

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE MENTOURI – CONSTANTINE
FACULTE DES SCIENCES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

N° d'ordre : 39 ME/2005
N° de série : 09/Phy/2005

THESE

Présentée par

Smail BOUDJADAR

en vue de l'obtention du

DOCTORAT D'ETAT
Spécialité : Sciences des matériaux

**Etude de la pulvérisation induite par des ions lourds
multichargés**

Soutenue le 26/06/2005

Devant le jury composé de :

Président :	R. Halimi	Professeur, Université Mentouri, Constantine
Rapporteur :	A. Meftah	Professeur, Université de Skikda
Examineurs :	A. Bouldjedri	Professeur, Université Hadj Lakhdar, Batna
	A. Djemel	Professeur, Université Mentouri, Constantine
	H. Rothard	Chargé de recherches, CNRS, Caen, France
	M. Toulemonde	Directeur de recherches, CNRS, Caen, France

*A mes enfants : Hanaa, Iheb, Baha eddine, Sief
A mon épouse Zohra*

Remerciements

Ce travail n'est rendu possible que grâce à la contribution décisive de tout le personnel du Centre Interdisciplinaire de Recherche Ions Laser (CIRIL), auquel j'adresse mes vifs remerciements. Ce travail est le fruit d'une collaboration entre le CIRIL et le Laboratoire de Recherche sur la Physico-chimie des Surfaces et Interfaces (LRPCSI) de l'université de Skikda.

A ce titre, j'adresse mes remerciements à Monsieur S. BOUFFARD, Directeur du CIRIL, de m'avoir si bien accueilli et rendu agréable mon séjour dans son laboratoire dont je garde d'agréables souvenirs et au Professeur A. MEFTAH, d'avoir accepté de m'encadrer, de m'avoir prodigué ses conseils, ses critiques, ses conseils et recommandé auprès du Monsieur M. TOULEMONDE, Directeur de recherche au CNRS, dont la contribution a été déterminante dans la réalisation de ce travail.

Ma profonde gratitude est à l'adresse de Monsieur H. ROTHARD, Chargé de recherche au CNRS, pour ses conseils, son aide précieux et sur le même ordre de gratitude Mr. Philippe BODUCH, Maître de conférences à l'université de Caen, d'avoir si bien dirigé mes travaux et de m'avoir initié à ce domaine prestigieux de la physique et m'avoir supporté durant ces quatre dernières années.

Je remercie l'ensemble des membres du jury qui ont étudié ce travail avec intérêt et plus particulièrement R. HALIMI, Professeur à l'université de Constantine en qualité de président et Messieurs A. BOULDJADRI, Professeur à l'université de Batna et A. DJEMEL, Professeur à l'université de Constantine en qualité d'examineurs.

Je tiens à remercier Madame B. BAN D'ETAT, pour son soutien infaillible.

Merci au Docteur H. LEBIUS, pour ses orientations et ses recommandations, et au Docteur F. HARANGER, de m'avoir initié au TOF-SIMS et son aide sur la simulation des agrégats par SRIM.

Je tiens à exprimer mes remerciements à Monsieur Thorsten JALOWY pour sa grande volonté à nous transmettre son savoir sur la technique d'imagerie.

Pour son aide à l'analyse des résultats de l'imagerie par ORIGIN, Monsieur Abel ROBIN, trouve dans ces lignes mes plus chaleureux remerciements.

Je ne termine pas ma liste, sans adresser, un merci sincère, à Monsieur Bruno MANIL, pour ce qu'il a fait pour faire aboutir ce travail.

Un travail est aussi la résultante d'une équipe, chacun dans son domaine et chacun a sa manière. Sans le staff technique du CIRIL, ce projet n'aurait jamais vu le jour. Que Messieurs L. MAUNOURY, T. BEEN, D. LELIEVRE, F. LEVESQUE, J. M. RAMILLON, V. MOUTON et Madames C. BRASSY, N. VIARGUES, trouvent ici toute ma gratitude.

TABLE DES MATIERES

Introduction	I
---------------------	----------

CHAPITRE I : INTERACTION ION- MATIERE

I-1 : Interaction ion – atome isolé	1
1-a : Collisions élastiques	1
1-b : Diffusion de Rutherford	3
1-c : Collisions inélastiques	4
I-2 : Interaction ion – solide	6
2-1 : Effets sur l'ion projectile	7
1-a : la perte d'énergie	7
1-b : Interaction ion – ion	8
i - Collisions élastiques	8
ii - Le pouvoir d'arrêt nucléaire	9
1-c : Interaction ion – électron	10
i - Collisions inélastiques	10
ii - Le pouvoir d'arrêt électronique	10
2-2 : Effets sur la charge de l'ion	14
2-a : La charge effective a hautes vitesses	15
2-b : L'atome creux a basses vitesses	16
2-3 : Variation de l'énergie potentielle en fonction de la charge	17
2-4 : Effets induits dans le matériau cible	19
4-a : Création de défauts par collisions élastiques à basses vitesses	19
4-b : Création de défauts par collisions inélastiques à hautes vitesses	20
4-c : Cas des ions lents multichargés	20
I-3 : L'émission ionique des particules	21
3-1 : La pulvérisation nucléaire	21
1-a : Régime de collisions simples.	22
1-b : Régime de cascade linéaire	25
1-c : Régime de pointes	27
3-2 : La pulvérisation électronique	28
2-a : Approche thermique	29
2-b : Approche hydrodynamique	32
i - Pulvérisation par onde de choc	32
ii - Pulvérisation par impulsion de pression	33
2-c : Résultats expérimentaux	34

3-3 : La pulvérisation potentielle	35
3-a : Résultats expérimentaux	36
3-b : La pulvérisation par explosion Coulombienne	40
3-c : La désorption par migration de défauts	40
3-4 : Emission d'agrégats	42
Bibliographie	45

CHAPITRE II : DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

II-1 : La ligne LIMBE	49
1-a : La source ECR	51
1-b : L'extraction des ions	52
1-c : La conduite du faisceau	52
II-2 : GANIL – SME	52
2-a : La salle d'irradiation D	53
2-b : La conduite du faisceau	54
II-3 : Le vide	56
3-a : Le pompage différentiel	56
II-4 : Détecteurs	58
4-1 : Le channeltron	58
4-2 : Les galettes à microcanaux (MCP)	59
2-a : Principe d'une galette	59
2-b : Caractéristiques des galettes	60
b-1 : Caractéristiques mécaniques	60
b-2 : Rendements des galettes	61
i- Rendement géométrique	61
ii- Nature et énergie de la particule incidente	61
4-3 : Détecteur de localisation	62
3-a : Anode à doubles ligne à retard	62
3-b : Principe	63
II-5 : choix et préparations des matériