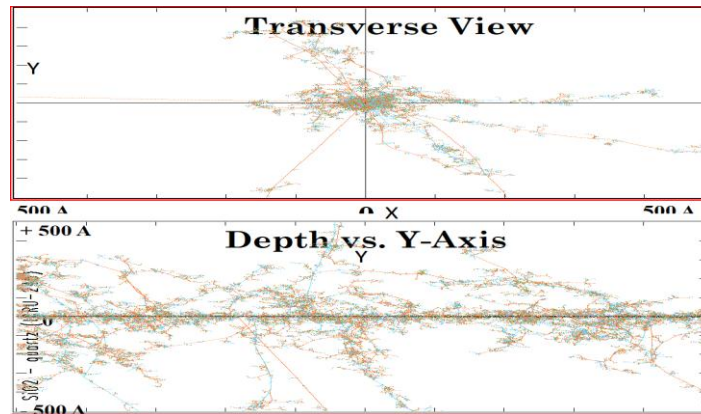
Sur la figure (II-3) sont présentées différentes courbes de profils de dommages tracées en fonction du rapport des masses cible/projectile,  $M_2/M_1$ . Nous pouvons ainsi identifier les profils moyens de dommage selon l'axe X et Y perpendiculaires à la trajectoire de l'ion incident (voir

également Figure II-4) et leurs straggling de dommages associés avec un facteur correctif de volume des dommages par rapport à celui d'une cascade de collisions individuelle  $\delta_{corr}$ .



**Figure II-3 :** Variation en fonction du rapport des masses cible/projectile  $M_2/M_1$  des profils de dommages selon le calcul Monté Carlo de Winterbon et al. [80].

Sur la figure (II-4) suivante est présenté, à titre d'exemple, le résultat d'une simulation via le code SRIM [28] pour une cible  $SiO_2$  irradiée par des ions  $Au^+$  d'énergie de 40 MeV où nous observons clairement les trajectoires et les dommages selon les trois axes X, Y et Z. Notons que les différents profils de dommages ( $\langle X \rangle$ ,  $\langle Y^2 \rangle$ ,  $\langle \Delta X^2 \rangle$ ) sont calculés pour une valeur du paramètre d'écrantage  $m$  ( $m = \frac{1}{2}$ ) correspondante aux énergies réduites,  $0.2 \leq \epsilon \leq 2$ .



**Figure II-4:** Trajectoires des ions  $Au^+$  d'énergie de 40 MeV et les dommages créés dans une cible  $SiO_2$  selon les axes X,Y et Z obtenus via le code de simulation SRIM.

La densité d'énergie de cascades de collisions déposée en volume est donnée par la relation suivante :

$$E_n = (0.68)^2 \times \frac{N_{at} \cdot S_n(E)}{A_{cas}}, \quad (II.10a)$$

avec  $A_{cas} = \delta_{cor.}^2 \times \pi \langle Y^2 \rangle$ , (II.10b)

est définie comme la surface de la zone des cascades et  $\langle Y^2 \rangle$  est le straggling de dommages selon l'axe Y. le facteur  $\delta_{cor}$  est un rapport correctif du volume individuel sur le volume moyen des cascades de collisions [23].

La densité d'énergie  $E_n$  peut être également réécrite sous la nouvelle forme suivante :

$$E_n = \frac{3}{2} N_{at} k_B T_0, \quad (II.10c)$$

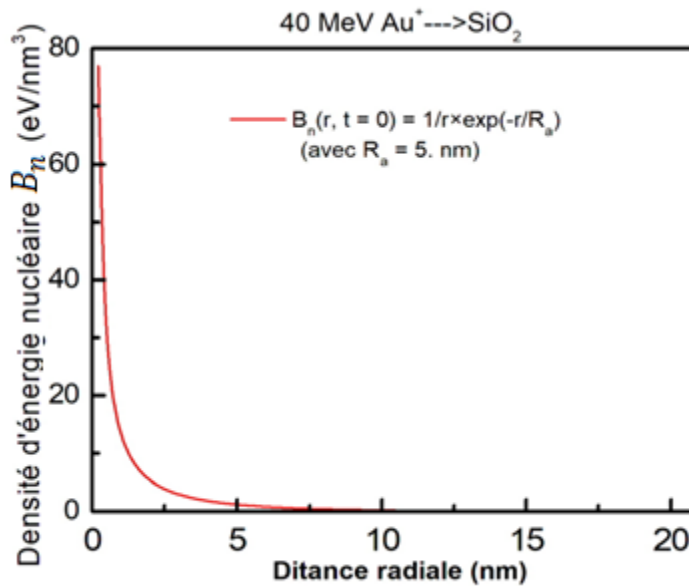
où  $k_B = 8.617 \times 10^{-5} eV$  est la constante de Boltzmann,  $T_0$  est la température macroscopique initiale atteinte sur la surface de la cible à  $t = 0$ , elle est reliée à la largeur radiale initiale  $\langle \rho_0^2 \rangle$  de la pointe thermique (voir éq. (I.23c) du chapitre I) :

$$\langle \rho_0^2 \rangle = \frac{F_D(E, z=0)}{2\pi N_{at} k_B T_0}, \quad (II.10d)$$

où  $N_a$  est la densité atomique de la cible et  $F_D$  la densité d'énergie nucléaire déposée en surface donnée par la relation (I.23d) en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire de Thomas-Fermi :

$$F_D(E, z = 0) = \alpha N_{at.} \times S_n(E), \quad (II-10e)$$

où  $\alpha$  est un facteur correctif en surface qui dépend du rapport des masses Cible/Projectile ( $M_2/M_1$ ) et donné par la relation (I.18b).



**Figure II-5 :** Variation en fonction de la distance radiale de la densité d'énergie nucléaire déposée  $B_n(r, t = 0)$  pour des ions lourds ( $Au^+$ ) incidents sur une cible ( $SiO_2$ ) à une énergie de 40 MeV. La valeur de la largeur à-mi-hauteur initiale  $R_a$  est estimée à  $\sim 5$  nm.

En tenant compte de ces différents paramètres, nous avons calculé la densité d'énergie nucléaire déposée en fonction de la distance radiale. Sur la figure (II-5) est présentée la variation de  $B_n(r, t=0)$  en fonction de la distance radiale  $r$  pour des ions lourds ( $Au^+$ ) incidents sur une cible d'oxyde de silicium ( $SiO_2$ ) à

une énergie de 40 MeV. Nous observons sur cette figure que la densité d'énergie nucléaire déposée est maximale au centre de la pointe autour de la trajectoire de l'ion incident et elle décroît rapidement au fur et à mesure qu'on s'éloigne du centre de la pointe thermique.

### II.3. Les propriétés thermo-physiques du matériau :

Le dioxyde de silicium ( $\text{SiO}_2$ ) sous forme de couches minces joue un rôle important dans la fabrication des dispositifs à semi-conducteurs à cause de ses excellentes performances. Il est donc important de connaître les propriétés thermo physiques précises de ces films minces, en particulier, leur conductivité thermique ou leur diffusivité thermique. Ce matériau isolant est aussi très intéressant dans différentes applications technologiques liées à l'exploitation des installations nucléaires, notamment dans les dispositifs d'analyse et systèmes de détection fonctionnant dans des environnements à rayonnement élevé [75, 78]. Pour cela il faut clarifier la dépendance de la microstructure de la conductivité thermique afin de comprendre les mécanismes de transfert de chaleur pour ces systèmes, surtout dans le cas de la formation de traces latentes dans les semi-conducteurs à l'aide d'un faisceau d'ions aux énergies du MeV. Les expressions analytiques de la conductivité thermique du film mince peuvent être obtenues à partir du modèle de transfert de chaleur. Ce modèle décrit le processus de transfert de chaleur dans les films minces et les substrats massifs, en tenant compte des effets de l'épaisseur, de la résistance électrique à l'interface, de la conductivité thermique dans le cas du film mince ou du substrat massif [80, 81].

Dans le présent travail, les capacités calorifiques spécifiques et les conductivités thermiques sont déterminées via l'ajustement de leurs valeurs expérimentales et numériques [80, 81] dans le cas de couches minces de  $\text{SiO}_2$  avec des épaisseurs proches de celles utilisées dans la présente expérience. En effet, la dépendance des propriétés thermo-physiques sur l'épaisseur du film de  $\text{SiO}_2$  a été déjà bien étudiée à travers plusieurs travaux expérimentaux et théoriques [28, 83 et 84]. Il a été constaté que la conductivité thermique dans le cas de films minces d'épaisseur supérieure à 100 nm peut être réduite d'environ 10 % par rapport à celle du matériau massif (voir la figure II-6).

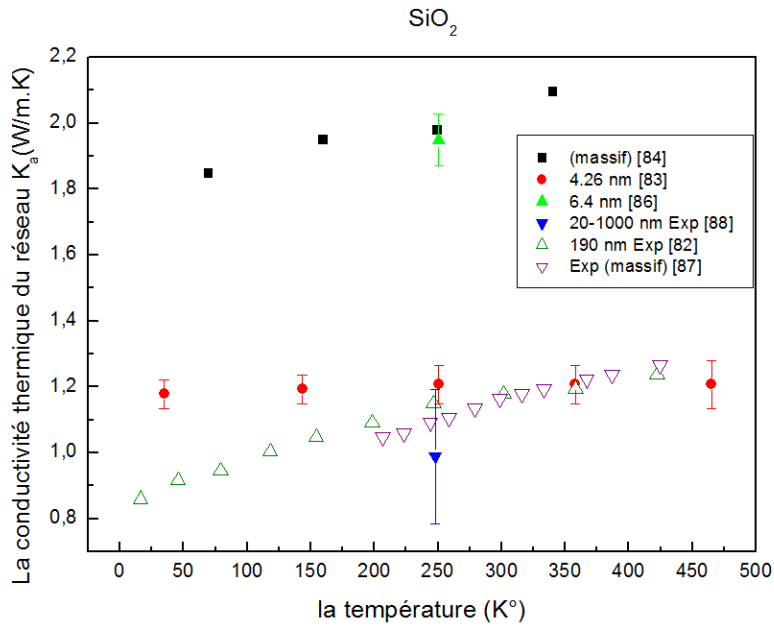


Figure II-6: Variation en fonction de la température de la conductivité thermique.

La capacité calorifique était auparavant déterminée en mesurant simultanément la conductivité thermique et la diffusivité en fonction de l'épaisseur du film en supposant que leur rapport ( $\frac{K_a}{D_a} = \rho C_a = cst$ ) était maintenu constant,  $C_a$  et  $\rho$  étant la chaleur spécifique et la masse volumique du matériau cible. De plus, nous avons considéré l'ajustement numérique aux données expérimentales globales de  $K_a$  et  $C_a$  précédemment rapportées par Awazu et al. [85] dans le cas d'un matériau en verre de silice. Concernant les autres paramètres thermiques d'entrée relatifs au sous-système électronique, ( $K_e, C_e$ ), nous avons adopté le traitement de Dufour et al. [44] basé sur le modèle de gaz à électrons libres et les mesures de conductivité déduites de la dépendance en fonction de la température de la diffusivité électronique [84], via la relation suivante :

$$K_e(T_e) = C_e \times D_e, \tag{II-11a}$$

qui peut atteindre des valeurs constantes autour de la température de Fermi,  $T_F$  ( $C_e \sim 1 J.cm^{-3}K^{-1}, K_e \sim 2 W cm^{-1}K^{-1}$  et  $D_e \sim \frac{2cm^{-2}}{s}$ , voir tableau II-1). Au-dessous de la température de Fermi et selon le traitement de Dufour et al. [44], nous considérons la capacité calorifique électronique thermique dans un gaz d'électrons libres, soit :

$$C_e = \frac{\pi}{2} k_B N_e \frac{T_e}{T_F}, \tag{II-11b}$$

où  $k_B$  est la constante de Boltzmann,  $N_e$  est la densité des électrons. Pour des températures élevées, c.-à-d.,  $T_e > \frac{3}{\pi^2} T_F$ , la valeur classique maximale de la capacité calorifique  $C_e$  est de l'ordre de :

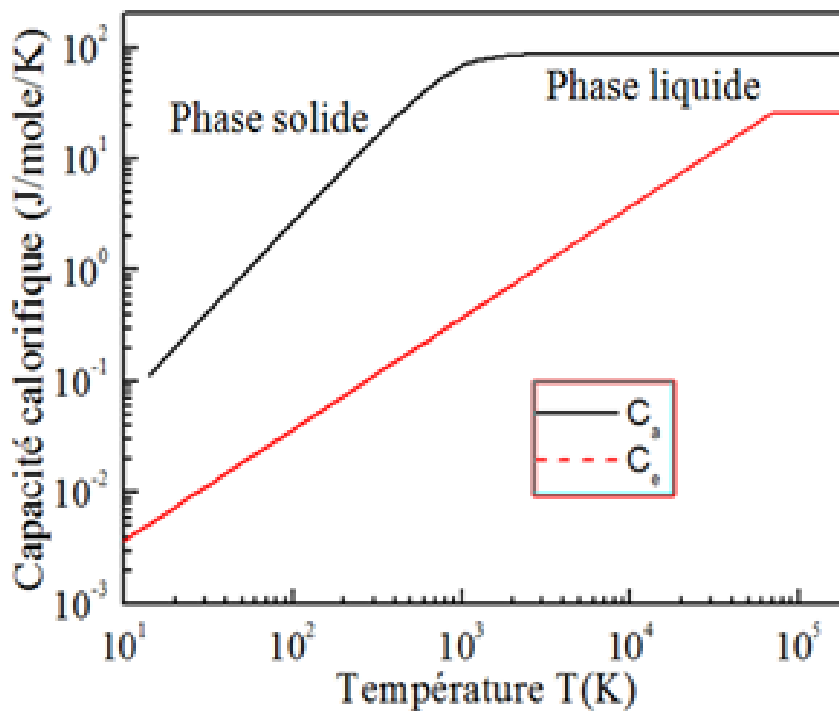
$$C_e = \frac{3}{2} k_B N_e. \quad (\text{II-11c})$$

Concernant la conductivité électronique thermique  $K_e$ , la dépendance en fonction de la température de la diffusivité électronique  $D_e(T_e)$  selon Martynenko et al. [89] a été utilisée dans ce travail. Selon ces auteurs, la diffusivité électronique décroît de  $\sim 100 \text{ cm}^2/\text{s}$  à  $300 \text{ K}^\circ$  jusqu'à  $\sim 1 \text{ cm}^2/\text{s}$  à une température électronique élevée de  $10^4 \text{ K}^\circ$ , d'où l'approximation de  $K_e(T_e)$  suivante :

$$D_e(T_e) = \begin{cases} \frac{300 \times D_{300}}{T_e} & T_e < T_{lim} \\ D_{min} & T_e > T_{lim} \end{cases}, \quad (\text{II-11d})$$

où  $D_{300} = 150 \text{ cm}^2/\text{s}$ ,  $D_{min} = 2 \text{ cm}^2/\text{s}$  et  $T_{lim} = 300 \frac{D_{300}}{D_{min}}$  est une température limite.

Sur les deux figures (II-7) et (II-8) sont tracées les variations en fonction de la température des quatre paramètres physico-thermiques : les capacités calorifiques ( $C_e$ ,  $C_a$ ) et les conductivités thermiques ( $K_e$  et  $K_a$ ) pour les des deux sous-systèmes électroniques et atomiques dans le cas du  $\text{SiO}_2$ .



**Figure II-7** : Variation en fonction de la température de la capacité calorifique pour les deux sous-systèmes électronique et atomique dans le cas du  $\text{SiO}_2$  [80].



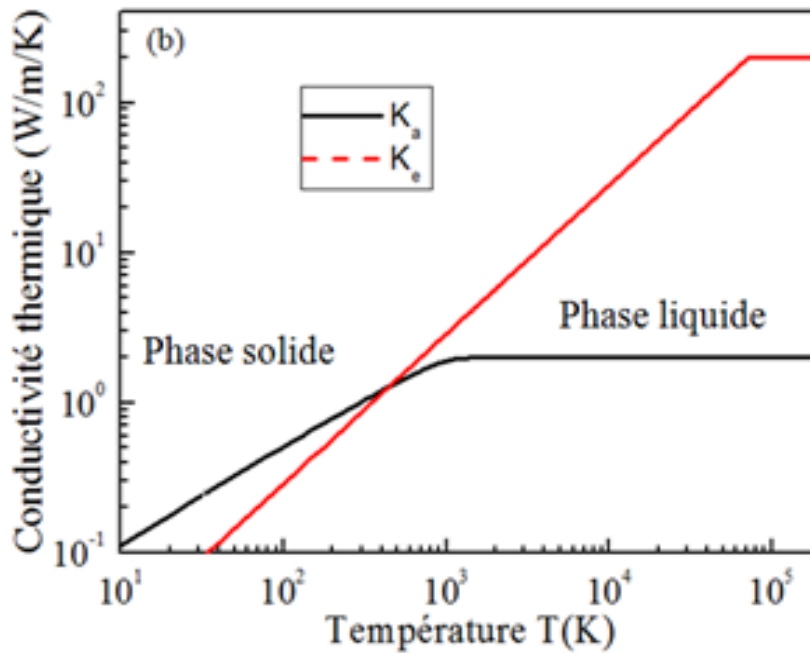


Figure II-8 : Idem que Figure (II-6) mais pour la conductivité thermique.

Nous observons sur ces deux figures que ces quatre paramètres suivent une fonction presque linéaire croissante en fonction de la température dans la phase solide du matériau SiO<sub>2</sub> étudié, ensuite, ils atteignent des valeurs maximales constantes dans la phase liquide au-delà de la température de fusion du matériau ( $T_f = 1683 \text{ K}^\circ$ ) et de celle de Fermi ( $T_F = 149784 \text{ K}^\circ$ ) correspondantes aux deux sous-systèmes électronique et atomique.

D'autres paramètres physico-thermiques nécessaires pour la résolution de nos deux équations différentielles sont également introduits dans le tableau (II-1).

Paramètre	Si	SiO <sub>2</sub>
Mass atomique	28.086 g/mol	60.08 g/mol
Densité massique	2.32 g/cm <sup>3</sup>	2.64 g/cm <sup>3</sup>
Nombre d'élec. de valence	Z=4	Z=16
Température de fusion ( $T_m$ )	1683 K	1972 K
Température de vaporisation	2953 K	4402 K
Température de Fermi	149784 K	45529 K
Température de Debye	645 K	470 K
Constante de couplage é-p (g)	$5.0 \times 10^{-12} \text{ W/K/ cm}^3$	$1.25 \times 10^{-13} \text{ W/K/ cm}^3$
Temps de relaxation e-p ( $\tau$ )	0.244ps	0.15ps
Energie d'activation	0.6 eV	0.28 eV/at.
Energie de sublimation	4.7 eV	1.9 eV

Tableau II-1 : Paramètres physiques propres aux matériaux de (Silicium et dioxyde de silicium) étudiés dans ce travail.

**II.4. Traitement numérique du modèle i-TS :**

**II.4.1. Discrétisation par la méthode explicite des différences finis :**

Cette méthode explicite consiste à remplacer les dérivées partielles par des différences divisées ou combinaisons de valeurs partielles des équations différentielles (EDP) en un nombre fini de points discrets ou nœuds de maillage. Pour la résolution d'une (EDP) de dimension  $(n+1)$  {espace-temps}, on introduit un maillage de l'espace  $R^n$  de deux pas de l'espace et du temps  $(\Delta r, \Delta t)$ , en construisant donc une grille avec des nœuds  $T_i^j$  (voir Figure II-9).

Ainsi, et afin d'appliquer cette méthode numérique, le domaine spatial  $[0, L]$  doit être divisé en  $N_r$  intervalles avec un pas  $\Delta r = L/N_r$ . De plus, le domaine temporel de 0 à  $\tau$  est aussi divisé en  $N_t$  intervalles avec un pas  $\Delta t = \tau/N_t$ , c.-à-d. le domaine  $\Omega$  est coupé suivant un maillage  $(N_r \times N_t)$ .

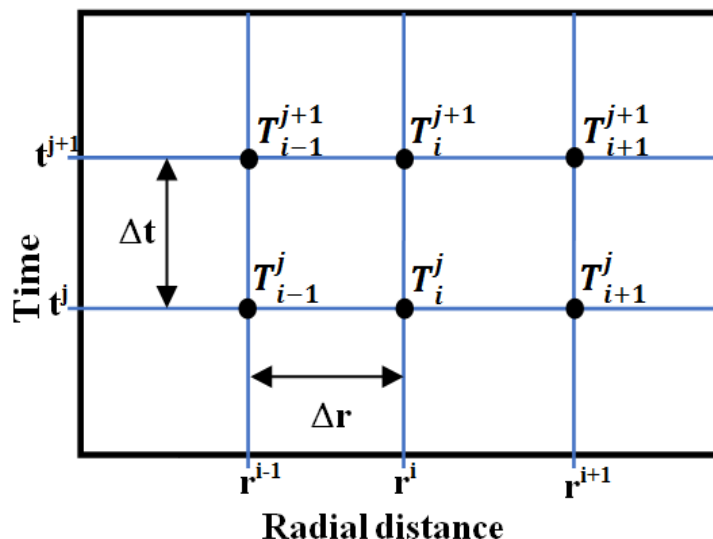
La solution approchée aux nœuds de maillage est écrite sous la forme suivante :

$$T(i\Delta r, j\Delta t) = T(r_i, t_j) = T_i^j, \tag{II.12a}$$

$$T(i\Delta r, (j + 1)\Delta t) = T(r_i, t_{j+1}) = T_i^{j+1}, \tag{II.12b}$$

$$T((i + 1)\Delta r, j\Delta t) = T(r_{i+1}, t_j) = T_{i+1}^j, \tag{II.12c}$$

$$T((i - 1)\Delta r, j\Delta t) = T(r_{i-1}, t_j) = T_{i-1}^j, \tag{II.12d}$$



**Figure II-9 :** Schéma d'une grille de nœuds de maillage de la méthode d différences finies.

Pour obtenir une solution approchée des deux équations différentielles (II.1a) et (II.1b), nous allons chercher une approximation de la dérivée première en temps  $\frac{\partial T}{\partial t}$  et de la dérivée première

$\frac{\partial T}{\partial r}$  et secondaire en espace  $\frac{\partial^2 T}{\partial r^2}$ . Ainsi, le développement en séries de Taylor de la composante de température est donné par les relations suivantes :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{T(r,t+\Delta t) - T(r,t)}{\Delta t}, \quad (\text{II.13a})$$

$$\frac{\partial T}{\partial r} = \frac{T(r+\Delta r,t) - T(r-\Delta r,t)}{2\Delta r}, \quad (\text{II.13b})$$

$$\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} = \frac{T(r+\Delta r,t) - 2T(r,t) + T(r-\Delta r,t)}{\Delta r^2}. \quad (\text{II.13c})$$

Par la suite, nous injectons les équations. (II.4a, II.4b et II.4c) dans le système d'équations (II.1a) et (II.1b), nous obtenons le système suivant :

$$T_e(i, j + 1) = T_e(i, j) + A_1(T_e(i + 1, j) - T_e(i - 1, j)) + A_2(T_e(i + 1, j) - T_e(i, j)) - A_3(T_e(i, j) - T_e(i - 1, j)) - A_4(T_e(i, j) - T_a(i, j)) + A_5, \quad (\text{II.14a})$$

$$T_a(i, j + 1) = T_a(i, j) + B_1(T_a(i + 1, j) - T_a(i - 1, j)) + B_2(T_a(i + 1, j) - T_a(i, j)) - B_3(T_e(i, j) - T_a(i - 1, j)) + B_4(T_e(i, j) - T_a(i, j)) + B_5, \quad (\text{II.14b})$$

$$\text{avec } A_1 = \frac{1}{2} \frac{\Delta t}{i(\Delta r)^2} \frac{K_e[T_e(i, j)]}{n_e C_e[T_e(i, j)]} \quad (\text{II.14c})$$

$$A_2 = \frac{1}{2} \frac{\Delta t}{(\Delta r)^2} \frac{K_e[T_e(i+1, j)] + K_e[T_e(i, j)]}{n_e C_e[T_e(i, j)]}, \quad (\text{II.14d})$$

$$A_3 = \frac{1}{2} \frac{\Delta t}{(\Delta r)^2} \frac{K_e[T_e(i, j)] + K_e[T_e(i-1, j)]}{n_e C_e[T_e(i, j)]}, \quad (\text{II.14e})$$

$$A_4 = g \frac{\Delta t}{n_e C_e[T_e(i, j)]}, \quad (\text{II.14f})$$

$$A_5 = \frac{\Delta t}{n_e C_e[T_e(i, j)]} A_e(i, j), \quad (\text{II.14g})$$

$$\text{et } B_1 = \frac{1}{2} \frac{\Delta t}{i(\Delta r)^2} \frac{K_a[T_a(i, j)]}{n_a C_a[T_a(i, j)]} \quad (\text{II.14h})$$

$$B_2 = \frac{1}{2} \frac{\Delta t}{(\Delta r)^2} \frac{K_a[T_a(i+1, j)] + K_a[T_a(i, j)]}{n_a C_a[T_a(i, j)]}, \quad (\text{II.14i})$$

$$B_3 = \frac{1}{2} \frac{\Delta t}{(\Delta r)^2} \frac{K_a[T_a(i, j)] + K_a[T_a(i-1, j)]}{n_a C_a[T_a(i, j)]}, \quad (\text{II.14k})$$

$$B_4 = g \frac{\Delta t}{n_a C_a[T_a(i, j)]}, \quad (\text{II.14l})$$

$$B_5 = \frac{\Delta t}{n_a C_a[T_a(i, j)]} B_n(i, j), \quad (\text{II.14m})$$

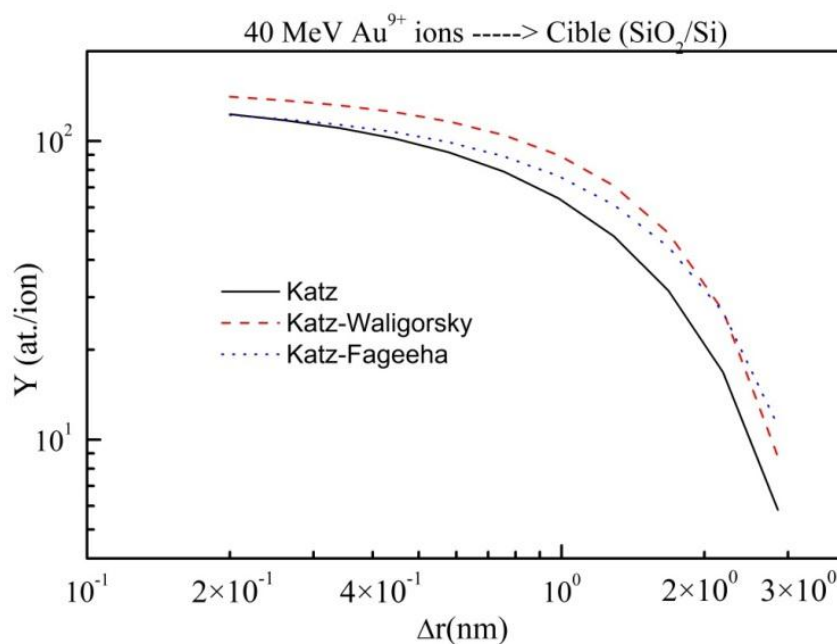
Les quantités  $A_{1-5}(T_e^j)$  et  $B_{1-5}(T_a^j)$  sont également dépendantes de la température via les propriétés thermo-physiques du matériau étudié, principalement, les capacités calorifiques et les conductivités thermiques des deux sous-systèmes électroniques et atomiques, et qui sont-elles mêmes dépendantes du temps et de la distance radiale.

**II.4.2. Procédure numérique et conditions initiales aux limites**

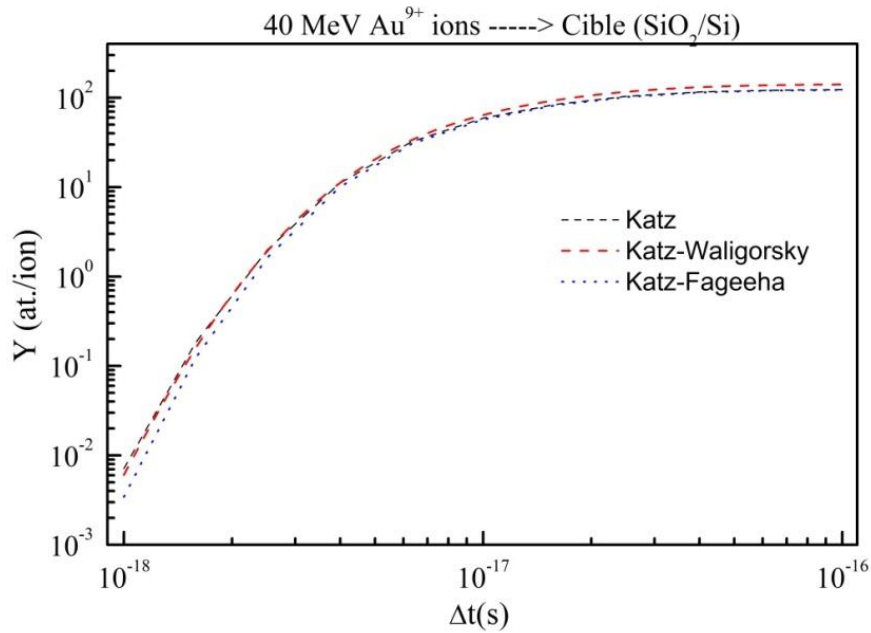
Les dernières équations discrétisées (II.14a) et (II.14b) sont finalement résolues via un algorithme numérique contenu dans un programme FORTRAN, avec la condition de convergence suivante :

$$\frac{2D_e \Delta t}{(\Delta r)^2} < 1, \tag{II.15}$$

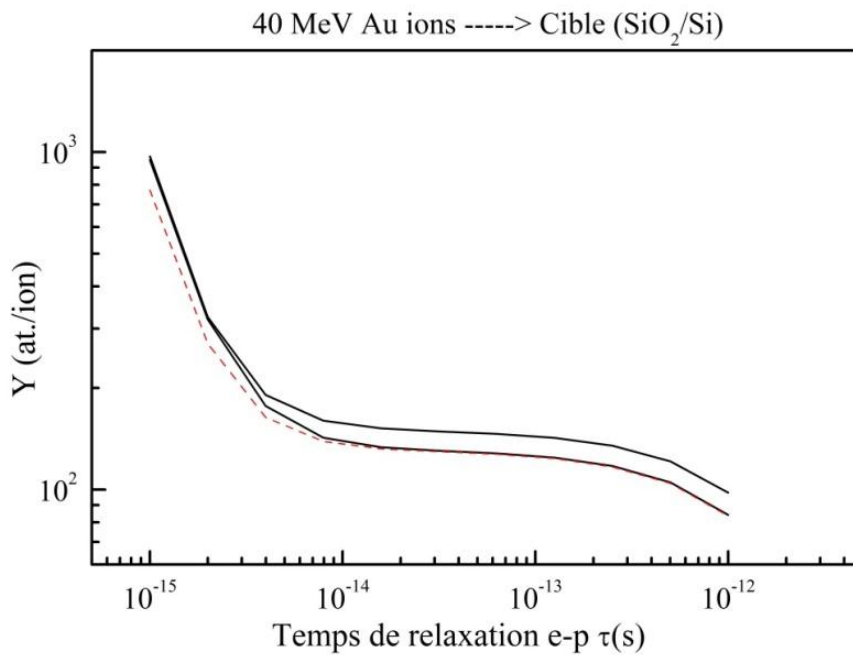
en fixant les pas radial  $\Delta r$  et temporel  $\Delta t$  à des valeurs appropriées de l'ordre de 0.2 nm et 0.1 fs (1 fs =  $10^{-15}$  s), respectivement, de telles sortes que les valeurs numériques générées des températures électronique et atomique sont stables et reproduisent les nombres moyens des défauts atomiques créés en volume et les rendements de pulvérisation induits en surface. Sur les Figures (II-10), (II-11) et (II-12), sont présentées les variations en fonction des pas de discrétisation spatio-temporels ( $\Delta r$ ,  $\Delta t$ ) et du temps de relaxation ( $\tau_{e-p}$ ) du rendement de pulvérisation calculé numériquement via le modèle i-TS (éqs. II-29), mais en utilisant le modèle de Katz et ses deux corrections associées (Katz-Waligorsky et Katz-Fageeha) pour la densité d'énergie électronique radiale. Nous observons sur les deux premières figures (II-10) (II-11) que les rendements de pulvérisations sont stables dans les deux gammes respectives des pas de discrétisation  $\{\Delta r = (0.2-0.8) \text{ nm}, \Delta t = (10^{-17}-10^{-16}) \text{ s}\}$ . Tandis que pour la dépendance du rendement de pulvérisation en fonction du temps de relaxation  $\tau_{e-p}$  (tracée sur la Figure (II-12)) est stable dans l'intervalle du temps ( $10^{-14}-10^{-12}$ ) s, Bien qu'une valeur appropriée a été prise en considération pour  $\tau_{e-p} = 1.5 \times 10^{-16}$  s (voir tableau (II-1)).



**Figure II-10 :** Variation en fonction du pas de discrétisation spatial ( $\Delta r$ ) du rendement de pulvérisation calculé numériquement via le modèle i-TS (éqs. II-29).



**Figure II-11:** Variation en fonction du pas de discrétisation temporel ( $\Delta t$ ) du rendement de pulvérisation calculé numériquement via le modèle i-TS (éqs. II-29).



**Figure II-12 :** Variation en fonction du temps de relaxation ( $\tau_{e-p}$ ) du rendement de pulvérisation calculé numériquement via le modèle i-TS (éqs. II-29).

Sur la figure (II-13) est présenté un schéma descriptif de l’algorithme utilisé dans notre programme de calcul. Il s’agit en premier lieu d’introduire les paramètres d’entrée relatifs à la nature de l’ion incident (numéro atomique, masse) ainsi que la nature et les propriétés thermo-physiques du matériau bombardé. Par la suite, la vérification des conditions de convergence avec les pas de discrétisation numérique. La deuxième étape concerne l’évaluation des paramètres de ralentissement comme les pouvoirs d’arrêt électronique et nucléaires ainsi que du parcours

projeté de l'ion incident et le rayon de cascades de la trace latente. Celle-ci nous ramène à évaluer les densités d'énergies électronique et nucléaire déposées avec l'introduction des conditions initiales aux limites et en commençant l'itération numérique pour obtenir les variations des températures électroniques et atomiques.

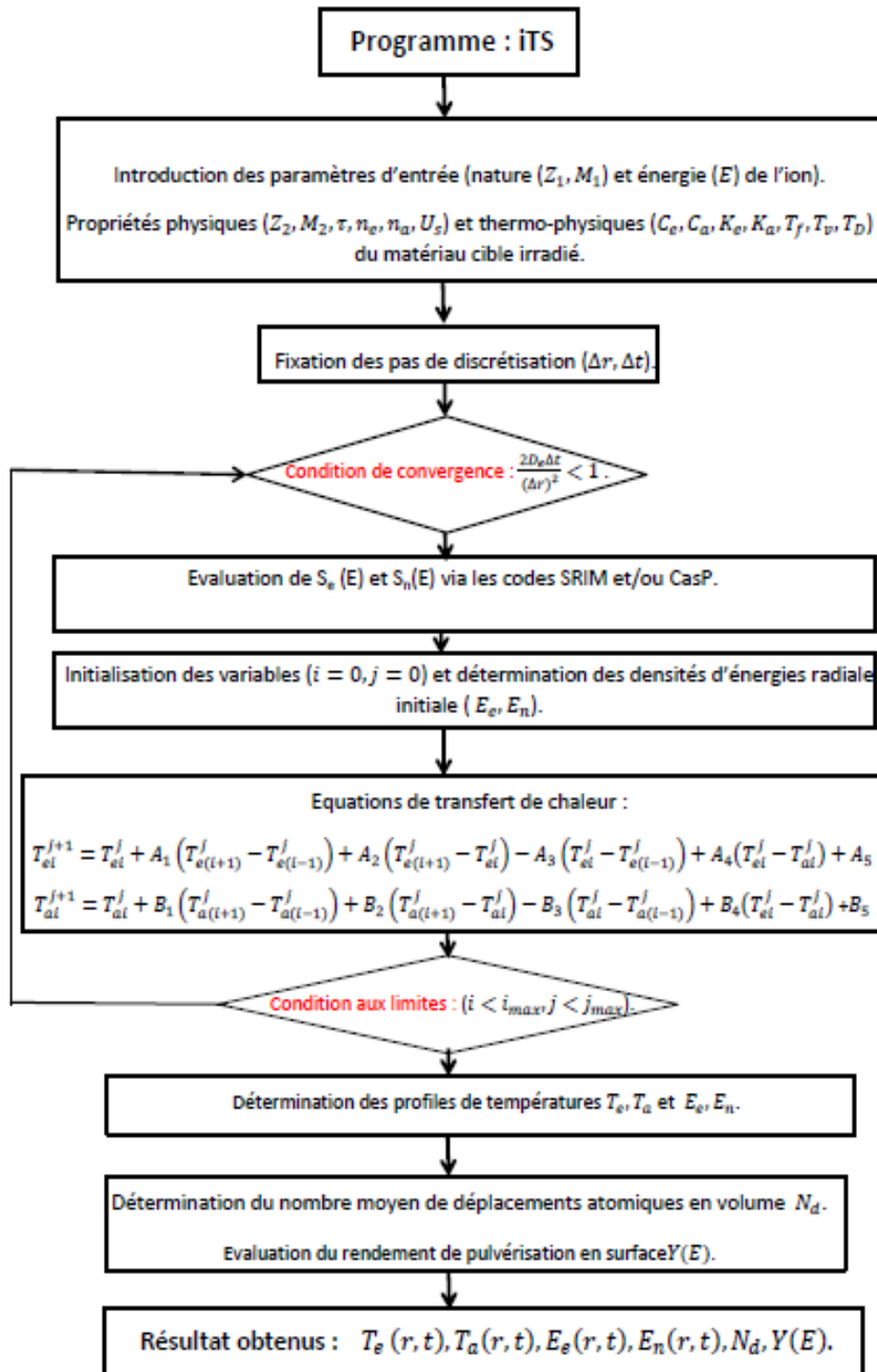


Figure II-13 : Algorithme utilisée pour la résolution numérique des deux équations de transfert de chaleur via la méthode explicite des différences finies.

Les conditions initiales aux limites (températures ambiantes) pour les sous-systèmes électroniques et atomiques dans les régions éloignées de la trajectoire des ions incidents dans la cible (c'est-à-dire pour  $r \rightarrow \infty$ ) sont supposées être :

$$T_e(r, 0) = T_a(r, 0) = T_0 = 300 \text{ K}^\circ, \quad (\text{II.16a})$$

et  $\left. \frac{\partial T(r,t)}{\partial r} \right|_{r=0} = 0.$  (II.16b)

Finalement, nous avons déterminé le nombre moyen de défauts créés en volume et le rendement de pulvérisation induit en surface via les deux expressions (I.28) et (I.29). Nous avons ainsi inclus dans notre calcul numérique un sous-algorithme supplémentaire de quadrature bidimensionnelle (QUAD2D) pour évaluer l'intégrale double en espace et en temps. Pour tenir compte des paramètres de ralentissement de l'ion incident, nous avons introduit une version adaptée d'un sous-programme STOP96 du code SRIM de Ziegler et al. (1985) [28] calculant directement les pouvoirs d'arrêts à partir des expressions semi-empiriques obtenues par ajustement aux données expérimentales et numériques d'un grand nombre de systèmes projectile-cible. Également, nous avons introduit dans le programme de calcul des valeurs numériques générées via le code CasP-5.2 [79] pour l'évaluation du pouvoir d'arrêt des ions  $\text{Au}^{q+}$  d'états de charge sélectionnés.

**CHAPITRE IV :****PRESENTATION DES RESULTATS, ANALYSE, COMPARAISON ET DISCUSSION**

Dans ce présent et dernier chapitre, nous présentons nos résultats expérimentaux du rendement de pulvérisation obtenus via la technique nucléaire d'analyse RBS et qui seront comparés par la suite aux valeurs numériques calculées via le modèle de pointes thermiques inélastique (i-TS). Nous commençons en premier lieu par l'analyse des spectres RBS obtenus, en déterminant expérimentalement les rendements de pulvérisation induits dans des cibles en couches minces ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ). Notons que ces échantillons cibles ont été irradiés aux ions lourds ( $\text{Au}^{q+}$ ) d'énergies comprises entre 10 et 40 MeV et avec différents états de charges  $q$  allant de +4 jusqu'à +9. Par la suite, nous présentons les résultats numériques obtenus via nos programmes de calculs basés sur le modèle (i-TS). Il s'agit d'étudier l'évolution des profils des températures et d'énergies déposées en fonction des distances radiales et du temps d'irradiation et qui seront validés par des données expérimentales des rayons de traces latentes précédemment obtenues dans le cas du dioxyde de silicium irradiés à différentes énergies du MeV. Finalement, les résultats expérimentaux du rendement de pulvérisation seront confrontés à ceux générés numériquement, soit via le modèle i-TS ou par le code de simulation SRIM.

**IV.1. Présentation et analyse des résultats expérimentaux :****IV.1.1. Analyse RBS des échantillons cibles :**

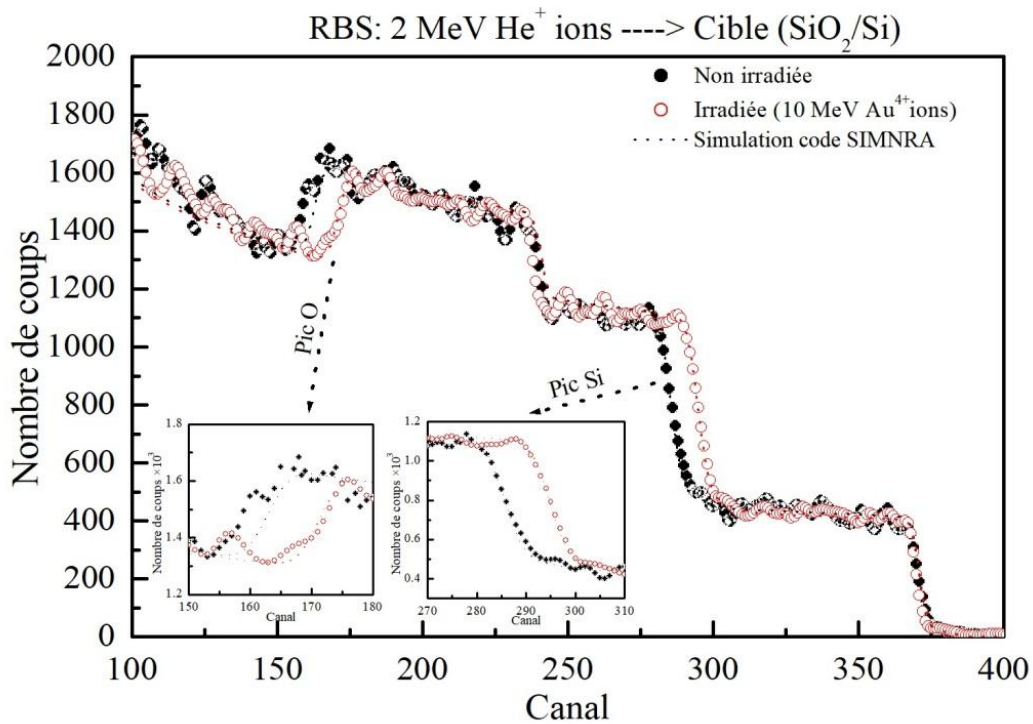
Nous avons analysé des spectres RBS relatifs à une série d'échantillons cibles ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) irradiés par des ions  $\text{Au}^{q+}$  de différentes énergies comprises dans la gamme (10-40) MeV. Un échantillon cible ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) non-irradié a été également analysé via la technique RBS. Ceci afin de l'utiliser comme référence pour estimer la réduction en épaisseur et le rendement de pulvérisation induit après irradiation ionique. Notons que ces échantillons cibles ont été fixés sur un porte-échantillon coulissant placé au centre de la chambre à diffusion de l'accélérateur Van de Graaff (voir Fig. III-10). Nous avons utilisé un faisceau de particules alpha  ${}^4\text{He}^+$  d'énergie de 2 MeV avec une dimension de 2 mm de diamètre.



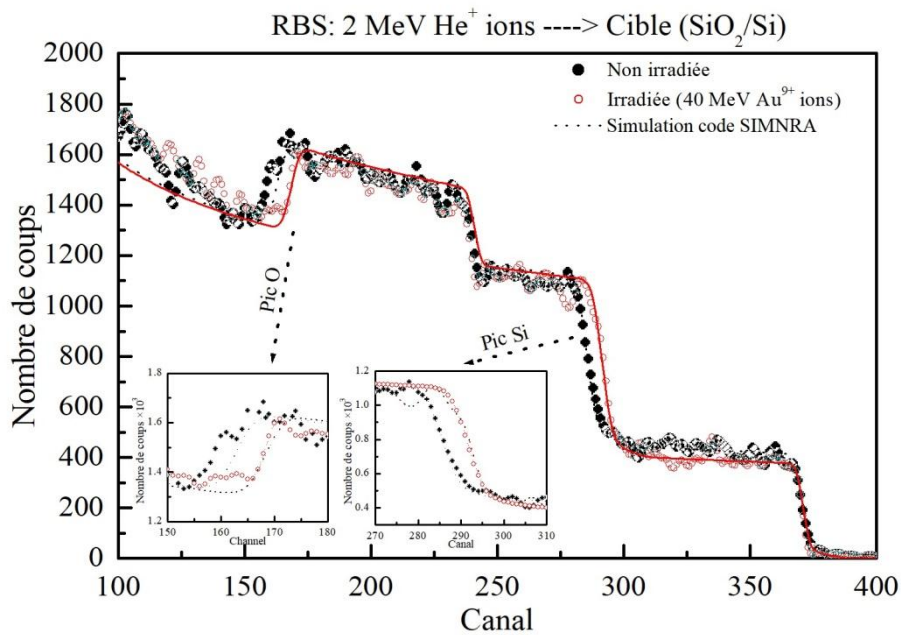
Le faisceau  $^4\text{He}^+$  tape avec une incidence normale sur plusieurs points d'impact en balayant toute la surface de la cible. Et ceci afin d'étudier l'homogénéité de son épaisseur avant et après irradiation ionique. Les particules rétrodiffusées sont détectées par un détecteur à barrière de surface (PIPS) d'une résolution en énergie de l'ordre de 15 keV, placé à une distance de 11 cm par rapport à la cible et d'un angle  $\theta_D$  de  $165^\circ$  par rapport à la direction initiale du faisceau incident. L'intensité du courant électrique de faisceau est maintenue entre 30 à 40 nA pour éviter la détérioration du détecteur. Notons enfin que pour le besoin de calibration de la chaîne de détection, nous avons récolté à la fin de l'expérience un spectre RBS relatif à une cible en couche mince (Au/Si) déposée sur un substrat de silicium. Par la suite, tous les spectres RBS récoltés ont été simulés par le code SIMNRA [93] pour déduire les variations des densités surfaciques de nos échantillons après irradiation et les rendements de pulvérisation expérimentaux recherchés.

Sur les deux figures (IV-1) et (IV-2) sont présentés, à titre d'exemple, deux spectres RBS expérimentaux pour deux échantillons cibles ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) irradiés à deux énergies de 10 et 40 MeV avec deux autres spectres de référence pour la partie non-irradiée des échantillons en question. Nous observons clairement sur ces deux figures que le front de montée du pic de silicium ainsi que le front de décente du pic d'oxygène sont décalés vers des numéros de canaux plus élevés (pour  $E_{\text{Au}} = 10$  MeV, Si : 286→297, O : 160→172, pour  $E_{\text{Au}} = 40$  MeV, Si : 286→292, O : 160→168). Nous pouvons clairement constater la réduction de l'épaisseur avec l'érosion (ou la pulvérisation) d'une couche très fine de la cible  $\text{SiO}_2$  après irradiation ionique. Une réduction significative a été observée pour les deux pics du silicium (Si) et d'oxygène (O) pour une irradiation aux ions lourds  $\text{Au}^{4+}$  à basse énergie (c.-à-d.,  $E = 10$  MeV) comparées à celles des autres énergies élevées de 20, 30 et 40 MeV. Ceci indique que lors de l'analyse RBS, les ions  $\text{He}^+$  incidents sont rétrodiffusés sur moins d'atomes de silicium et d'oxygène, où des dommages et défauts atomiques supplémentaires sont induits avec l'érosion de la surface cible irradiée suite aux déplacements atomiques directs induits. Ces déplacements directs correspondent aux cascades de collisions élastiques nucléaires produites dans cette gamme d'énergie (c.-à-d., à une énergie de 10 MeV).

Il est clairement observé à partir de tous les spectres RBS obtenus, la réduction de l'épaisseur des échantillons irradiés en fonction de l'énergie d'irradiation.



**Figure (IV-1) :** Comparaison de deux spectres RBS expérimentaux pour un échantillon cible (SiO<sub>2</sub>/Si) irradié par des ions lourds Au<sup>4+</sup> d'énergie de 10 MeV et un autre relatif à la partie non-irradiée du même échantillon. L'ensemble des spectres est simulé par le code SIMNRA [93].



**Figure (IV-2) :** Idem que figure (IV-1) mais pour des cibles SiO<sub>2</sub> irradiés par des ions (Au<sup>9+</sup>) d'énergie de 40 MeV.

Cette réduction en épaisseur ou pulvérisation induite peut être vraisemblablement expliquée par la densité d'énergie électronique déposée sur les atomes cibles, en provoquant ainsi une augmentation du nombre d'atomes Si et O participants à l'endommagement du matériau irradié et à l'érosion de sa surface solide. Ceci implique

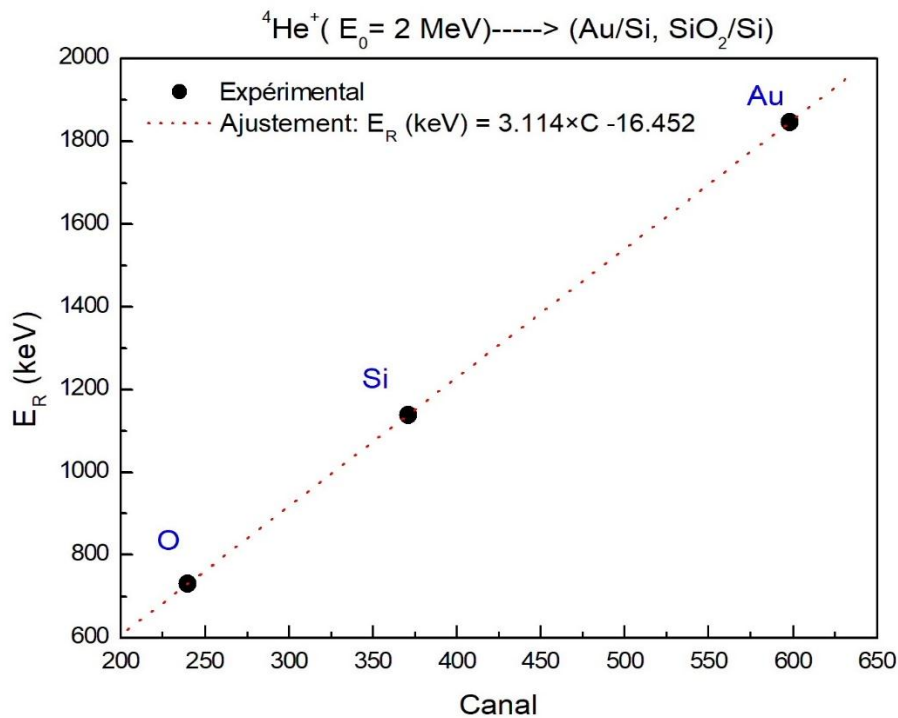
un rendement de pulvérisation qui devient de plus en plus important pour des énergies d’irradiation plus élevées.

Par la suite, l’ensemble des spectres RBS expérimentaux a été simulé via le code SIMNRA [93] en introduisant toutes les conditions expérimentales nécessaires à la simulation et qui sont résumées sur le tableau (IV-1).

Conditions expérimentales de l’analyse RBS	
Type de faisceau d’ions incident	He <sup>+</sup>
Energie du faisceau incident	E <sub>0</sub> = 2 MeV
Courant du faisceau incident	I = 30-40 nA
Angle d’incidence du faisceau d’ions	θ <sub>i</sub> = 0°
Angle de détection	θ <sub>D</sub> = 165°
Distance Détecteur- échantillon cible	D = 11 cm
Résolution du détecteur	δE = 15 keV
Etalonnage de la chaine de détection	E (keV) = 3.114×C -16.452

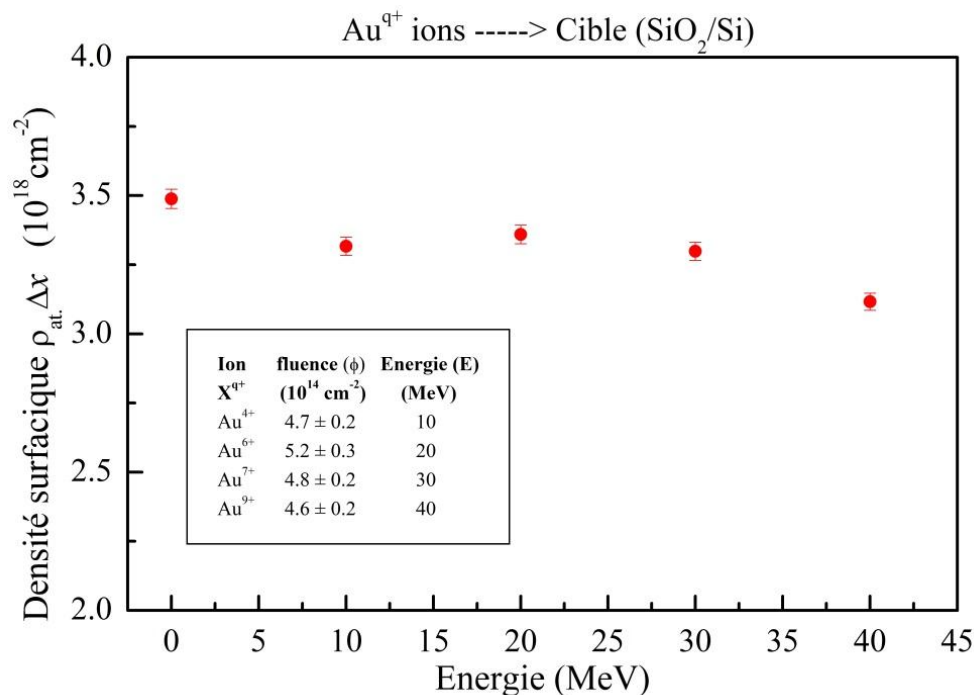
**Tableau (VI-1) :** Paramètres et conditions de l’expérience d’analyse par RBS.

En effet, deux paramètres nécessaires à la simulation SIMNRA sont les coefficients d’étalonnage de la chaine de détection utilisée. Ces deux coefficients ont été déterminés en traçant les énergies de rétrodiffusion en surface des trois éléments (Si, O et Au) en fonction des canaux en surface de leurs pics sur les spectres expérimentaux obtenus (voir Figure IV-3).



**Figure IV-3 :** Droite d’étalonnage en énergie de la chaîne de détection lors de l’analyse RBS.

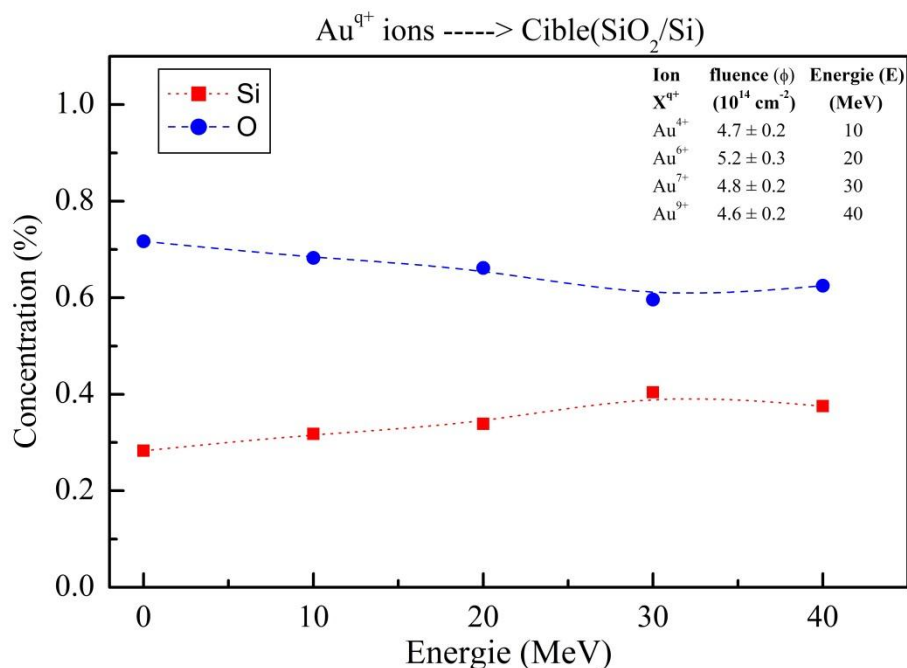
La simulation par le code SIMNRA consiste à introduire les conditions et les paramètres nécessaires à l'expérience d'analyse par faisceau d'ions pour reproduire par itération numérique les spectres expérimentaux récoltés en faisant varier les épaisseurs et les concentrations atomiques du matériau cible  $\text{SiO}_2$  composé. Le meilleur ajustement des spectres expérimentaux nous a permis d'obtenir les densités surfaciques et la stœchiométrie de l'ensemble des échantillons cibles analysés. Ainsi à titre d'exemple, la densité surfacique ( $N_{at} \Delta x$ ) pour l'échantillon cible non-irradiée est estimée à  $\sim (34.9 \pm 0.3) \times 10^{17} \text{at/cm}^2$ . Après irradiation aux ions lourds ( $\text{Au}^{q+}$ ), cette valeur de densité surfacique est clairement réduite de 6 à 13 % en fonction de l'énergie d'irradiation (voir Figure IV-4 et tableau IV-2). Ces réductions en épaisseur sont principalement dues au phénomène d'érosion avec la pulvérisation d'une couche très fine de l'échantillon cible  $\text{SiO}_2$ .



**Figure (IV-4) :** Variation en fonction de l'énergie d'irradiation de la densité surfacique des échantillons cibles ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) irradiés par de ions lourds ( $\text{Au}^{q+}$ ).

Comme résultat de la simulation avec le code SIMNRA, nous avons également tracé sur la figure (IV-5) la variation de la stœchiométrie des échantillons cibles ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) irradiés en fonction de l'énergie d'irradiation des ions lourds ( $\text{Au}^{q+}$ ). Nous observons sur cette figure que la concentration d'oxygène initialement de 0.72 % est diminuée légèrement jusqu'à 0.63 % tandis que celle du silicium augmente de 0.28 % jusqu'à 0.38 % au fur et à mesure que l'énergie d'irradiation augmente. Ceci peut être vraisemblablement

expliqué par la variation de la pulvérisation préférentielle  $Y(\text{Si})/Y(\text{O})$  en fonction de l'énergie d'irradiation des ions lourds ( $\text{Au}^{q+}$ ) qui est due en fait au rapport des masses  $M(\text{Si})/M(\text{O}) = 28/16 \approx 1.75$ . des atomes cibles. Ainsi, pour des matériaux composés l'énergie de liaison et la masse de ses constitutions peuvent affecter l'efficacité de la pulvérisation. La première joue un rôle très important dans le développement de cascades atomiques et la probabilité d'extraire les atomes hors du matériau solide. La deuxième a également un effet important si l'un des éléments cibles a une masse proche du projectile (c.-à-d. le transfert d'énergie est plus efficace), alors il sera émis préférentiellement.



**Figure (IV-5) :** Variation en fonction de l'énergie d'irradiation de la stœchiométrie des échantillons cibles ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) irradiés par de ions lourds ( $\text{Au}^{q+}$ ).

**IV.1.2. Détermination expérimentale du rendement de pulvérisation :**

Par la suite, en connaissant les réductions des densités surfaciques des échantillons cibles irradiés, nous avons déterminé expérimentalement les rendements de pulvérisation induits en utilisant la relation suivante :

$$Y_{exp} = \frac{N_{at.\Delta x}|_{n.Irr} - N_{at.\Delta x}|_{Irr}}{\phi}, \tag{IV.1a}$$

où  $N_{a\Delta x}|_{n.Irr}$  et  $N_{a\Delta x}|_{Irr}$  sont, respectivement, les densités surfaciques avant et après irradiation ionique exprimées en unité de  $10^{15} \text{ at./cm}^2$  et  $\phi$  la fluence ionique en unité de

$10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup>. Nous avons également déterminé les incertitudes absolues sur la détermination de cette quantité physique, qui sont dues aux erreurs expérimentales propagées sur les trois paramètres physiques mesurables de l'éq. (IV-1a), soit :

$$\frac{\Delta Y_{exp}}{Y_{exp}} = \frac{\Delta(N_{at}.\Delta x|_{n.Irr}) + \Delta(N_{at}.\Delta x|_{Irr})}{N_{at}.\Delta x|_{n.Irr} - N_{at}.\Delta x|_{Irr}} + \frac{\Delta\phi}{\phi}, \quad (IV.1b)$$

où  $\Delta(N_{at}.\Delta x|_{n.Irr})$ ,  $\Delta(N_{at}.\Delta x|_{Irr})$  et  $\Delta\phi$  sont, respectivement, les erreurs propagées sur la détermination expérimentales des densités surfaciques avant et après irradiation ionique et sur la fluence ionique.

Ces incertitudes résultent essentiellement de la détermination expérimentale des incertitudes sur la fluence ionique ( $\Delta\phi \approx 5.1\%$ , en moyenne) et à degré moindre de l'incertitude sur les densités surfaciques ( $\Delta(N_a\Delta x) \lesssim 1\%$ , voir tableau IV-2).

Ion $X^{q+}$	E (MeV)	Fluence $\phi$ ( $10^{14}$ cm <sup>-2</sup> )	Pouvoir d'arrêt (keV/nm)		Parcours Projeté Rp ( $\mu$ m) SRIM [28]	Rendement de pulvérisation expérimentale Y <sub>exp</sub> (at./ion)
			S <sub>n</sub> (E) SRIM [28]	S <sub>e</sub> (E) CasP [79]		
Au <sup>4+</sup>	10	4.67 ± 0.25	1.3	5.1	2.39	53.6 ± 11.9
Au <sup>6+</sup>	20	5.20 ± 0.26	0.8	9.2	4.78	247.1 ± 66.8
Au <sup>7+</sup>	30	4.77 ± 0.24	0.6	12.3	6.72	397.2 ± 86.9
Au <sup>9+</sup>	40	4.57 ± 0.23	0.5	15.6	8.23	814.4 ± 139.1

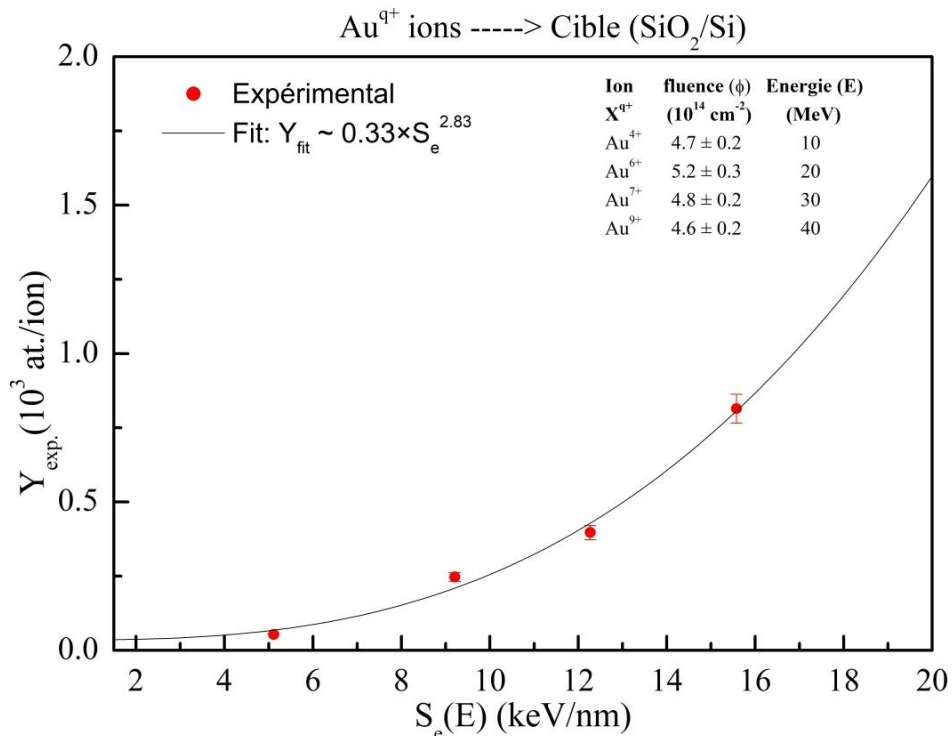
**Tableau (IV-2) :** Données expérimentales du rendement de pulvérisation induit dans des couches minces (SiO<sub>2</sub>/Si) d'épaisseurs (~150 nm) irradiées aux ions lourds (Au<sup>q+</sup>) d'énergies comprises entre 10 et 40 MeV.

Notons que les valeurs du pouvoir d'arrêt électroniques utilisées sont celles générées via le Code de simulation CasP-5.2 [58] au lieu d'autres codes de calcul de pertes d'énergies, y compris SRIM [7], qui ne peuvent pas fournir des valeurs de pouvoir d'arrêt électronique dans le cas des ions lourds multichargées ou avec des états de charges sélectionnés [74-76, 78]. Ce code de calcul peut générer des valeurs numériques du pouvoir d'arrêt électronique en tenant compte de la contribution due aux différents états de charges, c.-à-d., en incluant l'excitation et l'ionisation des atomes cibles ainsi que les échanges de charges ioniques qui résultent de la perte et de la capture d'électrons à travers le matériau cible [79].

Par la suite, nous avons tracé sur la figure (IV-6) la variation des rendements de pulvérisation expérimentaux obtenus avec leurs incertitudes absolues associées en fonction du pouvoir d'arrêt électronique S<sub>e</sub>(E). Ainsi, sur la figure montrée ci-dessous, les données expérimentales du rendement de pulvérisation augmentent en fonction du pouvoir d'arrêt électronique, en évoluant

suivant une loi en puissance de 2.89 (c.-à-d.,  $Y \propto S_e^{2.89}$ ). Cette valeur de loi en puissance est légèrement proche de celle précédemment obtenue ( $Y \propto S_e^3$ ) par Toulmonde et al. [102-103] dans le cas du système projectile-cible (Au-SiO<sub>2</sub>).

Finalement, les résultats expérimentaux du rendement de pulvérisation seront comparés avec d'autres mesures précédemment publiées [92, 103-106] pour ce matériau cible ainsi qu'avec les valeurs numériques générées via le modèle i-TS et le code de simulation SRIM [28].



**Figure IV-6 :** Dépendance du rendement de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique  $S_e(E)$ .

## IV.2. Présentation et analyse des résultats numériques :

### IV.2.1 Profils de distributions des températures électronique et atomique :

L'application du modèle des pointes thermiques inélastiques (i-TS) pour étudier les effets d'irradiation induits par des ions lourds (Au<sup>q+</sup>) aux énergies du MeV sur la cible (SiO<sub>2</sub>), nous a permis aussi d'étudier la variation spatio-temporelle des profils de distributions des températures électronique et atomique. Ces deux paramètres expérimentalement inaccessibles sont indispensables pour la détermination du rendement de pulvérisation et du nombre moyen des déplacements et défauts atomiques induits dans le matériau cible irradié. Dans le deuxième chapitre, nous avons ainsi introduit et optimisé différents paramètres et quantités physiques d'entrée pour

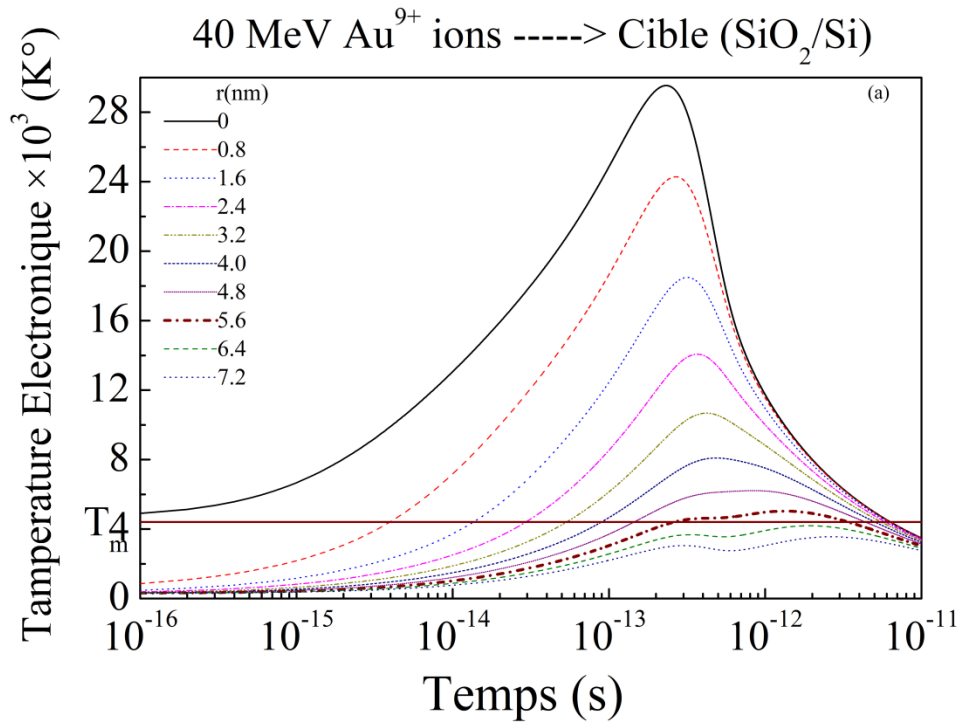
simuler numériquement, via le modèle i-TS, les mécanismes d'interaction des ions lourds ( $\text{Au}^{9+}$ ) à l'intérieur de la cible  $\text{SiO}_2$  depuis les premiers moments ( $\sim 10^{-15}$  s) de dépôts d'énergie électronique et nucléaire jusqu'à la sublimation de la cible, en passant par les effets induits, comme les déplacements atomiques et l'érosion ou la pulvérisation de la surface solide irradiée. Notons que lors du passage de l'ion incident à travers la matière avec des énergies de l'ordre du MeV, des collisions inélastiques avec les électrons des atomes cibles sont principalement provoquées, conduisant à l'ionisation et à l'excitation atomique avec un transfert d'énergie électronique important sous forme de chaleur dans l'échantillon cible supérieur à la température ambiante. La sensibilité de l'échantillon aux collisions inélastiques dépend énormément de sa capacité calorifique et de sa conductivité thermique, donc de la nature du matériau irradié. Ces transferts d'énergie provoquent ainsi des déplacements atomiques indirects via le couplage électron-phonon et des dommages dans le matériau cible, allant jusqu'à sa sublimation et/ou la pulvérisation et l'érosion de sa surface solide. Les processus de collisions élastiques qui conduisent à des déplacements atomiques ont été également pris en considération dans le cadre du modèle des pointes thermiques.

Sur les deux figures (IV-7) et (IV-8) est présentée l'évolution des deux températures électronique et atomique en fonction du temps ( $t$ ) et de la distance radiale ( $r$ ), pour une cible  $\text{SiO}_2$  irradiée par des ions  $\text{Au}^{9+}$  d'énergie de 40 MeV. Nous pouvons observer sur cette figure une augmentation initiale de la température électronique sur un intervalle de temps ( $10^{-16}$  -  $10^{-13}$  s), qui correspond au dépôt initial d'énergie électronique de l'ion incident et à sa dissipation parmi les électrons cibles (voir Figure IV-7). Cette augmentation de la température électronique est suivie par une autre augmentation de la température atomique (voir Figure IV-8) due au transfert d'énergie par couplage électron-phonon (é-p) pendant une période plus courte de  $10^{-14}$  à  $10^{-13}$  s.

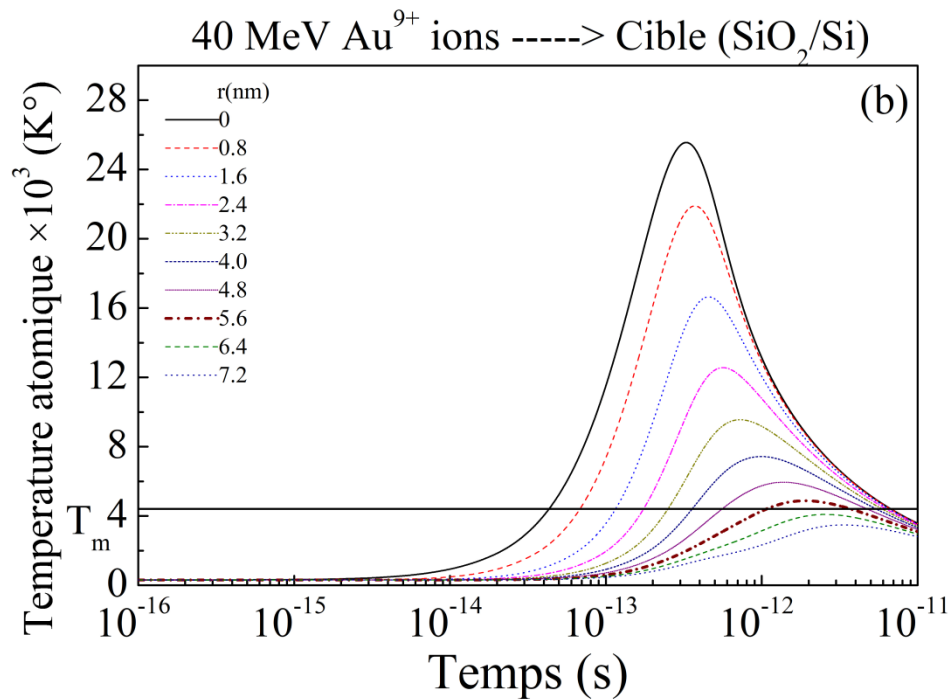
Par la suite, les deux températures électroniques et atomiques diminuent vers leurs valeurs minimales autour de la température ambiante ( $\sim 300$  K) jusqu'à  $10^{-10}$  s, entraînant un mouvement atomique significatif et finalement l'endommagement de la structure atomique et l'érosion de la surface cible du matériau irradié. Nous avons ainsi remarqué la diminution rapide des températures électroniques et atomiques en fonction de la distance radiale, en définissant ainsi les tailles (rayons) des traces latentes



autour de la trajectoire de l'ion incident pour des températures correspondantes à la température de vaporisation du matériau irradié ( $\sim 4402 \text{ K}^\circ$ ).

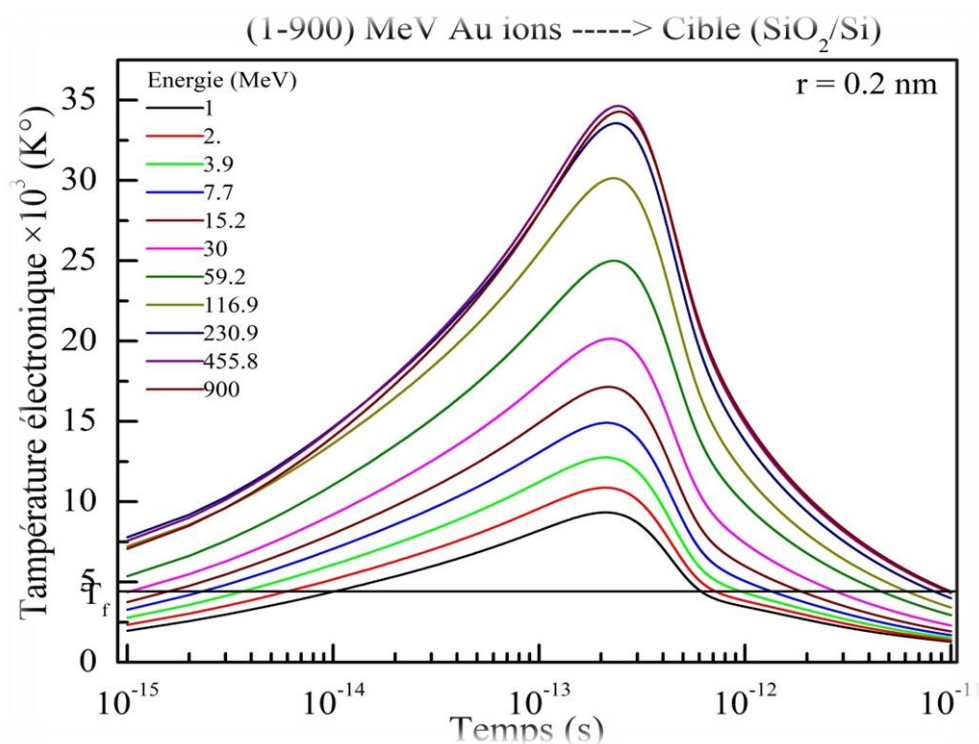


**Figure (IV-7) :** Profil de distribution des températures électroniques  $T_e(r, t)$  en fonction du temps (t) et de la distance radiale (r) obtenu numériquement via le modèle i-TS pour une cible SiO<sub>2</sub> en couche mince sous l'impact des ions lourds (Au<sup>9+</sup>) d'énergie de 40 MeV.

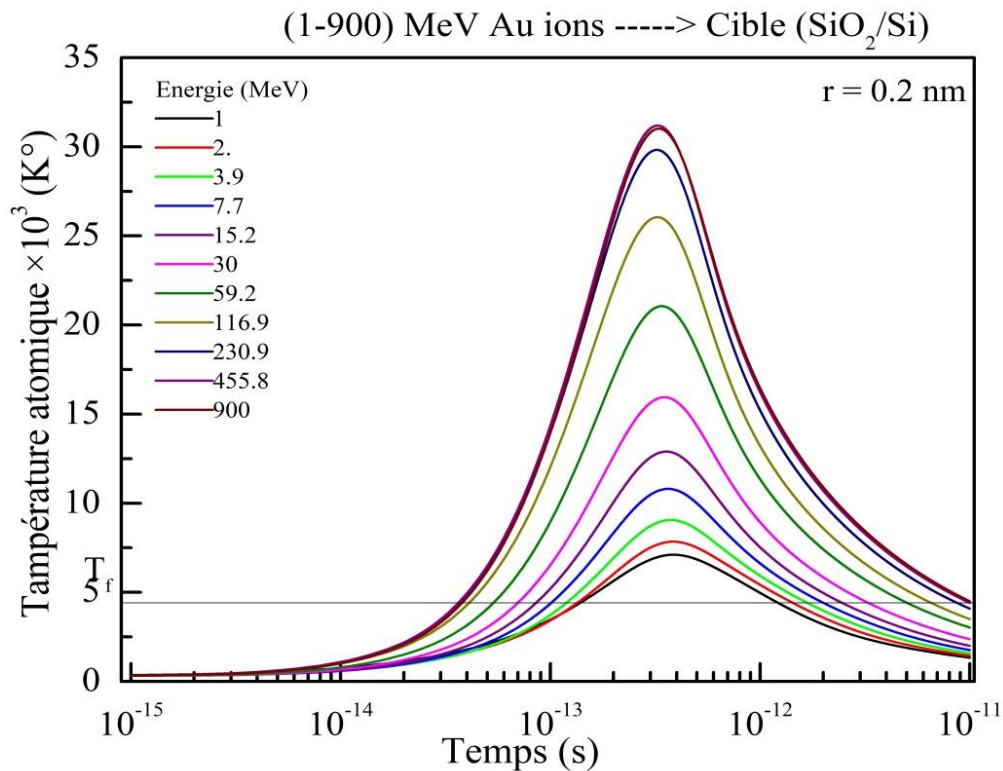


**Figure (IV-8) :** Idem que figure (IV-7) mais pour des températures atomiques  $T_a(r, t)$ .

L'évolution temporelle des profils de températures électronique et atomique dans la région hautement excitée autour du centre de la trace latente ( $r \approx 0.2$  nm) est également tracée sur les deux figures (IV-9) et (IV-10) en faisant varier l'énergie cinétique de l'ion incident de 1 jusqu'à 900 MeV. Nous pouvons observer la même chose sur ces deux figures. L'énergie de l'ion incident est transférée en premier lieu aux électrons cibles, où la température électronique atteint un maximum autour de  $t \sim 2 \times 10^{-13}$  s, puis cette augmentation est suivie par l'augmentation de la température atomique, principalement provenant du transfert d'énergie électronique par couplage électron-phonon, en atteignant son maximum après un laps de temps autour de  $t \sim 3 \times 10^{-13}$  s. Il est également à observer que les deux composantes de températures ( $T_e$  et  $T_a$ ) augmentent en fonction de l'énergie cinétique de l'ion incident. En effet, lorsque l'énergie de l'ion incident passe de 1 à 900 MeV, un facteur d'augmentation de l'ordre de 5.0 est observé pour les deux composantes de la température ( $T_e$  et  $T_a$ ).



**Figure (IV-9) :** Profil de distribution des températures électroniques  $T_e(r, t)$  en fonction du temps ( $t$ ) mais à une distance radiale ( $r = 0.2$  nm) très proche du centre de la trace latente obtenu numériquement via le modèle i-TS pour une cible SiO<sub>2</sub> en couche mince sous l'impact des ions incidents (Au<sup>+</sup>) d'énergies comprises entre 1 et 900 MeV.

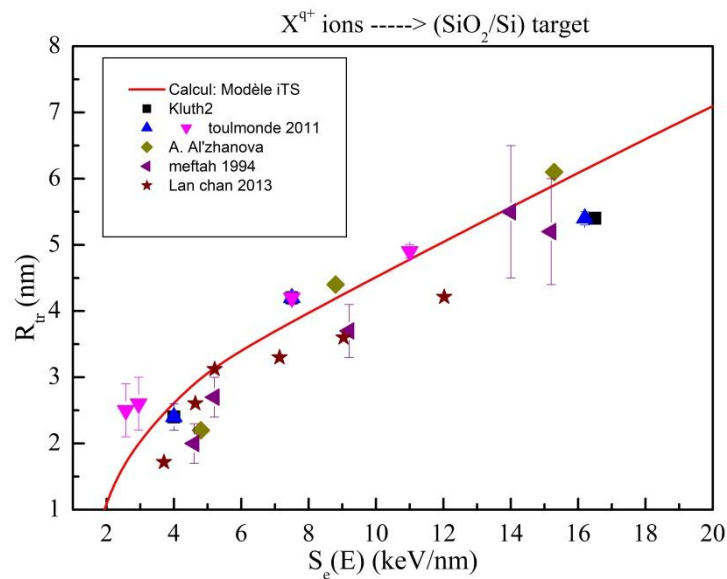


**Figure (IV-10) :** Idem que figure (IV-9) mais pour des températures atomiques  $T_a(r, t)$ .

Tous ces comportements sont similaires à ceux précédemment observés dans des calculs numériques via le modèle i-TS pour divers matériaux cibles, en particulier, le dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>) irradié aux ions lourds d'énergies du MeV [17, 44, 80, 15 et 108]. Les études précédemment publiées [17, 80 et 108] sur les mesures qualitatives des rayons des traces latentes dans le SiO<sub>2</sub> ont confirmé les mêmes tendances observées mais avec peu de différence sur la variation radiale et temporelle du profil de la température électronique et atomique. Ceci est très vraisemblablement dû à la réduction des propriétés thermo-physiques pour les cibles SiO<sub>2</sub> utilisées ici sous forme des couches minces. Comme il peut être vu également sur la figure (IV-8), la température atomique dépasse une valeur limite  $T_f$  correspondante à l'énergie nécessaire pour atteindre la phase de vaporisation ( $T_v \approx 4402 \text{ K}^\circ$ ,  $E_v \approx 0.38 \text{ eV/at}$ ) [109] autour d'une distance radiale moyenne de  $5.6 \text{ nm}$  proche de différents rayons de la trace latente expérimentale ( $R_{exp}^{tr} \sim 5.2 \text{ nm}$ , en moyenne) rapportées précédemment dans le cas d'un matériau SiO<sub>2</sub> amorphe irradié à des énergies incidentes autour de  $0.2 \frac{\text{MeV}}{u}$  ( $\sim 40 \text{ MeV}$  pour des ions Au) [91, 109].

### II.2.2. Calcul des rayons de traces latentes pour différents énergies incidents :

Pour d'autres ions lourds d'énergies différentes incidents sur le même matériau  $\text{SiO}_2$ , nous avons tracé dans la figure (IV-11) la variation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique du rayon de la trace latente ( $R_{tr}$ ). Ces valeurs numériques de  $R_t$  ont été extraites à partir des profils de températures atomiques des ions ( $\text{Au}^{q+}$ ) incidents avec des énergies comprises entre 1 et 900 MeV sur une cible mince  $\text{SiO}_2$ . Les données expérimentales des rayons de traces latentes précédemment publiées [91, 109-111 et 102] sont également incluses dans cette même figure.



**Figure IV-11 :** Variation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique des rayons de traces latentes pour différents ions lourds ( $X^{q+}$ ) incidents sur une cible  $\text{SiO}_2$  : Comparaison entre calcul i-TS et données expérimentales [91, 102, 109-111].

A travers cette comparaison, nous observons que nos valeurs numériques du rayon de traces latentes déduites du modèle i-TS sont en accord satisfaisant avec la majorité des données expérimentales en question. Bien que ces données expérimentales aient été extraites selon plusieurs techniques de caractérisation, notamment, la microscopie électronique à transmission (MET) [112, 113], la microscopie à force de balayage (SFM) [114, 115] et diffusion des rayons X aux petits angles (SAXS), les mesures expérimentales des rayons des traces latentes ne sont pas possible avec une grande précision suffisante avec les différentes techniques ci-citées [116, 11]. La trace de l'ion incident évolue non seulement avec la pénétration de l'ion incident dans la matière mais aussi radialement autour de la trajectoire de l'ion incident. L'évolution linéaire de la trace latente (c.-à-d., en fonction de la profondeur de pénétration) correspond à l'énergie linéaire déposée par l'ion lui-même dans le matériau tout au long de son parcours. Les électrons

secondaires transférés sont transportés et transfèrent également de l'énergie aux autres électrons qui s'éloignent perpendiculairement du chemin de l'ion, donc on obtient une évolution radiale le long du trajet de l'ion. Ce qui confirme la dimension radiale de la trace latente (rayon de trace) et sa géométrie cylindrique [13]. Dans le cadre du model i-TS, la détermination du rayon de la trace latente dépend principalement de la constante de couplage électrons-phonon et de l'énergie nécessaire pour faire fondre ( $E_f$ ) ou évaporer ( $E_v$ ) le matériau étudié. Dans le présent travail, le matériau cible  $SiO_2$  atteint la phase de fusion à l'énergie ( $0.28 eV/at$ ) correspondante à la température d'ébullition ( $T = 3223 K$ ). A cause de sa faible valeur de couplage électron-phonon ( $g = 3.2 \times 10^{-13} W/cm/^\circ K$ ), on peut obtenir de grands rayons, où les rayons de traces sont ceux qui correspondent au pic de Bragg (c.-à-d., proche de la température d'évaporation). Le désaccord au-dessus de cette valeur peut être expliqué selon Katz par l'augmentation des rayons delta, c.-à-d. que l'augmentation du pouvoir d'arrêt ne signifie pas nécessairement l'augmentation de la densité d'excitation près du parcours des ions mais provoque une augmentation de la gamme radiale de dépôt d'énergie.

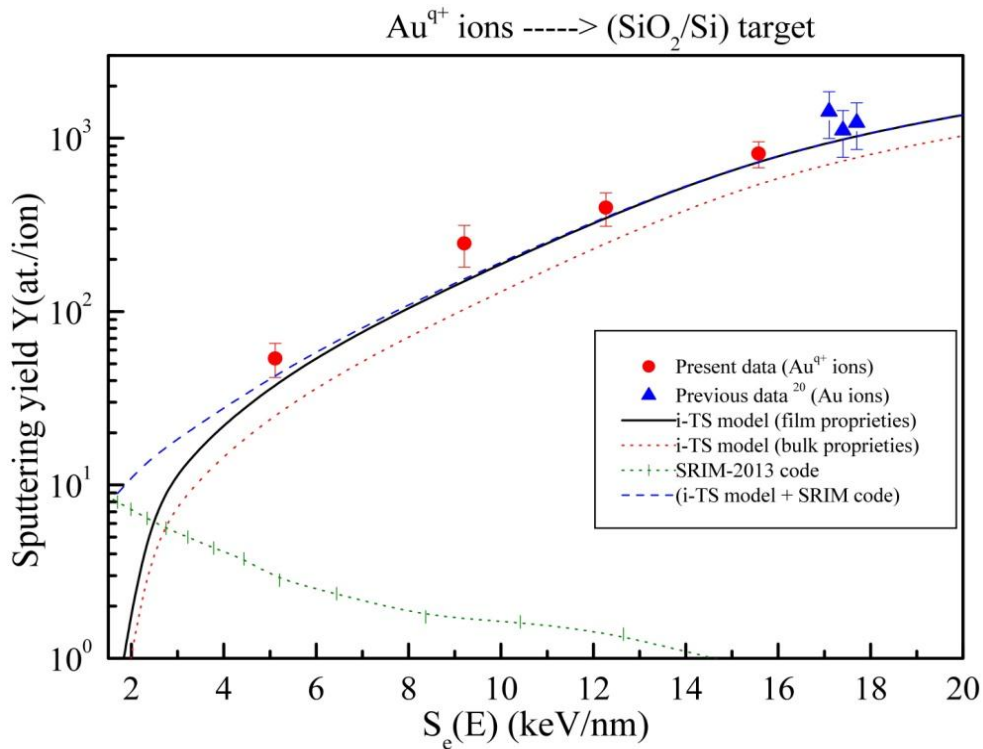
### IV.3.Comparaison des résultats expérimentaux et numériques :

#### IV.3.1. Le rendement de pulvérisation total :

Finalement, les rendements de pulvérisation expérimentaux et numériques obtenus sont tracés en fonction du pouvoir d'arrêt électronique de la cible dans la figure (IV-12) puis donnés numériquement dans le tableau (IV-3).

Incident ions (Au <sup>q+</sup> )		Stopping powers (keV/nm)		Experimental Sputtering yields	Theoretical sputtering yields (at./ion)				
energy (MeV)	Charg e (+q)	S <sub>n</sub> (E) SRIM	S <sub>e</sub> (E) CasP	$\bar{Y}_{exp}$ (at./ion)	$\bar{Y}_{i-TS}^{film}$ (S <sub>n</sub> > 0)	$\bar{Y}_{i-TS}^{film}$ (S <sub>n</sub> = 0)	$\bar{Y}_{i-TS}^{bulk}$	$\bar{Y}_{SRIM}$	$\bar{Y}_{(i-TS+SRIM)}$
10	+ 4	1.3	5.1	53.6 ± 11.9	40.4	39.2	27.0	5.4	45.7
20	+ 6	0.8	9.2	247.1 ± 66.8	160.9	160.3	100.8	3.6	164.5
30	+ 7	0.6	12.3	397.2 ± 86.9	410.9	409.1	300.3	2.8	413.7
40	+ 9	0.5	15.6	814.4 ± 139.1	793.9	791.9	595.9	2.4	796.3

**Tableau (IV-3) :** Comparaison des rendements de pulvérisation calculé numériquement via le modèle i-TS avec nos données expérimentales pour le système projectile-cible (Au<sup>q+</sup>-SiO<sub>2</sub>) à différentes énergies incidentes et différents états de charges.



**Figure (IV-12) :** Comparaison des rendements de pulvérisation calculés numériquement via le modèle i-TS avec nos données expérimentales ( $Au^{q+}$ - $SiO_2$ ) et d'autres données précédentes correspondantes [17].

Les autres données expérimentales précédentes [17] disponibles dans la littérature pour le même type d'ion incident Au, mais avec des énergies cinétiques plus élevées (190, 197 et 210 MeV) sont également incluses pour comparaison. On peut voir que nos données de rendement de pulvérisation mesurées pour les deux énergies incidentes supérieures utilisées (c.-à-d., à 30 et 40 MeV) sont en bon accord (à ~3.0 %, en moyenne) avec les résultats du modèle i-TS. Alors que pour les énergies faibles (de 10 et 20 MeV), les valeurs numériques du rendement de pulvérisation générées via le modèle i-TS s'écartent (jusqu'à 29,8 %, en moyenne) en dessous de nos données mesurées. Aussi, à une valeur plus élevée du pouvoir d'arrêt électronique, c.-à-d., autour de 17 keV/nm, on observe un accord satisfaisant (à moins de 16,9 %, en moyenne) entre nos valeurs  $Y_{i-TS}(E)$  et les données de Toulemonde et al. [102]. Cependant, dans ce travail l'influence des propriétés thermo-physiques du matériau cible sur les rendements de pulvérisation prédits via le modèle i-TS a également été étudiée. Comme on peut le voir dans le tableau (IV-3) et dans la figure (IV-12), les valeurs numériques du rendement de pulvérisation générées par le modèle i-TS décrivent bien les données expérimentales lorsqu'on utilise des valeurs d'entrée appropriées des propriétés thermo-physiques

d'une couche mince de  $\text{SiO}_2$  au lieu de celles pour un matériau massif. Plus précisément, les valeurs calculées de  $Y_{i-TS}(E)$  en prenant en considération les propriétés thermo-physiques du matériau  $\text{SiO}_2$  massif se situent entre 59,2 % et 24,4 % au-dessous de l'ensemble des données expérimentales. Par conséquent, l'utilisation des propriétés thermo-physiques appropriées des couches mince de  $\text{SiO}_2$  peut fournir des rendements de pulvérisation calculés avec un meilleur accord avec l'ensemble des données expérimentales.

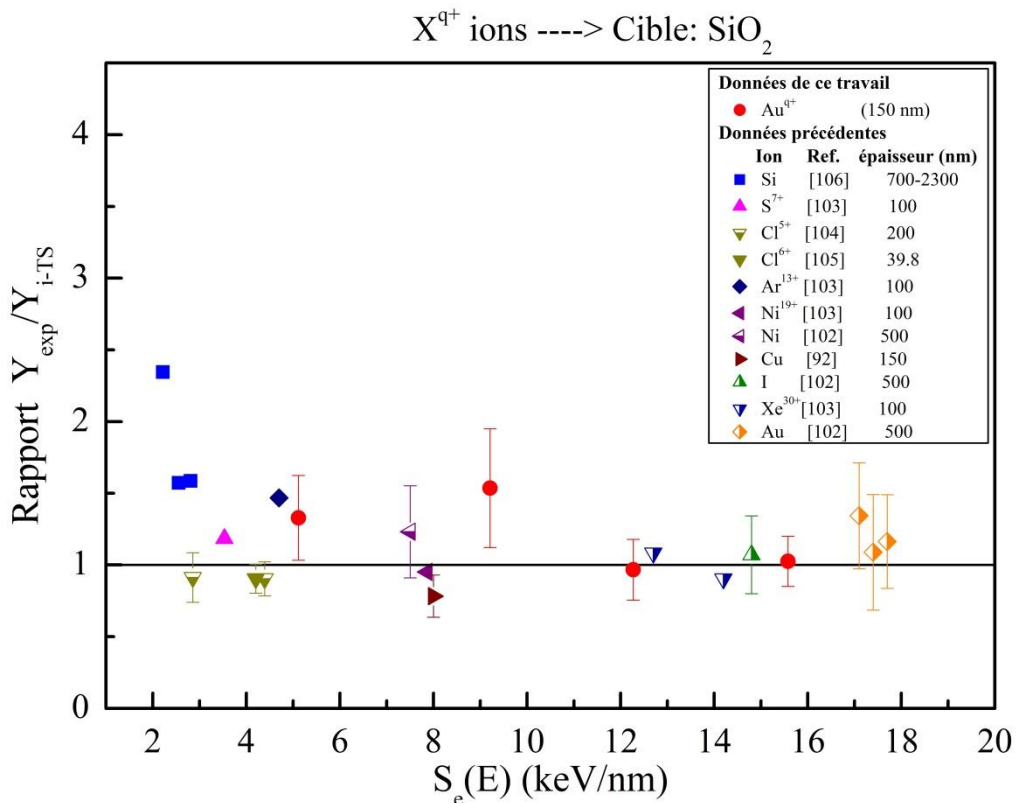
Considérons maintenant la contribution au rendement de pulvérisation calculé numériquement via le modèle i-TS en tenant compte de la perte d'énergie nucléaire due aux collisions élastiques non-linéaires, et ceci avec l'introduction de cette source d'énergie dans l'équation de diffusion de chaleur du système atomique avec ( $S_n(E) > 0$ ) et sans ( $S_n(E) = 0$ ). Comme prévu, une très petite amélioration (de  $\sim 0.3\%$ , en moyenne) des valeurs calculées  $Y_{i-TS}(E)$  due aux collisions élastiques non-linéaires est observée pour les énergies incidentes les plus élevées utilisées (c.-à-d., pour  $E > 10$  MeV), pour, tandis qu'une augmentation du rendement de pulvérisation de 2.9 % a été obtenue à la plus basse énergie utilisée de 10 MeV.

De plus, une éventuelle contribution supplémentaire au rendement de pulvérisation due aux cascades de collisions linéaires élastiques (nucléaires) à basse énergie a également été prise en compte ici en utilisant le code de simulation SRIM-2013 basé sur la méthode de Monte Carlo combinée à l'approximation des collisions binaires avec un potentiel interatomique ZBL amélioré de Ziegler et al. [28]. La simulation par le code SRIM a été effectuée en utilisant un nombre total de  $10^4$   $\text{Au}^+$  ions incidents sur l'échantillon cible ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) pour différentes énergies cinétiques allant de 1 MeV jusqu'à 900 MeV et en supposant des valeurs appropriées de trois paramètres d'entrées [28, 117]: l'énergie de liaison globale ( $U_b = 0$  eV), l'énergie de déplacement  $\{U_d(\text{Si}) = 13$  eV,  $U_d(\text{O}) = 28$  eV} et l'énergie de liaison de surface  $\{U_s(\text{Si}) = 4.7$  eV,  $U_s(\text{O}) = 2$  eV}.

Comme prévu, Les valeurs du rendement de pulvérisation  $Y_{\text{SRIM}}(E)$  sont inférieures à celles dérivées par modèle i-TS aux basses énergies et diminuer avec l'augmentation du pouvoir d'arrêt électronique sur tous les énergies explorées (voir Tableau IV-3 et FigureIV-12). De plus, la somme des deux valeurs de rendement de pulvérisation obtenues via le modèle i-TS et par SRIM donne un meilleur accord (à  $\sim 13,6\%$ , en

moyenne) avec les données mesurées pour les deux énergies inférieures utilisées (c.-à-d., pour 10 et 20 MeV).

D'autre part, nous avons également comparé nos mesures du rendement de pulvérisation avec les résultats disponibles dans la littérature dans le cas d'un matériau cible SiO<sub>2</sub> avec différentes épaisseurs et irradié avec différents types de faisceaux d'ions incidents (Si, S<sup>7+</sup>, Cl<sup>5+</sup>, Cl<sup>6+</sup>, Ar<sup>13+</sup>, Ni<sup>19+</sup>, Cu, I et Xe<sup>30+</sup>). La figure (IV-13) représente le rapport entre les résultats du rendement de pulvérisation expérimental et numérique correspondant au modèle (i-TS) en fonction du pouvoir d'arrêt électronique de la cible. On peut clairement observer sur cette figure différents écarts allant de 6.6 % à 120.5 % entre les données expérimentales précédentes et les valeurs i-TS calculées pour chaque ion incident. Les écarts sont plus importants dans le cas des valeurs faibles du pouvoir d'arrêt électronique et pour les échantillons de SiO<sub>2</sub> avec des épaisseurs supérieures à 150 nm.



**Figure (IV-13) :** Variation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique du rapport entre les rendements de pulvérisation expérimental et numérique via le modèle (i-TS). L'ensemble des données expérimentales mesurées dans ce travail et celles publiées dans la littérature [15-20 de notre papier] [92, 104-106, 120, 121] sont présentées ici.



Dans le domaine des basses énergies, l'interaction ion-solide induisant la pulvérisation est décrite par les deux processus de pertes d'énergie électronique (inélastique) et nucléaire (élastique). Par conséquent, toutes les données expérimentales du rendement de pulvérisation peuvent être bien prédites par le modèle de pointes thermiques inélastiques et élastiques (non-linéaires) complété par le code de simulation SRIM [28] en considérant, respectivement, les propriétés thermo physiques appropriées de la cible en couche mince et le processus des cascades de collisions élastiques linéaires.

Finalement, l'état de charge des ions incidents peut également influencer le rendement de pulvérisation, car il évolue avec la perte d'énergie électronique déposée dans la cible solide [15, 74, 118, 119, 123]. Cet effet a été déjà considéré auparavant lors d'une investigation expérimentale par notre groupe de recherche au CRNA dans des cibles en couches minces de bismuth irradiées par des ions lourds  $\text{Cu}^{q+}$  d'énergie cinétique de 26 MeV avec deux états de charges sélectionnés  $q$  de +1 et +7. Les résultats montrent une augmentation avec un facteur de 2.9 pour l'état de charge (+7) par rapport à celle de (+1). Dans le cas du présent travail relatif à la cible  $\text{SiO}_2$ , nous pouvons clairement observer sur la Figure (IV-13) et à titre d'exemple, un écart de l'ordre de 12.5 % entre les rendements de pulvérisation mesurés expérimentalement pour des ions  $\text{N}^{q+}$  d'énergie de 69 MeV mais avec deux états de charges différents (l'une  $q = +19$  et l'autre à l'état d'équilibre moyen  $\bar{q} = +11.99$ ). Autrement, nous avons calculé numériquement via le modèle i-TS le rendement de pulvérisation dans le cas des ions lourds  $\text{Au}^{q+}$  d'énergie de 40 MeV incidents sur la cible  $\text{SiO}_2$  utilisée dans ce travail (c.-à-d., d'épaisseur de 150 nm) et avec deux états de charges ( $q = +9$ ) et l'autre en équilibre de charges ( $\bar{q} \approx + 19.7$  [79]). Le rendement de pulvérisation calculé numériquement pour le premier état de charge sélectionné est inférieur par un facteur de 2.19 par rapport à celui obtenu dans le cas de l'état de charge en équilibre moyen. Finalement, l'étude de l'influence de la nature du projectile, notamment son état de charge, sur les rendements de pulvérisation ou sur d'autres effets d'irradiation ionique induits nécessite encore une attention particulière dans le cadre de la continuité de nos activités de recherche sur les effets d'irradiation des ions lourds dans la matière.

## CHAPITRE III :

### METHODES EXPERIMENTALES ET DISPOSITIFS D'ANALYSES

Dans le présent chapitre, nous sommes intéressés à étudier expérimentalement les effets de surface (pulvérisation) induits sur des cibles minces de dioxyde de silicium ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) déposées sur un substrat de silicium, et ceci via l'utilisation d'un faisceau d'ions lourds  $\text{Au}^{q+}$  en faisant varier son énergie cinétique incidente  $E_0$  de 10 à 40 MeV et son état de charge  $q$  de +4 à +9. Ainsi, la méthode expérimentale utilisée avec les différents dispositifs expérimentaux associés seront décrits dans ce chapitre. Ce travail expérimental a été effectué en trois phases distinctes: **(i)** Élaboration et dépôt des échantillons cibles ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) via la technique d'évaporation thermique (avec canon à électrons) ainsi que **(ii)** leur irradiation avec des faisceaux d'ions lourds délivrés par l'accélérateur TANDEM 6 MV d'iThemba LABS, **(iii)** Analyse des échantillons cibles irradiées par la technique nucléaire de rétrodiffusion de Rutherford (RBS) au niveau de l'accélérateur Van de Graaff 3.75 MV du CRNA. D'autres techniques de caractérisation de surface sont également utilisées dans ce travail, il s'agit de la Diffraction des Rayons X (DRX) et la Microscopie électronique à balayage (MEB), et ceci pour vérifier les états de surface et la microstructure des échantillons cibles avant et après irradiation ionique.

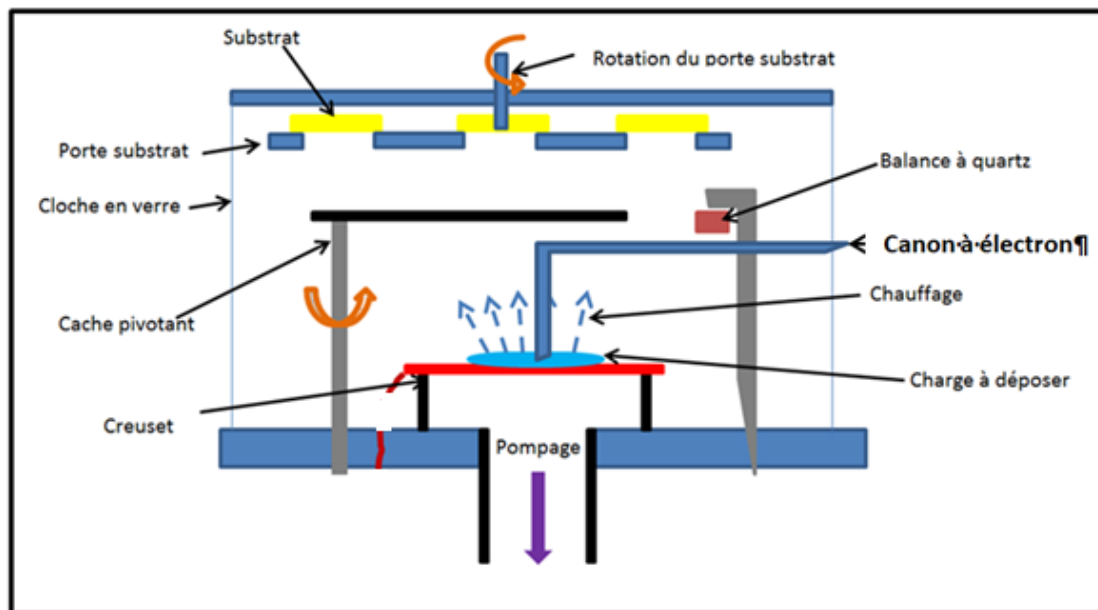
#### III.1. Préparation des échantillons cibles :

Les échantillons cibles étudiés ont été élaborés à température ambiante sous formes de couches minces ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) déposées sur des substrats de silicium, via la technique d'évaporation thermique par canon-à-électrons (e-beam) d'iThemba LABS en Afrique du Sud (voir Figure III-1). Il s'agit de placer un creuset en Tantale contenant une quantité suffisante de poudre du dioxyde de silicium de haute pureté (99.999 %). Ce creuset placé dans un bâti sous un vide poussé de l'ordre de  $\sim 3 \times 10^{-7} \text{ mbar}$ , est bombardé par un faisceau d'électrons d'énergie cinétique de l'ordre du keV. Les électrons sont émis par un filament de Tungstène chauffé à haute température (2500 – 2800  $C^\circ$ ) Ces électrons sont accélérés par un champ électrique et contrôlés grâce aux bobines magnétiques qui permettent de déplacer le point d'impact du faisceau d'électrons en balayant toute la surface du creuset.

L'énergie cinétique des électrons est convertie en énergie thermique et qui chauffe puis évapore le matériau bombardé. Cet équipement repose en pratique sur une nacelle de cuivre refroidie par une circulation d'eau afin d'éviter la conduction de la chaleur entre le porte-creuset et le matériau fondu.



**Figure III-1:** Image de l'évaporateur thermique à canon-à-électrons d'iThemba LABS (Afrique du Sud) utilisé pour le dépôt de nos échantillons cibles.



**Figure III-2:** Schéma descriptif du principe d'évaporation thermique via un canon à électrons.

La matière évaporée se dépose ainsi sur les substrats de silicium d'orientation cristallographique (100). Un quartz piézoélectrique pré-calibré qui sert à mesurer l'épaisseur des couches minces déposées, est également placé à côté des substrats de silicium (voir Figure III-2). La valeur moyenne de l'épaisseur des couches minces déposées est préalablement estimée de l'ordre de  $\sim 150 \text{ nm}$  avec une vitesse moyenne de dépôt maintenue entre  $0.6 \text{ et } 0.9 \text{ \AA/s}$ . Par la suite, ces valeurs d'épaisseurs sont vérifiées quantitativement via l'analyse par la technique nucléaire RBS (voir plus loin les prochains paragraphes).

Finalement, nous devons noter que l'évaporation de nos échantillons ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) a été précédée par une opération de nettoyage des substrats de silicium. Les produits chimiques solvants utilisés sont : le méthanol, l'acétone, le trichloréthylène, l'acide fluorhydrique (HF). Cette opération de nettoyage est suivie d'un rinçage à l'eau déminéralisée des substrats de silicium afin d'éliminer tous les contaminants et les oxydes natifs existants sur leurs surfaces.

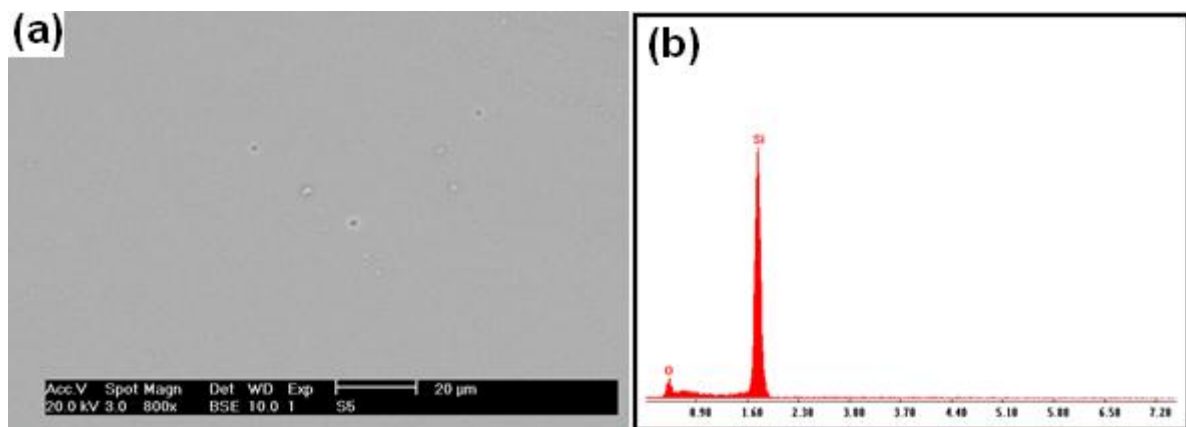
### III.2. Caractérisation en surface des échantillons cibles déposés :

Les échantillons ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) déposés ont été caractérisés via le microscope électronique à balayage (MEB) et le diffractomètre des rayons X (DRX). Ces deux techniques de caractérisation permettent de vérifier l'état de surface et la microstructure de nos échantillons avant et après irradiation ionique. En effet, l'état de surface des échantillons peut influencer sur la mesure des épaisseurs, donc sur le rendement de pulvérisation mesuré [20, 21, 22 et 90] (voir plus loin prochains paragraphes).

#### III.2.1. Analyse de l'état de surface par le MEB:

La microscopie électronique à balayage (MEB ou SEM Scanning Electron Microscopy en anglais) est une technique non destructive qui permet de produire des images en haute résolution de la surface d'un échantillon cible. C'est un outil performant souvent utilisé pour la caractérisation des couches minces en fournissant des informations sur la morphologie et les dimensions latérales des structures qui existent au niveau de leurs surfaces. Le MEB permet de balayer la surface de l'échantillon par un faisceau d'électrons en se basant sur le principe d'interaction électrons-matière, ce qui permet d'ailleurs expliquer le fort pouvoir

de résolution de cette technique comparée aux autres méthodes d'observation. Un faisceau d'électrons fin incident est focalisé sur l'échantillon cible en balayant la surface à observer qui, en réponse, réémet des électrons secondaires de basses énergies. Ces électrons seront par la suite accélérés vers un détecteur d'électrons qui récolte un signal électrique amplifié correspondant à un point d'impact sur la surface de l'échantillon. L'ensemble des signaux récoltés avec les paramètres de balayage reconstruit une image topographique de la surface de l'échantillon à observer. Cette technique d'analyse possède un plus fort grossissement (jusqu'à  $10^6$  fois pour les MEB modernes de haute résolution) avec une plus forte profondeur de champ que le microscope optique (une résolution latérale de l'ordre de  $1\text{ nm}$ ). En outre, le processus de génération des électrons secondaires peut créer un état excité dans les couches intérieures de l'atome cible suivi d'une relaxation par les électrons des couches extérieures. Cette relaxation est accompagnée par l'émission des rayons X avec des énergies caractéristiques qui peuvent être reliées à la composition chimique de la cible. L'analyse de la composition chimique de l'échantillon cible (EDX) est possible donc à travers la détection de ces rayons X émis (des rayons X caractérisés). Cette technique EDX permet d'effectuer diverses analyses qualitatives et semi-quantitatives en fonction de l'énergie, où tous les éléments à partir du bore peuvent être détectés.



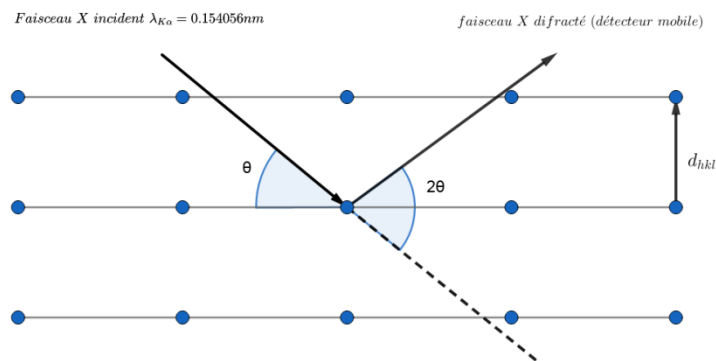
**Figure III-3 :** (a) Image MEB prise avec une résolution latérale de  $20\ \mu\text{m}$  et (b) un spectre EDX correspondant.

L'état de surface des cibles ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) non-irradiés a été observée par le microscope MEB du CRNA de marque PHILIPS (XL30) délivrant un faisceau d'électrons de  $10\ \text{keV}$ . La figure ci-dessus présente une image photographique

MEB plus un spectre EDX prises pour un échantillon cible non-irradié. Nous observons sur cette figure qu'aucune particularité n'a été observée sur les surfaces de nos échantillons, à part quelques rares petites structures granulaires de tailles de l'ordre de 200 à 500 nm. Le spectre EDX révèle la présence uniquement de deux éléments du Silicium et de l'Oxygène contenus dans la matrice  $\text{SiO}_2$  avec l'absence de toute impureté. Finalement, l'état de surface observé est donc conforme à celui envisagé pour des couches minces de  $\text{SiO}_2$  élaborées par des techniques de dépôts conventionnelles [91].

### III.3.2. Analyse de la microstructure par DRX :

La méthode d'analyse par diffraction des rayons  $X$  est non-destructive, et permet la détermination de la structure cristalline d'un échantillon cible, en le bombardant par un faisceau de rayons  $X$  monochromatique produit par une anticathode (de cuivre ou de cobalt). La technique est basée sur le phénomène de diffusion élastique des rayons  $X$  sur la matière structurée, ce qui permet d'accéder à sa microstructure. C.-à-d., l'identification des différentes phases cristallographiques grâce aux périodicités de l'arrangement atomique des cristaux constituants chaque phase.



**Figure III-4 :** Schéma descriptif de la diffraction des rayons  $X$  dans la matière structurée.

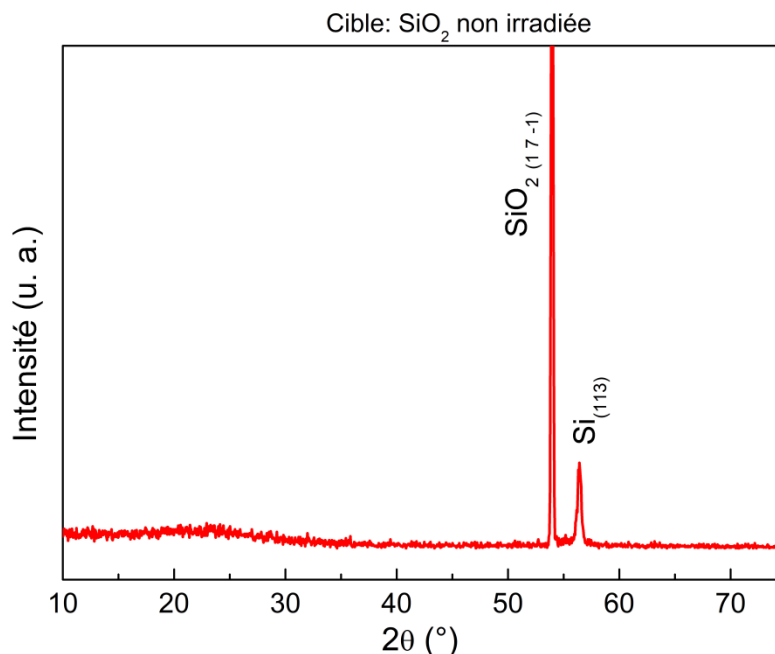
Ces périodicités sont dues à un empilement des plans identiques dans un cristal. Elles sont décrites par des longueurs correspondantes aux distances inter-réticulaires entre ces plans d'empilement  $d_{hkl}$ , données par la loi de Bragg [34] :

$$2d_{hkl} \cdot \sin\theta = n\lambda, \quad (\text{III.1})$$

où les indices de Miller  $h$ ,  $k$  et  $l$  désignent la direction considérée dans le cristal,  $\theta$  est l'angle d'incidence des rayons  $X$  par rapport à la surface de l'échantillon,  $n$

l'ordre de diffraction et  $\lambda$  représente la longueur d'onde des rayons  $X$  (voir figure III-). La diffraction des rayons  $X$  est généralement en incidence rasante avec un angle  $\theta$  de l'ordre de  $5^\circ$  à  $10^\circ$  par rapport à la surface de l'échantillon cible, ce qui permet de sonder uniquement les couches superficielles d'intérêt.

Nous avons ainsi effectué une analyse DRX pour un échantillon cible non irradié en utilisant le Diffractomètre des rayons  $X$  du Centre de Recherche Nucléaire de Birine (CRNB). Le faisceau de photons  $X$  utilisé possède des raies des transitions radiatives les plus énergétiques du Cuivre ( $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$ ) correspondantes aux longueurs d'ondes suivantes :  $\lambda_{K_{\alpha 1}} = 1.54056\text{\AA}$  et  $\lambda_{K_{\alpha 2}} = 1.54439\text{\AA}$ . Sur la Figure (III-5) est présenté le diagramme DRX obtenu avec assignation des indices de Miller ( $h k l$ ) aux pics présents en utilisant la loi de Bragg (éq. III.1) et la base de données ICSD:24259.



**Figure III-5 :** Diagramme de diffraction des rayons  $X$  (DRX) exprimant la microstructure d'un échantillon ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) non irradié.

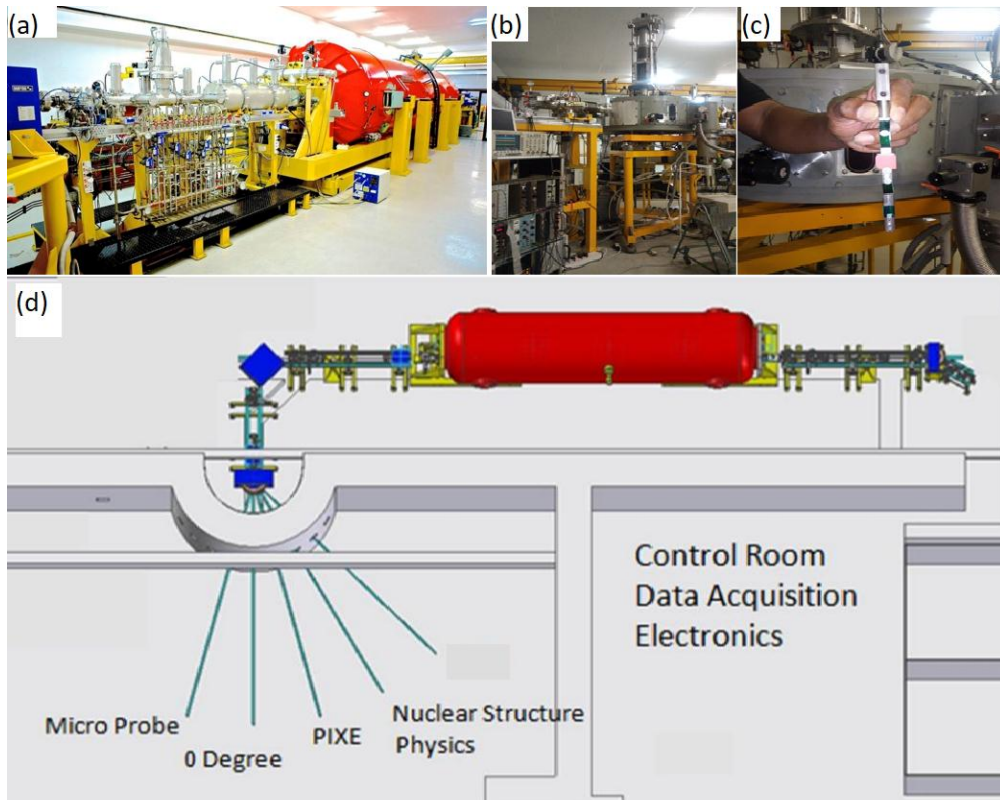
Nous observons sur le diagramme DRX présenté sur cette figure que l'échantillon  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  déposé possède une microstructure avec deux pics aléatoires ( $1\ 7\ -1$ ) et ( $1\ 1\ 3$ ) situés à un angle  $2\theta$  de  $53.96^\circ$  et  $56.41^\circ$ , respectivement. Le premier pic est intense et correspond au composé  $\text{SiO}_2$ , tandis que le deuxième petit pic est caractéristique de la nature cristalline du silicium [122].



### III.3. Irradiation des échantillons cibles aux ions lourds :

#### III.3.1. L'accélérateur TANDEM 6MV d'iThemba LABS

Les échantillons cibles ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) déposés ont été placés, par la suite, à l'intérieur d'une chambre à réaction sous vide (avec une pression moyenne de l'ordre de  $\sim 3.8 \times 10^{-6}$  mbar) connectée à une ligne de faisceau de l'accélérateur TANDEM 6 MV d'iThemba LABS Gauteng à Johannesburg en Afrique du Sud (voir Figure III-6).



**Figure III-6:** Images (a) de l'accélérateur TANDEM EN 6 MV (b) de la chambre à réaction sur la ligne de faisceau, (c) le porte-échantillons utilisé et (d) un schéma de l'accélérateur d'iThemba LABS Gauteng à Johannesburg (Afrique du Sud).

Ce dernier accélérateur linéaire est de type TANDEM, il permet d'obtenir des hautes tensions (6 MV), donc il délivre des faisceaux d'ions lourds d'énergies élevées de l'ordre du MeV. Ainsi, un ion d'état de charge  $q$  soumis à une différence de potentiel ( $V = 6 \text{ MV}$ ), va acquérir une énergie  $E = (q + 1)V$ . A titre d'exemple, un faisceau d'ions  $\text{Au}^{5+}$  accéléré aura une énergie  $E = (5 + 1) \times 6 = 30 \text{ MeV}$ . Les ions lourds délivrés sont produits par une source d'ions à pulvérisation cathodique de type SNICS (Source of Negative Ions by Cesium Sputtering). Cette source produit des ions négatifs par pulvérisation d'une surface solide contenant l'élément à ioniser, via un faisceau d'ions primaire de Césium



(Cs<sup>+</sup>). Cette méthode de pulvérisation permet l'ionisation d'une large gamme d'éléments du tableau périodique, en produisant ainsi divers faisceaux d'ions avec différents états de charge et avec des énergies cinétiques allant de quelques MeV jusqu'à quelques dizaines de MeV. Par la suite, Les ions négatifs produits par la source sont accélérés sous une tension de 20 à 50 *KV* jusqu'au milieu du tube, puis triés et sélectionnés en masse par un aimant magnétique d'analyse de haute résolution. Ils seront ensuite injectés dans l'accélérateur après avoir subis une deuxième accélération avec une tension variable de 0 à 100 *kV*. L'ajustement de cette tension permet, après la traversée du tube accélérateur basse énergie, de focaliser les ions au centre de l'accélérateur dans un tube épilueur d'électrons (stripper), en passant à travers une cible mince sous forme d'un gaz d'Azote de faible pression. Les ions positifs ainsi formés par l'interaction des ions négatifs avec le gaz, sont finalement accélérés à une différence de potentiel  $V(ddp)$  pour obtenir des ions énergétiques de l'ordre de quelques dizaines de MeV. La différence donc entre un accélérateur classique, comme celui de Van de Graaff (3.75 *MV*) du CRNA qui sera décrit également dans ce travail, et l'accélérateur TANDEM réside dans la double accélération des ions produits qui gagnent en énergie. La stabilité en énergie du faisceau produit et l'étalonnage en énergie de cet accélérateur est souvent effectuée en utilisant les deux réactions nucléaires  $^{27}\text{Al}(\text{H}, \text{n})^{27}\text{Si}$  et  $^{12}\text{C}(^{16}\text{O}, ^4\text{He})^{24}\text{Mg}$ . Dans la première réaction, il s'agit de déterminer l'énergie du faisceau de protons à partir du seuil d'émission des neutrons à 5.802 *MeV*, tandis que dans la deuxième réaction, l'énergie du faisceau  $^{16}\text{O}$  est mesurée via les énergies des particules alpha émises qui correspondent aux états excités du noyau composé excité  $^{24}\text{Mg}^*$ .

### III.3.2. Conditions et paramètres d'irradiation des échantillons cibles :

Durant ces expériences d'irradiation, nous avons utilisé un faisceau d'ions  $^{197}\text{Au}^{q+}$  de différents états de charges ( $q = +4, +6, +7$  et  $+9$ ) et d'énergies cinétiques ( $E = 10, 20, 30$  et  $40$  *MeV*, voir tableau III-1). Les irradiations ioniques ont été uniformément effectuées à température ambiante avec une tache circulaire du faisceau incident d'un diamètre de 6 *mm* et avec une incidence normale par rapport à la surface des échantillons irradiés. Afin d'éviter le chauffage

excessif ou la fusion des échantillons cibles, l'intensité du courant faisceau pendant l'irradiation a été maintenue à une faible moyenne des valeurs allant de 33 à 39 nA. Notant qu'uniquement la première irradiation à 10 MeV a été effectuée avec une valeur de 139.5 nA de l'intensité du courant-faisceau.

N° d'échantillon (SiO <sub>2</sub> /Si)	Faisceau d'ions (X <sup>q+</sup> )	Energie cinétique (MeV)	Temps d'irradiation (min)	Intensité du courant faisceau (nA)	Fluence ionique $\phi$ (10 <sup>15</sup> cm <sup>-2</sup> )
(1)	Au <sup>4+</sup>	10	10	139.5	0.462
(2)	Au <sup>6+</sup>	20	60	38.9	0.515
(3)	Au <sup>7+</sup>	30	75	33.3	0.473
(4)	Au <sup>9+</sup>	40	80	38.6	0.522
(5) (non-irradié)	-	-	-	-	-

Tableau III-1 : Paramètres et conditions d'irradiation ionique des échantillons (SiO<sub>2</sub>/Si).

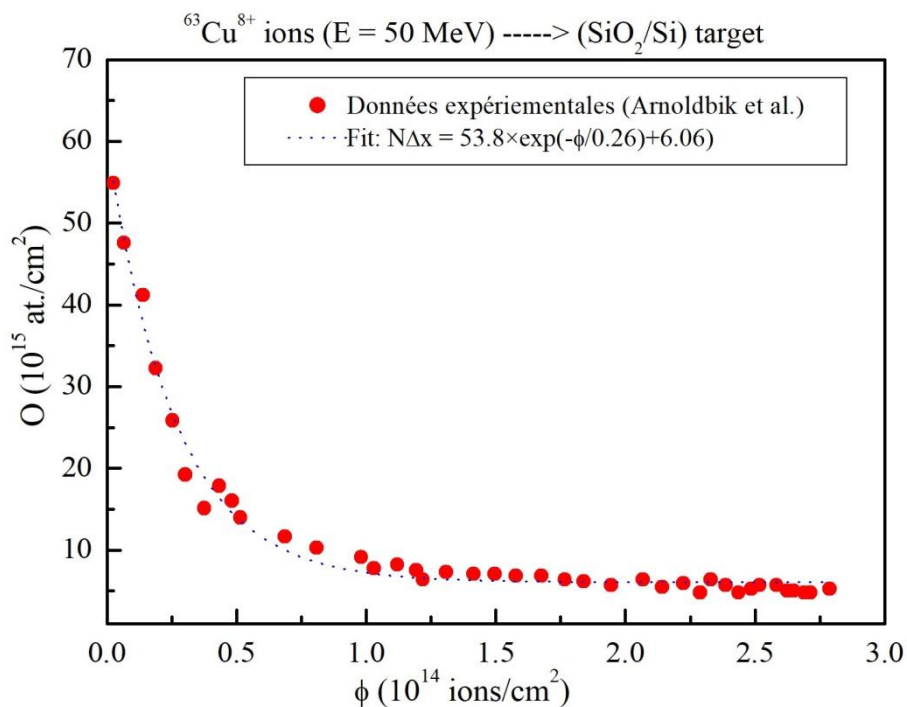


Figure III-6 : Variation en fonction de la fluence ionique de la quantité de matière d'oxygène mesurée de la couche mince de dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>/Si) irradiée par un faisceau d'ions lourds de <sup>63</sup>Cu<sup>8+</sup> d'énergie de 50 MeV [92].

On doit noter que la fluence ionique  $\phi$  est donnée en fonction du temps (t) par la relation suivante :

$$\phi(\text{Au}^{q+}/\text{cm}^2) = I_b \times \frac{t}{qeS_b}, \tag{III.2}$$

où  $I_b$  est l'intensité du courant faisceau donnée dans le tableau (III-1),  $e$  est la charge élémentaire de l'électron ( $e = 1.602 \times 10^{-19}$  Cb) et  $S_b$  est la surface de l'échantillon irradié  $S_b = \pi(d_b/2)^2 = 0.283 \text{ cm}^2$ .

Ainsi, la fluence ionique a été fixée à une valeur moyenne approximative autour de  $4.9 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  et qui correspond au régime de saturation de pulvérisation dans lequel les rendements mesurés ne dépendent pas de la fluence ionique d'irradiation. Ceci a été déjà vérifié expérimentalement par d'autres auteurs (Arnoldbik et al. [92]) en utilisant des cibles minces ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) irradiées par un des ions lourds de  $^{63}\text{Cu}^{8+}$  d'énergie de 50 MeV (voir Figure III-7). Nous observons sur cette figure une saturation de la pulvérisation des atomes d'oxygène contenus dans le dioxyde de silicium au-delà d'une valeur de fluence ionique minimale de  $10^{14} \text{ cm}^{-2}$ . Ces constatations sont similaires à ceux obtenues précédemment sur d'autres échantillons cibles, notamment, dans le cas des couches minces de bismuth irradiées aux énergies du keV et du MeV, en utilisant des faisceaux d'ions ( $\text{Ar}^+$ ,  $\text{Kr}^{35+}$  et  $\text{Cu}^{7+}$ , [20, 21, 22, 54 et 90]).

#### III.4. Caractérisation en épaisseur via la technique de rétrodiffusion de Rutherford (RBS) :

Dans ce paragraphe, nous allons décrire la technique nucléaire de spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford ainsi que les dispositifs expérimentaux d'analyse et d'équipement associés. En commençant en premier lieu par le principe de fonctionnement et la limite de détection de cette technique nucléaire et nous terminons notre paragraphe par une description succincte de l'Accélérateur Van de Graaff 3.75 MV du CRNA et le chaîne de spectrométrie (modules électroniques + détecteur, etc ...).

##### III.4.1. Principe physique de la méthode rétrodiffusion de Rutherford (RBS) :

La spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford, appelée souvent par son acronyme RBS, est une technique non destructive et directe, c.-à-d., qu'elle ne nécessite pas des échantillons de référence qu'utilisent les autres techniques nucléaires d'analyse par faisceau d'ions comme la PIXE (pour Particle Induced X rays Emission en anglais). C'est un outil important pour l'analyse des matériaux et qui donne des informations sur les épaisseurs et la répartition en profondeur des éléments d'impuretés présents dans la région de surface mince de l'échantillon cible. La RBS est basée sur le phénomène de la diffusion de Rutherford et sur la détection des particules chargées (habituellement des particules alpha avec des énergies de 1 à 3 MeV) et qui sont rétrodiffusées élastiquement par les noyaux de

l'échantillon analysé. La mesure de leurs énergies cinétiques est effectuée en plaçant des détecteurs à barrière de surface en angles arrière proche de 180°. Cette technique est largement utilisée pour l'analyse qualitative des couches superficielle des solides (identification direct des éléments). Elle permet aussi une analyse quantitative via la détermination de l'épaisseur et les concentrations des éléments présents dans l'échantillon cible, et ceci avec une bonne résolution en profondeur.

La technique de RBS est basée sur les concepts suivants :

- a) L'énergie du projectile transférée au noyau cible : décrite par le facteur cinématique  $K = \frac{E_1}{E_0}$ , c.-à-d., le rapport entre l'énergie de la particule diffusée et l'énergie de la particule incidente (voir paragraphe facteur cinématique).
- b) La probabilité des collisions à deux corps : ou concept de la section efficace différentielle de rétrodiffusion de Rutherford.
- c) La perte d'énergie moyenne du projectile qui passe dans un milieu solide : ou concept des pouvoirs d'arrêt.

#### III.4.2. Cinématique de collisions :

Nous considérons une particule incidente de masse  $M_1$ , de vitesse  $v_0$  (d'énergie cinétique  $E_0 = \frac{1}{2} M_1 v_0^2$  arrivant sur une cible au repos de masse  $M_2$  et qui sera rétrodiffusée avec un angle  $\theta$ . L'énergie de la particule rétrodiffusée devient  $E_1$ . Le rapport entre l'énergie du projectile avant et après la collision est décrit en fonction de l'angle de rétrodiffusion  $\theta$ , la masse du projectile  $M_1$  et la masse de l'atome cible  $M_2$  ([23]) comme suit :

$$K_{cin} = \frac{E_1}{E_0} = \left[ \frac{M_1 \cos \theta + (M_2^2 - M_1^2 (\sin \theta)^2)^{1/2}}{M_1 + M_2} \right]^2. \quad (III.3)$$

Durant une expérience dédiée à la technique RBS, l'angle de détection  $\theta$  et la masse de projectile  $M_1$  sont connus, donc le facteur cinématique dépend de la masse des atomes cibles  $M_2$ , ce qui permet d'identifier l'élément présent dans l'échantillon cible (analyse qualitative). Il est à observer que pour  $M_1 < M_2$ , le facteur cinématique  $K_{cin}$  a toujours une valeur minimale à  $\theta = 180^\circ$  quelle que soit la particule incidente ou cible. Nous pouvons constater donc que la meilleure résolution est obtenue pour des angles de diffusion proche de  $\theta = 180^\circ$ , soit :

$$K(\theta = 180^\circ) = 1, \quad (III.4a)$$

$$\text{tandis que pour } \theta = 90^\circ, \quad K(\theta = 90^\circ) = \frac{M_2 - M_1}{M_2 + M_1}. \quad (III.4b)$$

Pour ce dernier cas de  $\theta = 90^\circ$  et  $M_1 = M_2$ , le facteur cinématique est nul. Le facteur cinématique permet donc l'identification des impuretés des masses inconnues à l'aide des spectres donnant le nombre des particules détectées en fonction de l'énergie.

### III.4.3. Sensibilité de la technique RBS :

#### III.4.3.1. Résolution en énergie :

Dans la méthode RBS, l'identification des particules situées sur la même profondeur et possédant des masses atomiques similaires est influencée par la résolution en énergie du système de détection (détecteur + appareillage électronique). Donc, pour identifier les deux particules détectées, il faut que leur énergie soit supérieure ou égale à la résolution du détecteur. Notons que dans la méthode RBS, on utilise généralement les détecteurs à barrière de surface (basés sur la création des paires électron-trous) pour déterminer l'énergie de l'ion rétrodiffusé. La création des paires électron-trous est due au passage des ions rétrodiffusés dans le détecteur et leur nombre est proportionnel à l'énergie des ions détectés [23].

#### III.4.3.2. Résolution en masse :

Comme précédemment évoqué, la section efficace de Rutherford est proportionnelle au carré du numéro atomique de la cible  $Z_2$  (voir eq. I.2). Nous pouvons donc constater que la méthode RBS est plus efficace à détecter les éléments lourds que les éléments légers constituant la cible. Ceci est liée à l'importance de la quantité d'énergie transférée aux atomes cibles légers par l'ion incident. Lorsque la masse atomique de la cible augmente le transfert de l'énergie devient donc minimal, de telle sorte que l'énergie des particules rétrodiffusées soit proche de l'énergie initiale de l'ion incident. La résolution en masse est liée à la résolution en énergie, alors l'équation du facteur cinématique (III.3) devient :

$$\Delta E = E_0 \left( \frac{dK}{dM_2} \right) \Delta M_2, \quad (\text{III.5})$$

où  $\Delta M$  et  $\Delta E$  sont, respectivement, la résolution en masse et en énergie du détecteur. La meilleure résolution est obtenue donc pour les masses légères et pour des angles de détections  $\theta$  plus proches de  $180^\circ$  [23].

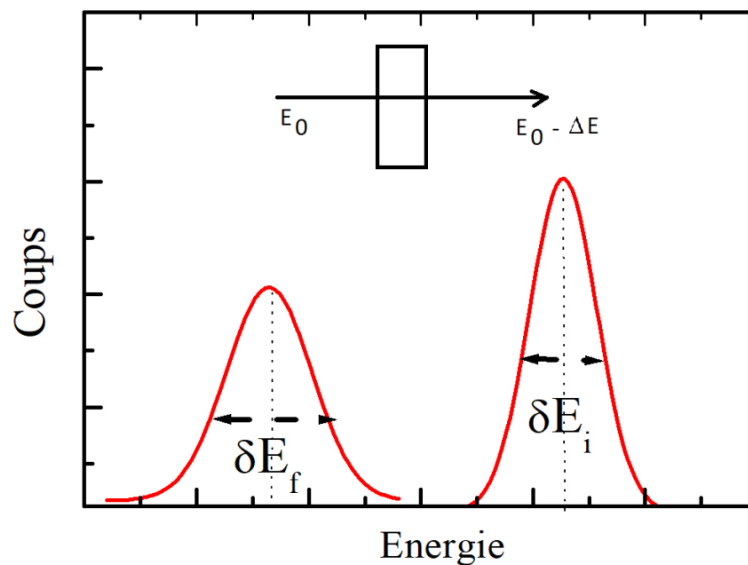
#### III.4.3.3. Résolution en profondeur :

Lors du passage d'un ion énergétique ( $\sim MeV$ ) à travers la matière, il perd son énergie essentiellement via des chocs avec les électrons des atomes cibles. L'énergie cinétique des

particules incidentes n'est plus donc la même après avoir atteint une profondeur  $\Delta x$ . La perte d'énergie du faisceau incident est distribuée autour d'une valeur moyenne  $\Delta E$ , dont l'importance augmente avec l'épaisseur  $\Delta x$ . Cette distribution dite straggling en énergie est due aux fluctuations dans le nombre et la nature des collisions rencontrées par les ions incidents lors de leur passage à travers la cible. La variance de la dispersion en énergie ne dépend que de la nature du milieu ralentisseur et de son épaisseur [33], soit :

$$\Omega_B^2 = \frac{\delta E_f^2 - \delta E_i^2}{8 \ln 2} = 4\pi(Ze)^2 \rho N_{at} Z_2 \Delta x \quad (III.6)$$

avec  $N_{at}$  est la densité atomique de la cible et  $\Delta x$  son épaisseur.  $\delta E_i$ ,  $\delta E_f$  sont, respectivement, les longueurs à mi-hauteur (FWHM) des distributions en énergie du faisceau d'ions avant et après la traversée de la cible (voir Figure III-8).



**Figure III-7 :** Dispersion en énergie "Effet du straggling en énergie" lors du passage d'un faisceau d'ions énergétique à travers une cible solide mince.

Lors d'une analyse RBS, le spectre en énergie peut être converti en spectre en profondeur à partir de la résolution en énergie du système de détection et de la dispersion en énergie :

$$\delta E_{fd} = \sqrt{(\delta E_{strag}^2 + \delta E_{det}^2)} \quad (III.7)$$

avec  $\delta E_{fd}$  représente le front de descente du pic de l'élément considéré dans le spectre RBS,  $\delta E_{strag}$  est le straggling en énergie,  $\delta E_{det}$  est la résolution de détecteur.

#### III.4.3.4. Limitation de la technique RBS :

L'une des limitations principales de la technique RBS est sa faible sensibilité pour les éléments légers poussant dans un substrat plus lourd (limite de détection 1-10 % pour  $Z < 20$ ,

0.01-1% pour  $20 < Z < 70$  et 0.01-0.001%  $Z > 70$ ). Ceci est due à la valeur faible de la section efficace pour les éléments légers, car elle est proportionnelle au carré du numéro atomique ( $Z^2$ ), et le fait que l'énergie d'une particule soit faible quand elle est rétrodiffusée à partir d'un atome léger. En effet, le signal arrivant des éléments légers sera masqué par celui des éléments lourds dans le spectre RBS. On peut régler ce problème en appelant une autre technique spectrométrique d'analyse par réactions nucléaires (NRA) sur l'élément léger considéré ou opter pour la même la technique RBS mais en mode canalisé (RBS-Channeling, [23]).

#### III.4.4. Dispositif expérimental associé à la technique RBS :

La RBS est une technique nucléaire d'analyse par faisceau d'ions associée impérativement à un accélérateur de particules, en plus d'une chaîne de spectrométrie contenant, notamment, un détecteur semi-conducteur généralement à barrière de surface et des modules électroniques associés. Dans ce paragraphe, nous allons décrire brièvement l'accélérateur Van de Graaff du CRNA ainsi que le dispositif expérimental associé à la technique RBS.

##### III.4.4.1. L'accélérateur Van de Graaff (V.d.G.) :

L'accélérateur Van de Graaff, de tension nominale de 3.75 MV, est une installation nucléaire en exploitation au CRNA qui délivre des faisceaux des particules chargées (protons, deutons ou particules alpha) d'énergies comprises entre 900 keV et 3.75 MeV avec une précision de 0.1 % et d'intensité de courant variable de quelque nA jusqu'à quelques  $\mu A$ . Cet accélérateur est équipé d'un générateur de courant continu de tension de quelques dizaines de kilovolts (jusqu'à ~50 kV) et qui Il génère des charges électriques. Ces charges sont capturées par une courroie isolante en caoutchouc et transportées jusqu'à l'une des électrodes de l'accélérateur. Le V.d.G. est également équipé d'une source d'ions où un gaz ( $H_2$ , ou  $D_2$ , ou He) est introduit pour être ionisé par un champ électrique de haute fréquence (136 MHz) fourni par un oscillateur HF. Une première accélération des ions est assurée par un champ magnétique fixe, puis une deuxième accélération via un champ électrique de 30 kV, en fournissant finalement un faisceau d'ions continu à la sortie du tube accélérateur. Pour éviter la divergence des particules du faisceau entre la sortie du tube accélérateur et les différentes cibles, des lentilles électromagnétiques quadripolaires et de diaphragmes sont disposés le long du trajet du faisceau à des endroits bien déterminés. Une première

lentille est placée sur la partie verticale du trajet et focalise le faisceau au foyer objet de l'aimant d'analyse de 90° (voir Figure III-8). Cet aimant, non seulement dévie le faisceau du plan vertical vers le plan horizontal mais assure la sélection des particules du faisceau en énergie et en masse. Toute la canalisation entre la source d'ions et la cible est maintenue sous un vide de l'ordre de 10<sup>-6</sup> mbar assuré par des pompes à diffusion installées en différents points de la canalisation. Après l'aimant d'analyse, le faisceau est focalisé par une lentille électromagnétique quadripolaire, puis via un autre aimant de déviation (Switch) qui dirige le faisceau vers l'une des trois extensions de faisceau existantes (centrale : 0°, droite : + 15° et gauche : -15°, voir Figure I-10).

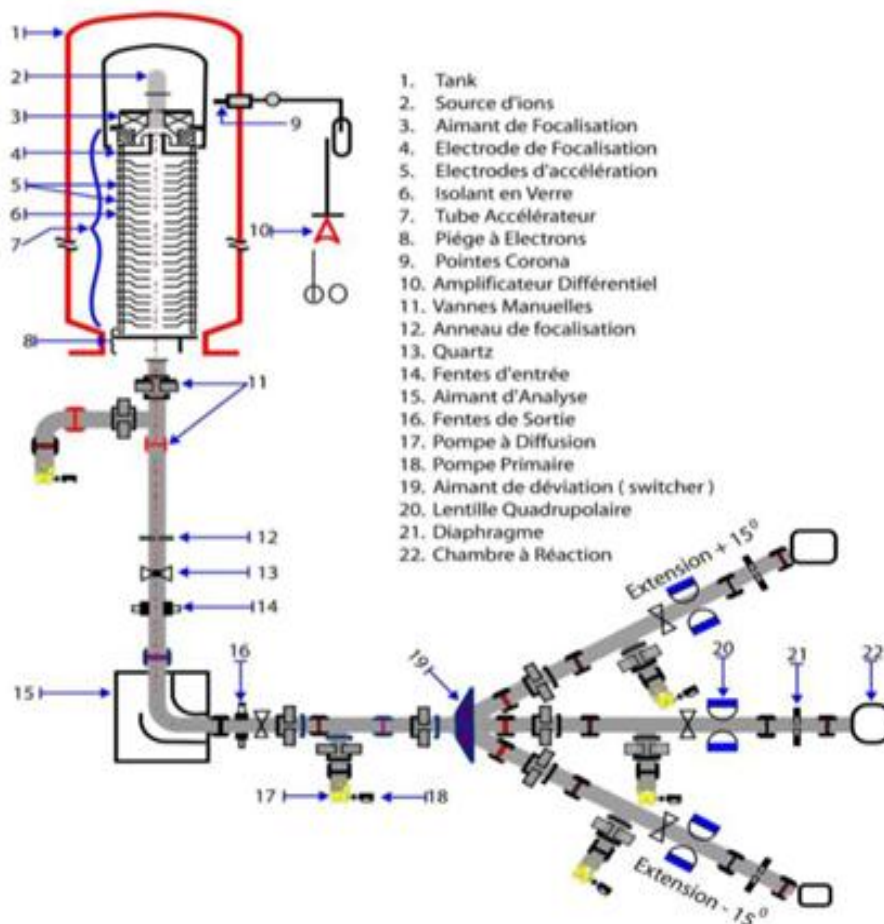


Fig. III-8: Schéma descriptif de l'accélérateur Van de Graaff 3.75 MV du CRNA.

#### III.4.4.1.1. Etalonnage en énergie de l'accélérateur V.d.G. :

L'énergie du faisceau d'ions sortant de l'aimant d'analyse est donnée par la relation suivante en fonction du champ magnétique  $B$  :

$$E = \frac{qr^2B^2}{2m} \quad (\text{III.8})$$



où  $r$ ,  $q$  et  $m$  sont, respectivement, le rayon de courbure, la charge et la masse de l'ion incident. La mesure précise du champ magnétique à l'intérieur de l'aimant d'analyse permet de déduire l'énergie du faisceau des particules et elle se fait à l'aide d'un gaussmètre numérique, la fréquence  $f$  affichée sur cet appareil est proportionnelle au champ magnétique  $B$  :

$$f = k \times B \quad (\text{III.9})$$

où  $k$  est une constante liée à la géométrie de l'aimant d'analyse. En substituant l'équation (III.8) dans l'équation (III.9), on obtient l'expression de l'énergie du faisceau en fonction du carré de la fréquence :

$$E = \frac{qr^2}{2mk^2} f^2 = Af^2. \quad (\text{III.10a})$$

Il suffit donc de connaître avec précision la fréquence  $f$  à la résonance, pour connaître la valeur de l'énergie du faisceau sortant. Cette dernière relation peut être réécrite sous la nouvelle forme suivante :

$$E = Af^2 + Bf + C, \quad (\text{III-10b})$$

en introduisant des termes correctifs liés à l'incertitude sur le rayon de courbure et le champ magnétique. Il est évident que cette relation est liée à une géométrie donnée (le faisceau incident, l'analyseur magnétique et la fente de focalisation). Les coefficients  $A$ ,  $B$  et  $C$  sont alors déterminés à chaque fois qu'on modifie l'un des paramètres constituant cette géométrie.

On est donc appelé à effectuer un étalonnage en énergie de l'accélérateur Van de Graaff par la détermination des paramètres  $A$ ,  $B$  et  $C$  de la relation (III.8b) reliant la fréquence à l'énergie en utilisant des réactions nucléaires résonantes bien connues comme par exemple la réaction suivante :  $^{19}\text{F}(p, \alpha\gamma)^{16}\text{O}$ ,  $^{25}\text{Mg}(p, \gamma)^{26}\text{Al}$ ,  $^{14}\text{N}(p, p)^{14}\text{N}$  et  $^{20}\text{Ne}(p, p)^{20}\text{Ne}$ . Le dernier étalonnage de l'accélérateur a été effectué avec la réaction de capture des protons par le Fluor  $^{19}\text{F}$  en étudiant différentes résonances dans l'intervalle d'énergie 1 et 2 MeV (872.11, 1140.0, 1283.0, 1347.0, 1694.0 et 1949.0 keV).

#### III.4.4.2. La chambre à diffusion

A la sortie de l'accélérateur, le faisceau d'ion pénètre dans une chambre à diffusion sous forme d'une enceinte cylindrique en acier inoxydable de 60 cm de diamètre, située à l'extrémité de l'extension centrale (voir Fig. III.10).



Fig. III-10 : Une vue intérieure de la chambre à réaction de l'accélérateur du CRNA.

Cette chambre est maintenue sous vide de l'ordre de  $2 \text{ à } 4 \times 10^{-6} \text{ mbar}$  assuré par un pompage primaire (jusqu'à  $10^{-2} \text{ mbar}$ ) puis secondaire au-delà de cette valeur de pression. La chambre en question contient deux plateaux mobiles pour supporter deux détecteurs de type barrière de surface. Le porte échantillon vertical pouvant supporter 4 à 8 échantillons cibles est positionné au milieu de la chambre.

#### III.4.4.3. La chaîne de détection :

La chaîne de détection est composée de plusieurs éléments et modules électroniques assurant des conditions optimales de l'expérience, à savoir, un détecteur à barrière de surface, un préamplificateur de charge, un amplificateur et une carte MCB (voir figure III.11).

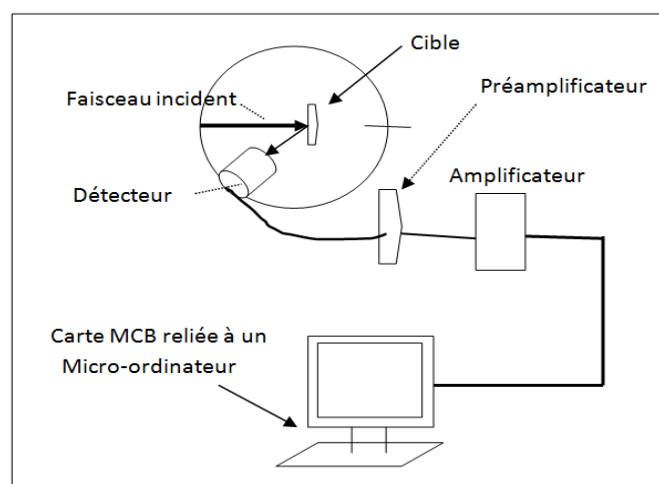


Figure III.11 : Schémas descriptif de la chaîne de détection.

Le premier élément de la chaîne est un détecteur solide à barrière de surface en silicium. Les ions rétrodiffusés sur la cible sont ainsi collectés par le détecteur en perdant une partie de leurs énergies via des collisions inélastiques avec les électrons cibles. Et chaque ion pénétrant dans le détecteur va produire des paires électron-trou. Ces paires sont détectées en appliquant un voltage à travers le détecteur, ce qui permet une mesure effective de l'énergie de l'ion incident. Le signal électrique venant du détecteur passe par un préamplificateur de charge qui le met en forme en délivrant ainsi une impulsion de tension proportionnelle à la charge  $Q(E)$  récoltée. Ce signal délivré avec une amplitude relativement faible (une dizaine de mV par MeV) est ensuite amplifié (via un amplificateur) à quelques *Volt* avant d'être analysé en le multipliant par une constante dite le Gain, le signal donné est de forme Gaussienne avec une amplitude linéaire. Finalement, le signal physique amplifié est converti vers un signal analogique (un spectre en canaux) via une carte électronique hardware intégrée au PC. L'ensemble des nombres de coups en fonction des canaux constitue un spectre RBS. Il est à noter que dans la présente expérience, nous avons utilisé un détecteur PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon) de marque CANBERRA (Model PD25-11-300AM). Ce détecteur est caractérisé par une énergie de résolution de 15 *KeV* et une tension de polarisation +60 *Volts*. Sa surface active est de l'ordre de 25  $mm^2$  et une épaisseur de l'ordre de 300  $\mu m$ . Ce type de détecteur est plus adapté pour la détection des particules légères ( $H^+$ ,  $He^+$ ).

#### III.4.4. Etalonnage de la chaîne de détection pour l'analyse RBS :

Le spectre expérimental obtenu à partir du détecteur associé à la chaîne de détection est sous forme de canaux. L'étalonnage en énergie de cette chaîne est relié au numéro de canal  $C$  par une fonction linéaire de type :

$$E(KeV) = a \times C + b \quad (II.11)$$

où  $a(KeV/Canal)$  et  $b(KeV)$  sont des coefficients d'ajustement déterminés à partir de la droite d'étalonnage. L'abscisse indique le numéro de canal de la surface du pic de l'élément considéré et l'ordonnée indique la masse atomique ou l'énergie de rétrodiffusion  $E = K_{cin} \times E_0$ . Les deux paramètres  $a$  et  $b$  jouent un rôle très important dans la simulation par le code SIMNRA [93] qui consiste à introduire les conditions initiales de l'expérience pour obtenir un spectre théorique similaire à celui obtenu par l'expérience (voir le prochain paragraphe).

### III.4.5. Détermination de l'épaisseur des cibles via la cinématique de collisions :

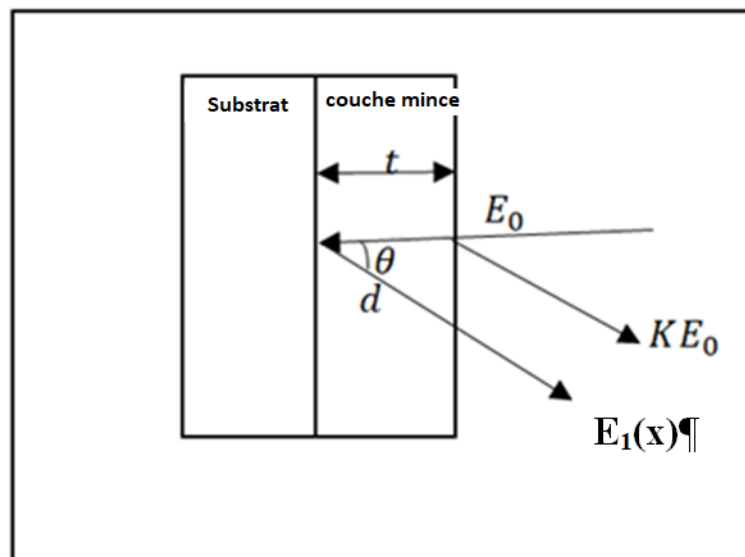
Afin de d'analyser les spectres RBS obtenus expérimentalement, on est principalement appelé à utiliser la cinématique de collision propre à la méthode de rétrodiffusion de Rutherford (RBS), en plus de la perte d'énergie dans la cible de couche mince à étudier. A cet effet, si on considère un faisceau d'ions incident sur une cible en couches minces de ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) déposées sur un substrat de silicium. Les ions incidents (dans notre cas des alphas ou  $\text{He}^+$ ) de masse  $M_1$  et d'énergie  $E_0$  arrive sur la cible de masse  $M_2$  et au repos. Ils seront rétrodiffusés et détectés à un angle de  $165^\circ$  (voir Figure III-12). Leur énergie à la surface de la cible est donnée par la relation suivante :

$$E_1(0) = E_0 \times K_{cin} \quad (\text{III.12})$$

où  $K_{cin}$  est le facteur cinématique donné par la relation (III.3). Tandis que les ions qui pénètrent en profondeur dans la cible à une distance  $x$ , seront détectés à la sortie de la cible avec une énergie cinétique donnée par la relation suivante :

$$E_1(x) = K_{kin} \left[ E_0 - \left. \frac{dE}{dx} \right|_{E_0}^{All.} \times t \right] - \left. \frac{dE}{dx} \right|_{K_{cin}E_0}^{ret.} \times \frac{t}{\cos \theta'} \quad (\text{III.13})$$

où  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_{in}^{Au}$  et  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_{out}^{Au}$  sont, respectivement, les pertes d'énergies moyennes par unité de parcours à l'aller et au retour dans la cible de couche mince.



**Figure III-12 :** Schéma descriptif du processus de rétrodiffusions des ions sur une couche mince.

La densité surfacique  $Nt$  (ou épaisseur linéaire  $t$ ) de la couche mince peut être calculée à partir de la différence entre les deux énergies  $E_1(0)$  et  $E_1(x)$  selon la formule suivante :

$$Nt = \frac{K_{cin}E_0^{-E_1}(x)}{K_{cin} \times \left. \frac{dE}{Ndx} \right|_{E_0}^{all} + \frac{1}{\cos\theta} \times \left. \frac{dE}{Ndx} \right|_{K_{cin}E_0}^{ret.}} \quad (III-14a)$$

où  $N$  est la densité atomique de l'élément. Nous définissons la quantité  $[\bar{S}_e]$  comme étant le pouvoir d'arrêt moyen dans la cible de couche mince, soit :

$$[\bar{S}_e] = K_{cin} \times \left. \frac{dE}{Ndx} \right|_{E_0}^{all} + \frac{1}{\cos\theta} \times \left. \frac{dE}{Ndx} \right|_{K_{cin}E_0}^{ret.} \quad (III-14b)$$

A partir de ces deux équations de cinématique de collisions, nous pouvons donc déterminer approximativement la densité surfacique (ou l'épaisseur linéaire) de la couche mince à étudier.

#### III.4.5.1. Simulation des spectres RBS via le code SIMNRA :

D'autre part, il existe aussi une autre manière plus usée pour analyser les spectres RBS expérimentaux, et ceci via des logiciels ou des codes de simulation dédiés à l'analyse par faisceau d'ions. Citons à titre d'exemple, le code SIMNRA, qui peut nous permettre d'obtenir des informations quantitatives plus précises, comme l'épaisseur et la concentration des éléments présents dans l'échantillon cible à étudier. Ainsi, pour l'analyse de nos spectres RBS expérimentaux, nous avons utilisé ce dernier code largement utilisé dans la littérature ces dernières années, par le fait de sa souplesse de manipulation et la précision des résultats qui donne ainsi que sa bibliothèque de bases de données périodiquement mises à jour. Ce logiciel de simulation développé par Mayer et al. [93] est basé sur le concept de la cinématique de collision (facteur cinématique), de la section efficace de rétrodiffusion de Rutherford et les tabulations semi-empiriques des pouvoirs d'arrêt des ions dans la matière. Son principe de base comme les autres logiciels est un algorithme qui génère un spectre théorique qui tient en compte les conditions initiales de l'expérience, telles que l'énergie de faisceau incident, les constantes de calibrations de la chaîne de détection, l'angle solide, l'angle d'incidence et de détection, la résolution de système de détection ainsi que la matrice des éléments constituant la cible à analyser.

La Figure (III-13) montre la géométrie de rétrodiffusion utilisée par ce logiciel de simulation. La géométrie utilisée inclut les angles d'incidence ( $\alpha$ ), de rétrodiffusion ( $\beta$ ) et de détection ( $\theta$ ) et qui sont reliés par la relation suivante :

$$\alpha + \beta + \theta = 180^\circ \quad (III-15)$$

Finalement, l'évaluation précise des épaisseurs et des concentrations des éléments présents dans la cible est obtenue alors via la superposition (ou l'ajustement) du spectre théorique sur le spectre expérimental.

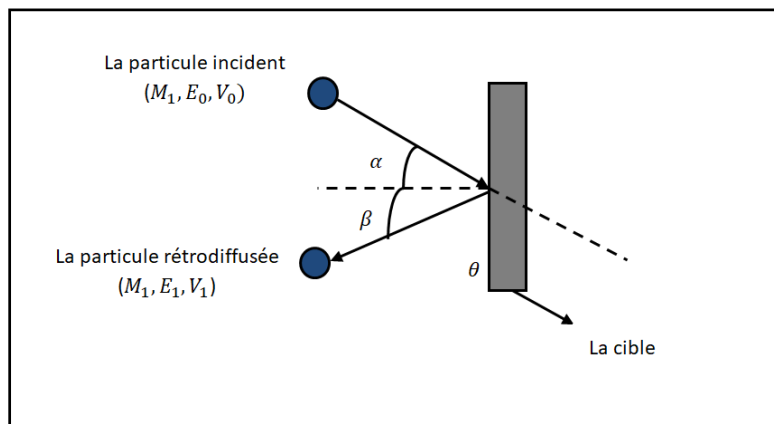


Fig. III- 13 : Schéma descriptif de la géométrie utilisée par le code SIMNRA [93].

### III.5. Détermination expérimentale du rendement de pulvérisation :

Plusieurs méthodes et procédures expérimentales ont été publiées dans la littérature pour la mesure du rendement de pulvérisation, elles peuvent être résumées sur la base des trois phénomènes suivants :

- (i) Décroissance du poids (de la masse) ou de l'épaisseur de l'échantillon cible ;
- (ii) Accumulation des particules pulvérisées sur un collecteur ;
- (iii) Détection directe des particules pulvérisées par des techniques de spectrométrie de masse.

Ces procédures expérimentales font appel à différentes techniques d'analyse, de caractérisation et de détection qui permettent la mesure directe ou indirecte du rendement de pulvérisation. Nous citons en premier lieu les techniques nucléaires d'analyse par faisceau d'ions, comme la RBS, la NRA ou ERDA (Elastic recoil Detection Analysis) utilisées surtout pour les deux premiers phénomènes cités ci-dessus. Les autres méthodes sont celles basées sur la spectroscopie d'ionisation ou d'excitation (fluorescence) induite par laser [94-97]. Pour les méthodes basées sur la décroissance de la masse ou de l'épaisseur, on procède généralement à mesurer le poids ou l'épaisseur de l'échantillon cible avant et après irradiation ionique, et la différence du poids ou de l'épaisseur est supposée proportionnelle au rendement de pulvérisation. Ces méthodes sont relativement simples car elles font appel à une microbalance dans le cas de la mesure du poids de l'échantillon irradié et la

technique nucléaire RBS pour la mesure de son épaisseur [98, 99, 100]. Concernant la deuxième approche basée sur la collection des particules pulvérisées sur un capteur sous forme de feuille mince, qui doit être composé d'un élément plus léger que les espèces pulvérisées. Ceci pour éviter les effets d'interférence pendant l'analyse. Après irradiation ionique, le capteur contenant une couche très mince des particules pulvérisées est également analysé par des techniques de faisceaux d'ions, comme la RBS ou ERDA [98, 99]. Cette méthode présente un inconvénient dû au fait que les particules collectées sur le capteur peuvent être détachées pendant l'analyse RBS ou ERDA. Egalement, le coefficient d'adhérence des particules pulvérisées est inconnu pour les plupart des matériaux, ce qui influe directement sur le rendement de pulvérisation mesuré. Il faut également citer les méthodes basées sur l'utilisation des capteurs sous forme de microbalance (un quartz en cristal). Elles permettent des mesures directes et extrêmement sensibles du rendement de pulvérisation [100]. Ces méthodes de microbalance ne sont pas adaptées aux matériaux massifs ou pour des mesures de distribution angulaire du rendement de pulvérisation. De plus, les irradiations avec des ions lourds rapides endommagent le cristal de quartz, et pour les matériaux à faibles rendements de pulvérisation, l'augmentation de masse due à l'implantation du projectile peut influencer sur la mesure du rendement de pulvérisation induite [101].

Finalement, parmi toutes ces méthodes et procédures expérimentales, notre choix a été porté sur le phénomène de réduction d'épaisseur via l'analyse RBS [22, 90]. C'est une méthode moins coûteuse, directe et facile à mettre en œuvre. Il s'agit d'irradier l'échantillon cible par faisceau d'ions lourds et de l'analyser par la technique RBS pour mesurer la réduction de son épaisseur après irradiation. De plus, l'analyse RBS permet également de caractériser l'échantillon cible en détectant des possibles impuretés qu'il contient et sans le perturber par une érosion ionique (méthode non destructive). D'autre part, pour des mesures de rendement de pulvérisation fiables et reproductibles, la surface de l'échantillon cible doit être homogène, lisse (faible rugosité et absence d'impuretés) et possédant de petits grains aléatoirement orientés (absence de texture dans sa structure cristalline). Et c'est pour ces raisons, que nous avons caractérisé nos échantillons cibles par la microscopie MEB et la Diffraction des rayons X (DRX).

## CONCLUSION GÉNÉRALE

Dans le présent travail, la pulvérisation en surface induite par des ions lourds  $\text{Au}^{q+}$  ( $q = +4, +6, +7, +9$ ) aux énergies (10-40) MeV sur un matériau cible en couche mince de dioxyde de silicium ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) déposé sur un substrat de silicium, a été étudiée expérimentalement et numériquement via une approche théorique modifiée du modèle de pointes thermiques inélastiques (i-TS). Le calcul et le traitement numérique dans le cadre de ce modèle a été effectué en faisant une étude exhaustive sur tous les paramètres d'entrée régissant le ralentissement des ions lourds dans la matière et les propriétés thermo-physiques du matériau solide bombardé. Plus précisément, nous avons ainsi élucidé différents aspects, notamment, ceux liés à la détermination précise de la distribution radiale de la perte d'énergie électronique et nucléaire déposée tout en tenant compte des propriétés thermo-physiques réduites du matériau mince irradié, comme la capacité calorifique et la conductivité thermique. D'autres aspects ont également été tenus en compte, en particulier, ceux relatifs à la dépendance du pouvoir d'arrêt électronique des états de charges sélectionnés des ions lourds rapides dans la matière où le code de simulation CasP 5.2 a été utilisé.

Au plan expérimental, nous avons en premier lieu déposé par évaporation thermique des échantillons cibles ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) sur des substrats de silicium, et qui ont été, par la suite, irradiés par un faisceau d'ions lourds ( $\text{Au}^{q+}$ ) d'énergies comprises entre 10 et 40 MeV et avec différents états de charges correspondantes. Le faisceau utilisé est délivré par l'accélérateur Tandem 6 MV d'iThemba LABS (Johannesburg en Afrique du Sud). Les échantillons irradiés ont été par la suite analysés via la technique de rétrodiffusion de Rutherford (RBS) en utilisant un faisceau d'ions ( $\text{He}^+$ ) d'énergie fixe de 2 MeV délivré par l'accélérateur Van de Graaff 3.75 MV du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (C.R.N.A.). La détermination expérimentale des rendements de pulvérisation a été effectuée en utilisant une méthode plus adaptée basée sur le phénomène de changement d'épaisseur de la cible après irradiation ionique. Les densités surfaciques (ou épaisseurs linéaires) ont été évaluées via l'analyse des spectres RBS obtenus en utilisant le code de simulation SIMNRA. L'état de surface et la microstructure des échantillons cibles ont été également étudiés et contrôlés en employant d'autres



## CONCLUSION GÉNÉRALE

---

techniques d'analyse et de caractérisation complémentaires comme le microscope électronique à balayage (MEB) et la diffraction des Rayons X (DRX).

Finalement, les résultats expérimentaux du rendement de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique ont été confrontés à ceux obtenus par calcul numérique via le modèle i-TS et le code de simulation numérique SRIM-2013. D'autres données expérimentales du rendement de pulvérisation relatives au même système projectile-cible ( $\text{Au}^{q+}\text{-SiO}_2$ ) et bien d'autres systèmes avec différents types de faisceaux d'ions ( $\text{Si}^{q+}$ ,  $\text{S}^{q+}$ ,  $\text{Cl}^{q+}$ ,  $\text{Ar}^{q+}$ ,  $\text{Ni}^{q+}$ ,  $\text{Cu}^{q+}$ ,  $\text{I}^{q+}$  et  $\text{Xe}^{q+}$ ) ont été également incluses dans cette comparaison. Comme première observation, les résultats expérimentaux tracés en fonction du pouvoir d'arrêt électronique montrent des rendements de pulvérisation qui augmentent avec l'augmentation de la perte d'énergie électronique, en évoluant avec une loi en puissance de ( $Y \propto S_e^{2.89}$ ). Cette valeur de loi en puissance est en bon accord avec celle précédemment obtenue ( $Y \propto S_e^3$ ) par d'autres auteurs [104-106] dans le cas du même système projectile-cible ( $\text{Au}^{q+}\text{-SiO}_2$ ). Nous avons observé par la suite que nos données expérimentales et les autres données expérimentales sont en bon accord avec les valeurs numériques générées via le modèle i-TS supplémenté par le code de simulation SRIM basés, respectivement, sur des collisions électroniques inélastiques et non-linéaires élastiques (pointes thermiques) ainsi que sur des cascades de collisions linéaires élastiques. La synergie entre ces différents processus traités a été également étudiée et discutée lors de la comparaison des données expérimentales aux données numériques du rendement de pulvérisation.

Comme perspective, cette investigation théorique et expérimentale nous a ouvert encore notre champ de vision sur d'autres phénomènes liés aux effets d'irradiations ioniques induits dans d'autres matériaux de natures différentes comme les polymères et les échantillons de tissus biologiques.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] Gegier, H., & Marsden, E. (1909). On a diffuse reflection of the  $\alpha$ -particles. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 82(557), 495-500.
- [2] Du, B. X. (2005). Effects of atmospheric pressure on dc resistance to tracking of polymer insulating materials. *IEEE transactions on dielectrics and electrical insulation*, 12(6), 1162-1171.
- [3] Pakarinen, O. H., Djurabekova, F., & Nordlund, K. (2010). Density evolution in formation of swift heavy ion tracks in insulators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 268(19), 3163-3166.
- [4] Kanjilal, D. (2001). Swift heavy ion-induced modification and track formation in materials. *Current Science*, 1560-1566.
- [5] Komarov, F. F. (2003). Defect and track formation in solids irradiated by superhigh-energy ions. *Physics-Uspexhi*, 46(12), 1253.
- [6] Szenes, G. (2020). Materials parameters and ion-induced track formation. *Radiation Effects and Defects in Solids*, 175(3-4), 241-256.
- [7] Fleischer, R. L., Price, P. B., & Walker, R. M. (1965). Ion explosion spike mechanism for formation of charged-particle tracks in solids. *Journal of applied Physics*, 36(11), 3645-3652.
- [8] Schiwietz, G., Grande, P., Skogvall, B., Biersack, J. P., Köhrbrück, R., Sommer, K., ... & Stettner, U. (1992). Influence of nuclear track potentials in insulators on the emission of target Auger electrons. *Physical review letters*, 69(4), 628.
- [9] Meftah, A., Costantini, J. M., Khalfaoui, N., Boudjadar, S., Stoquert, J. P., Studer, F., & Toulemonde, M. (2005). Experimental determination of track cross-section in Gd<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub> and comparison to the inelastic thermal spike model applied to several materials. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 237(3-4), 563-574.
- [10] Toulemonde, M., Dufour, C., Meftah, A., & Paumier, E. (2000). Transient thermal processes in heavy ion irradiation of crystalline inorganic insulators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 166, 903-912.
- [11] Toulemonde, M., Assmann, W., Dufour, C., Meftah, A., Studer, F., & Trautmann, C. (2006). Experimental phenomena and thermal spike model description of ion tracks in amorphisable inorganic insulators. *Mat. Fys. Medd*, 52, 263-292.
- [12] Dufour, C., Audouard, A., Beuneu, F., Dural, J., Girard, J. P., Hairie, A., ... & Toulemonde, M. (1993). A high-resistivity phase induced by swift heavy-ion irradiation of Bi: a probe for thermal spike damage?. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 5(26), 4573.
- [13] Datta, D. P., Chettah, A., Siva, V., Kanjilal, D., & Sahoo, P. K. (2018). Dewetting induced Au-Ge composite nanodot evolution in SiO<sub>2</sub>. *Applied Surface Science*, 428, 676-683.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

---

- [14] Duffy, D. M., Itoh, N., Rutherford, A. M., & Stoneham, A. M. (2008). Making tracks in metals. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 20(8), 082201.
- [15] Behrisch, R., & Eckstein, W. (Eds.). (2007). *Sputtering by particle bombardment: experiments and computer calculations from threshold to MeV energies* (Vol. 110). Springer Science & Business Media.
- [16] Sigmund, P. (2012). Recollections of fifty years with sputtering. *Thin Solid Films*, 520(19), 6031-6049.
- [17] Dufour, C., Toulemonde, M., Wesch, W., & Wendler, E. (2016). Ion Beam Modification of Solids-Ion-Solid-Interaction and Radiation Damage.
- [18] Fleischer, R. L., Price, P. B., & Walker, R. M. (2022). *Nuclear tracks in solids: principles and applications*. Univ of California Press.
- [19] Dufour, C., Audouard, A., Beuneu, F., Dural, J., Girard, J. P., Hairie, A., ... & Toulemonde, M. (1993). A high-resistivity phase induced by swift heavy-ion irradiation of Bi: a probe for thermal spike damage?. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 5(26), 4573.
- [20] Mammeri, S., Ouichaoui, S., Ammi, H., & Zemih, R. (2010). Sputtering and crystalline structure modification of bismuth thin films deposited onto silicon substrates under the impact of 20–160 keV Ar<sup>+</sup> ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 268(2), 140-148.
- [21] Mammeri, S., Ouichaoui, S., Ammi, H., Hammoudi, H., & Pineda-Vargas, C. A. (2011). Sputtering and surface state evolution of Bi under oblique incidence of 120 keV Ar<sup>+</sup> ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 269(9), 909-914.
- [22] Mammeri, S., Ouichaoui, S., Ammi, H., Pineda-Vargas, C. A., Dib, A., & Msimanga, M. (2012). Sputtering and surface topography modification of bismuth thin films under swift 84Kr<sup>15+</sup> ion irradiation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 292, 11-17.
- [23] Nastasi, M., Michael, N., Mayer, J., Hirvonen, J. K., & James, M. (1996). *Ion-solid interactions: fundamentals and applications*. Cambridge University Press.
- [24] Lindhard, J., Nielsen, V., Scharff, M., & Thomsen, P. V. (1963). Integral equations governing radiation effects. *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk*, 33(10), 1-42.
- [25] Lehmann, C. (1977). Interaction of radiation with solids and elementary defect production.
- [26] Selskab, D. K. D. V., & Meddelelser, M. F. (1968). APPROXIMATION METHOD IN CLASSICAL SCATTERING BY SCREENED COULOMB FIELD S. *Mathematisk-fysiske meddelelser*, 36.
- [27] Wilson, W. D., Haggmark, L. G., & Biersack, J. P. (1977). Calculations of nuclear stopping, ranges, and straggling in the low-energy region. *Physical Review B*, 15(5), 2458.
- [28] Ziegler, J. F., & Biersack, J. P. (1985). The stopping and range of ions in matter. In *Treatise on heavy-ion science* (pp. 93-129). Springer, Boston, MA. Le code TRIM/SRIM est disponible sur le site <http://www.srim.org>.
- [29] Nastasi, M., Michael, N., Mayer, J., Hirvonen, J. K., & James, M. (1996). *Ion-solid interactions: fundamentals and applications*. Cambridge University Press.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

---

- [30] Bohr, N. (1915). LX. On the decrease of velocity of swiftly moving electrified particles in passing through matter. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 30(178), 581-612.
- [31] Bethe, H. (1930). Zur theorie des durchgangs schneller korpuskularstrahlen durch materie. *Annalen der Physik*, 397(3), 325-400.
- [32] Bloch, F. (1933). Zur bremsung rasch bewegter teilchen beim durchgang durch materie. *Annalen der Physik*, 408(3), 285-320.
- [33] Barkas, W. H., & Berger, M. J. (1967). Penetration of Charged Particles in Matter, National Academy of Sciences—National Research Council Publication No. 1133.
- [34] Bragg, W. H., & Kleeman, R. (1905). XXXIX. On the  $\alpha$  particles of radium, and their loss of range in passing through various atoms and molecules. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 10(57), 318-340.
- [35] Ziegler, J. F., & Manoyan, J. M. (1988). The stopping of ions in compounds. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 35(3-4), 215-228.
- [36] Ziegler, J. F. (1999). Stopping of energetic light ions in elemental matter. *Journal of applied physics*, 85(3), 1249-1272.
- [37] Mammeri, S., Ammi, H., Dib, A., Pineda-Vargas, C. A., Ourabah, S., Msimanga, M., ... & Guesmia, A. (2012). Stopping power and energy loss straggling of thin Formvar foil for 0.3–2.7 MeV protons and alpha particles. *Radiation Physics and Chemistry*, 81(12), 1862-1866.
- [38] Robinson, M. T., & Oen, O. S. (1982). On the use of thresholds in damage energy calculations. *Journal of Nuclear Materials*, 110(2-3), 147-149.
- [39] Grove, W. R., & London, E. (1853). Dublin Philos. Mag. *J. Sci*, 5, 203-209.
- [40] Sigmund, P. (1969). Theory of sputtering. I. Sputtering yield of amorphous and polycrystalline targets. *Physical review*, 184(2), 383.
- [41] Sigmund, P., & Claussen, C. (1981). Sputtering from elastic-collision spikes in heavy-ion-bombarded metals. *Journal of Applied Physics*, 52(2), 990-993.
- [42] Fleisher, R. L., Price, P. B., & Walker, R. M. (1975). Nuclear tracks in solids: Principles and applications. *Berkeley*.
- [43] McEuen, P., & Kittel, C. (2005). Introduction to solid state physics.
- [44] Dufour, C., Khomenkov, V., Rizza, G., & Toulemonde, M. (2012). Ion-matter interaction: the three-dimensional version of the thermal spike model. Application to nanoparticle irradiation with swift heavy ions. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 45(6), 065302.
- [45] Toulemonde, M., Assmann, W., Dufour, C., Meftah, A., & Trautmann, C. (2012). Nanometric transformation of the matter by short and intense electronic excitation: Experimental data versus inelastic thermal spike model. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 277, 28-39.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

---

- [46] Bohdanky, J. (1984). A universal relation for the sputtering yield of monatomic solids at normal ion incidence. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2(1-3), 587-591.
- [47] Matsunami, N., Yamamura, Y., Itikawa, Y., Itoh, N., Kazumata, Y., Miyagawa, S., ... & Tawara, H. (1984). Energy dependence of the ion-induced sputtering yields of monatomic solids. *Atomic data and nuclear data tables*, 31(1), 1-80.
- [48] Yamamura, Y., & Tawara, H. (1996). Energy dependence of ion-induced sputtering yields from monatomic solids at normal incidence. *Atomic data and nuclear data tables*, 62(2), 149-253.
- [49] Wittmaack, K. (2003). Analytical description of the sputtering yields of silicon bombarded with normally incident ions. *Physical Review B*, 68(23), 235211.
- [50] Fenyő, D., Sundqvist, B. U. R., Karlsson, B. R., & Johnson, R. E. (1990). Molecular-dynamics study of electronic sputtering of large organic molecules. *Physical Review B*, 42(4), 1895.
- [51] Sigmund, P. (Ed.). (1993). *Fundamental Processes in Sputtering of Atoms and Molecules (SPUT92): Symposium on the Occasion of the 250th Anniversary of the Royal Danish Academy of Sciences and Letters, Copenhagen, 30 August-4 September, 1992: Invited Reviews* (Vol. 43). Royal Danish Academy of Sciences and Letters.
- [52] Mahoney, J. F., Perel, J., Lee, T. D., Martino, P. A., & Williams, P. (1992). Shock wave model for sputtering biomolecules using massive cluster impacts. *Journal of the American Society for Mass Spectrometry*, 3(4), 311-317.
- [53] Toulemonde, M., Bouffard, S., & Studer, F. (1994). Swift heavy ions in insulating and conducting oxides: tracks and physical properties. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 91(1-4), 108-123.
- [54] Toulemonde, M. (1999). Nanometric phase transformation of oxide materials under GeV energy heavy ion irradiation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 156(1-4), 1-11.
- [55] Yasui, K. (1994). Thermal spike model of defect production by electron excitation in Cu. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 90(1-4), 409-411.
- [56] Szenes, G. (1996). Thermal spike model of amorphous track formation in insulators irradiated by swift heavy ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 116(1-4), 141-144.
- [57] Wesch, W., Kamarou, A., & Wendler, E. (2004). Effect of high electronic energy deposition in semiconductors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 225(1-2), 111-128.
- [58] Dufour, C., Paumier, E., & Toulemonde, M. (1997). Electron-phonon coupling and the sensitivity of metals to irradiation with swift heavy ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 122(3), 445-448.
- [59] Chettah, A., Kucal, H., Wang, Z. G., Kac, M., Meftah, A., & Toulemonde, M. (2009). Behavior of crystalline silicon under huge electronic excitations: A transient thermal spike description. *Nuclear*

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

---

*Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 267(16), 2719-2724.

[60] Chettah, A., Amekura, H., Baeker, R., Kucal, H., Takeda, Y., Matsuda, M., & Iwase, A. (2015). The inelastic thermal spike model applied to metal/insulator interfaces. *physica status solidi (c)*, 12(1-2), 102-106.

[61] Kaganov, M. I., Lifshitz, E. M., & Tanatarov, L. V. (1957). Relaxation between electrons and the crystalline lattice. *Soviet Physics-JETP*, 4, 173-178.

[62] Caron, M., Rothard, H., Toulemonde, M., Gervais, B., & Beuve, M. (2006). Theoretical and experimental study of electronic temperatures in heavy ion tracks from Auger electron spectra and thermal spike calculations. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 245(1), 36-40.

[63] Silk, E. C. H., & Barnes, R. S. (1959). Examination of fission fragment tracks with an electron microscope. *Philosophical Magazine*, 4(44), 970-972.

[64] Price, P. B., & Walker, R. M. (1962). Observations of Charged-Particle Tracks in Solids. *Journal of Applied Physics*, 33(12), 3400-3406.

[65] Davenas, J., Boiteux, G., Xu, X. L., & Adem, E. (1988). Role of the modifications induced by ion beam irradiation in the optical and conducting properties of polyimide. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 32(1-4), 136-141

[66] Sénécal, S. (2002). *Méthodes de simulation Monte-Carlo par chaînes de Markov pour l'estimation de modèles: applications en séparation de sources et en égalisation* (Doctoral dissertation, Grenoble INPG).

[67] Marmin, G. (2009). *Resolution numérique de l'équation de la chaleur 1D en coordonnées sphériques (Application au refroidissement de la Lune)*.

[68] Goncalvès, E. (2005). *Méthodes, analyse et calculs numériques*, institut polytechnique de Grenoble.

[69] Waligorski, M. P. R., Hamm, R. N., & Katz, R. (1986). The radial distribution of dose around the path of a heavy ion in liquid water. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part D. Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 11(6), 309-319.

[70] Fageeha, O., Howard, J., & Block, R. C. (1994). Distribution of radial energy deposition around the track of energetic charged particles in silicon. *Journal of applied physics*, 75(5), 2317-2321.

[71] Chunxiang, Z., Dunn, D. E., & Katz, R. (1985). Radial distribution of dose and cross-sections for the inactivation of dry enzymes and viruses. *Radiation Protection Dosimetry*, 13(1-4), 215-218.

[72] Davenas, J., Boiteux, G., Xu, X. L., & Adem, E. (1988). Role of the modifications induced by ion beam irradiation in the optical and conducting properties of polyimide. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 32(1-4), 136-141.

[73] Wilson, W. D., Haggmark, L. G., & Biersack, J. P. (1977). Calculations of nuclear stopping, ranges, and straggling in the low-energy region. *Physical Review B*, 15(5), 2458.

[74] Mammeri, S., Msimanga, M., Dib, A., Ammi, H., & Pineda-Vargas, C. A. (2018). Sputtering of bismuth thin films under MeV Cu heavy ion irradiation: Experimental data and inelastic thermal spike model interpretation. *Surface and Interface Analysis*, 50(3), 328-334.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

---

- [75] Msimanga, M., Pineda-Vargas, C. A., Hlatshwayo, T., Comrie, C. M., Ammi, H., & Nkosi, M. (2014). Electronic stopping force of  $^{12}\text{C}$ ,  $^{28}\text{Si}$  and  $^{63}\text{Cu}$  ions in  $\text{HfO}_2$  and  $\text{SiO}_2$  dielectric films. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 322, 54-58.
- [76] Trzaska, W. H., Knyazheva, G. N., Perkowski, J., Andrzejewski, J., Khlebnikov, S. V., Kozulin, E. M., ... & Savelieva, E. O. (2018). New experimental stopping power data of  $^4\text{He}$ ,  $^{16}\text{O}$ ,  $^{40}\text{Ar}$ ,  $^{48}\text{Ca}$  and  $^{84}\text{Kr}$  projectiles in different solid materials. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 418, 1-12.
- [77] Dib, A., Ammi, H., Msimanga, M., Mammeri, S., & Pineda-Vargas, C. A. (2019). Energy loss and stopping force of heavy ions Cu, Si, Al and F through thin Nickel (Ni) foil at low MeV energies. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 450, 43-46.
- [78] Sigmund, P. (2014). Particle penetration and radiation effects volume 2. In *Springer series in solid-state sciences* (Vol. 179). Springer Heidelberg.
- [79] Schiwietz, G., & Grande, P. L. (1999). A unitary convolution approximation for the impact-parameter dependent electronic energy loss. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 153(1-4), 1-9. CasP code version 5.2 available at [http://www.helmholtz-berlin.de/people/gregor-schiwietz/casp\\_en](http://www.helmholtz-berlin.de/people/gregor-schiwietz/casp_en).
- [80] Sigmund, P., Winterbon, K. B., & Sanders, J. B. (1970). Spatial distribution of energy deposited by atomic particles in elastic collisions. In *Matematisk+ Fysiske Meddelelser udgivet af det Kongelige Danske Videnskabernes Selskab* (p. 1).
- [80] Awazu, K., Wang, X., Fujimaki, M., Tominaga, J., Aiba, H., Ohki, Y., & Komatsubara, T. (2008). Elongation of gold nanoparticles in silica glass by irradiation with swift heavy ions. *Physical review B*, 78(5), 054102.
- [81] Al Mohtar, A., Tessier, G., Ritasalo, R., Matvejeff, M., Stormonth-Darling, J., Dobson, P. S & Roger, J. P. (2017). Thickness-dependent thermal properties of amorphous insulating thin films measured by photoreflectance microscopy. *Thin Solid Films*, 642, 157-162.
- [82] Lee, S. M., & Cahill, D. G. (1997). Heat transport in thin dielectric films. *Journal of applied physics*, 81(6), 2590-2595.
- [83] Zhu, W., Zheng, G., Cao, S., & He, H. (2018). Thermal conductivity of amorphous  $\text{SiO}_2$  thin film: A molecular dynamics study. *Scientific reports*, 8(1), 1-9.
- [84] McGaughey, A. J. H., & Kaviany, M. (2004). Thermal conductivity decomposition and analysis using molecular dynamics simulations. Part I. Lennard-Jones argon. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 47(8-9), 1783-1798.
- [85] Boubir, A., Mammeri, S., Dib, A., Ammi, H., Msimanga, M., Bouldjedri, A., ... & Mlungisi, N. (2021). Experimental study and thermal spike modeling of sputtering in  $\text{SiO}_2$  thin films under MeV  $\text{Au}^q+$  heavy ion irradiation. *Surface and Interface Analysis*, 53(9), 737-746.
- [86] Huang, Z., Tang, Z., Yu, J., & Bai, S. (2009). Thermal conductivity of amorphous and crystalline thin films by molecular dynamics simulation. *Physica B: Condensed Matter*, 404(12-13), 1790-1793.
- [87] Cahill, D. G., & Allen, T. H. (1994). Thermal conductivity of sputtered and evaporated  $\text{SiO}_2$  and  $\text{TiO}_2$  optical coatings. *Applied Physics Letters*, 65(3), 309-311.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

---

- [88] Kato, R., & Hatta, I. (2005). Thermal conductivity measurement of thermally-oxidized SiO<sub>2</sub> films on a silicon wafer using a thermo-reflectance technique. *International Journal of Thermophysics*, 26(1), 179-190.
- [89] Martynenko, Y. V., & Yavlinskii, Y. N. (1983, May). Cooling of the electron gas of a metal at high temperatures. In *Soviet Physics Doklady* (Vol. 28, p. 391).
- [90] Mammeri, S., Ouichaoui, S., Ammi, H., & Dib, A. (2014). Sputtering and surface structure modification of gold thin films deposited onto silicon substrates under the impact of 20–160 keV Ar<sup>+</sup> ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 337, 11-16.
- [91] Al'zhanova, A., Dauletbekova, A., Komarov, F., Vlasukova, L., Yuvchenko, V., Akilbekov, A., & Zdorovets, M. (2016). Peculiarities of latent track etching in SiO<sub>2</sub>/Si structures irradiated with Ar, Kr and Xe ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 374, 121-124.
- [92] Arnoldbik, W. M., Tomozeiu, N., & Habraken, F. H. P. M. (2002). Ion beam induced desorption from thin films: SiO<sub>2</sub> single layers and SiO<sub>2</sub>/Si multilayers. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 190(1-4), 433-438.
- [93] Mayer, M. (1999). SIMNRA: simulation of RBS, ERD and NRA spectra. In *AIP Conf. Proc.* (Vol. 475, No. 1999, pp. 541-546. *site web: [http://www.rzg.mpg.de/\\_mam/](http://www.rzg.mpg.de/_mam/)*. (Program in evaluation period of 30 days).
- [94] Gruen, D. M., Calaway, W. F., Pellin, M. J., Young, C. E., Spiegel, D. R., Clayton, R. N., ... & Blum, J. D. (1991). Selectivity, specificity and sensitivity in the photoionization of sputtered species. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 58(3-4), 505-511.
- [95] Arlinghaus, H. F., Spaar, M. T., Tanigaki, T., McMahon, A. W., & Holloway, P. H. (1994). Sputter-initiated resonance ionization spectroscopy: An analytical technique for quantitative and sensitive measurements of impurities and ultra-shallow doping profiles in semiconductors. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena*, 12(1), 263-268.
- [96] Kimock, F. M., Baxter, J. P., & Winograd, N. (1983). Detection of sputtered neutrals by multi-photon resonance ionization. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 218(1-3), 287-292.
- [97] Roehrich, J., Schiwietz, G., & Sielemann, R. (2005). Hahn-Meitner-Institut Berlin, Ionenstrahllabor. Annual report 2004.
- [98] Chu, W. K., Mayer, J. W., & Nicolet, M. A. (1978). Backscattering Spectrometry Academic Press. *New York*.
- [99] Dollinger, G., Frey, C. M., Bergmaier, A., & Faestermann, T. (1998). Elastic recoil detection with single atomic layer depth resolution. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 136, 603-610.
- [100] Hayderer, G., Schmid, M., Varga, P., Winter, H. P., & Aumayr, F. (1999). A highly sensitive quartz-crystal microbalance for sputtering investigations in slow ion–surface collisions. *Review of scientific instruments*, 70(9), 3696-3700.



## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

---

- [101] Assmann, W., Toulemonde, M., & Trautmann, C. (2007). Electronic sputtering with swift heavy ions. In *Sputtering by Particle Bombardment* (pp. 401-450). Springer, Berlin, Heidelberg.
- [102] Toulemonde, M., Assmann, W., & Trautmann, C. (2016). Electronic sputtering of vitreous SiO<sub>2</sub>: Experimental and modeling results. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 379, 2-8.
- [103] Matsunami, N., Sataka, M., Iwase, A., & Okayasu, S. (2003). Electronic excitation induced sputtering of insulating and semiconducting oxides by high energy heavy ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 209, 288-293.
- [104] Qiu, Y., Griffith, J. E., Meng, W. J., & Tombrello, T. A. (1983). Sputtering of silicon and its compounds in the electronic stopping region. *Radiation effects*, 70(1-4), 231-236.
- [105] Henderson, S. E., Sugden, D., & Barnett, A. L. (1992). Movement assessment battery for children-2. *Research in Developmental Disabilities*.
- [106] Ninomiya, S., Imada, C., Nagai, M., Nakata, Y., Aoki, T., Matsuo, J., & Imanishi, N. (2005). Total sputtering yields of solids under MeV-energy Si ion bombardment. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 230(1-4), 483-488.
- [107] Sigmund, P., & Claussen, C. (1981). Sputtering from elastic-collision spikes in heavy-ion-bombarded metals. *Journal of Applied Physics*, 52(2), 990-993.
- [108] Avasthi, D. K., Mishra, Y. K., Singh, F., & Stoquert, J. P. (2010). Ion tracks in silica for engineering the embedded nanoparticles. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 268(19), 3027-3034.
- [109] Toulemonde, M., Weber, W. J., Li, G., Shutthanandan, V., Kluth, P., Yang, T., ... & Zhang, Y. (2011). Synergy of nuclear and electronic energy losses in ion-irradiation processes: The case of vitreous silicon dioxide. *Physical Review B*, 83(5), 054106.
- [110] Kluth, P., Schnohr, C. S., Pakarinen, O. H., Djurabekova, F., Sprouster, D. J., Giulian, R., ... & Toulemonde, M. (2008). Fine structure in swift heavy ion tracks in amorphous SiO<sub>2</sub>. *Physical review letters*, 101(17), 175503.
- [111] Meftah, A., Brisard, F., Costantini, J. M., Dooryhee, E., Hage-Ali, M., Hervieu, M., ... & Toulemonde, M. (1994). Track formation in SiO<sub>2</sub> quartz and the thermal-spike mechanism. *Physical Review B*, 49(18), 12457.
- [112] Studer, F., Hervieu, M., Costantini, J. M., & Toulemonde, M. (1997). High resolution electron microscopy of tracks in solids. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 122(3), 449-457.
- [113] Bursill, L. A., & Braunshausen, G. (1990). Heavy-ion irradiation tracks in zircon. *Philosophical Magazine A*, 62(4), 395-420.
- [114] Thibaudau, F., Cousty, J., Balanzat, E., & Bouffard, S. (1991). Atomic-force-microscopy observations of tracks induced by swift Kr ions in mica. *Physical review letters*, 67(12), 1582.
- [115] Neumann, R. (1999). Scanning probe microscopy of ion-irradiated materials. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 151(1-4), 42-55.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

---

- [116] Houpert, C., Studer, F., Groult, D., & Toulemonde, M. (1989). Transition from localized defects to continuous latent tracks in magnetic insulators irradiated by high energy heavy ions: A HREM investigation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 39(1-4), 720-723.
- [117] Seah, M. P., & Nunney, T. S. (2010). Sputtering yields of compounds using argon ions. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 43(25), 253001.
- [118] Mammeri, S., Ouichaoui, S., Ammi, H., Pineda-Vargas, C. A., Dib, A., & Msimanga, M. (2015). Thermal spike model interpretation of sputtering yield data for Bi thin films irradiated by MeV  $^{84}\text{Kr}^{15+}$  ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 354, 235-239.
- [119] Assmann, W., Ban-d'Etat, B., Bender, M., Boduch, P., Grande, P. L., Lebius, H., ... & Trautmann, C. (2017). Charge-state related effects in sputtering of LiF by swift heavy ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 392, 94-101.
- [120] Matsunami, N., Sataka, M., Iwase, A., & Okayasu, S. (2003). Electronic excitation induced sputtering of insulating and semiconducting oxides by high energy heavy ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 209, 288-293.
- [121] Toulemonde, M., Assmann, W., & Trautmann, C. (2016). Electronic sputtering of vitreous  $\text{SiO}_2$ : Experimental and modeling results. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 379, 2-8.

## Résumé de thèse

L'objet de ce travail concerne l'étude expérimentale et numérique de la pulvérisation des cibles solides en couches minces de dioxyde de silicium ( $\text{SiO}_2$ ) induite par des faisceaux d'ions lourds  $\text{Au}^{q+}$  d'énergies comprises entre 10 et 40 MeV et avec différents états de charges  $q$  allant de +4 à +9. La première partie de ce travail est consacrée à la modélisation du processus d'érosion de surface suivant une approche modifiée du modèle de pointe thermique inélastique (i-TS) et aussi via une simulation numérique de type Monté Carlo utilisant le code SRIM. La procédure expérimentale utilisée est celle de la méthode dite «de changement d'épaisseur» de surface qui nous a permis de déterminer expérimentalement les rendements de pulvérisation au moyen de deux techniques d'irradiation et d'analyse par faisceau d'ions : l'irradiation aux ions lourds et la spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford (RBS). L'état de surface et la microstructure des échantillons cibles ont été contrôlés et vérifiés préalablement par d'autres techniques de caractérisation complémentaires, à savoir, la microscopie électronique à balayage (MEB) la diffraction des rayons X (DRX). L'ensemble des résultats obtenus a été analysé et interprété par le modèle des pointes thermiques inélastiques, et par le code de simulation SRIM-2013.

## Abstract

In the present work of Thesis, we report experimental and numerical investigation on the sputtering of solid targets in thin layers of silicon dioxide ( $\text{SiO}_2$ ) induced by heavy ions beams of  $\text{Au}^{q+}$  with (10-40) MeV kinematic energies with different charge states  $q$  ranging from +4 to +9. The first part of this work is devoted to the modeling of the surface erosion process following a modified approach of the inelastic thermal spike (i-TS) model and also via a Monte Carlo type numerical simulation using the SRIM code. The experimental procedure used is that of the so-called "thickness change" method which allowed us to experimentally determine the sputtering yields by means of two techniques of irradiation and analysis by ion beams: the heavy ion irradiation and Rutherford backscattering spectrometry (RBS). The surface state and the microstructure of the target samples were checked by other complementary characterization techniques, namely, scanning electron microscopy (SEM) X-ray diffraction (XRD). All the results obtained were analyzed and interpreted by the model of inelastic thermal spike, and by the computer simulation code SRIM-2013.

## ملخص

في هذه الأطروحة قمنا بدراسة تجريبية لتطاير الجسيمات الموجودة على سطح أهداف صلبة في شكل طبقات رقيقة من ثاني أكسيد السيليكون الناجمة عن التشعيع بواسطة حزم من أيونات الذهب الثقيلة بطاقات وحالات شحن مختلفة (من 10 إلى 40 ميغا فولت و من +4 إلى +9). تم تخصيص الجزء الأول من هذا العمل لنمذجة عملية تآكل السطح باتباع نهج معدل لنموذج الارتفاع الحراري غير المرن وأيضاً عبر محاكاة رقمية من نوع مونت كارلو باستخدام كود. الإجراء التجريبي المستخدم هو ما يسمى بطريقة "تغيير سماكة الأهداف" والتي سمحت لنا بتحديد حصيلة الرش بشكل تجريبي عن طريق تقنيتين من التشعيع والتحليل بواسطة حزم الأيونات: تشعيع الأيونات الثقيلة وقياس الطيف الارتجاعي. تم فحص الحالة السطحية والبنية المجهرية للعينات المستهدفة من خلال تقنيات التوصيف التكميلية الأخرى ، وهي المسح المجهر الإلكتروني (م م إ) و حيود الأشعة السينية (ح أ س). في الأخير تم تحليل جميع النتائج التي تم الحصول عليها وتفسيرها من خلال نموذج الارتفاع الحراري غير المرن ومن خلال برنامج محاكاة.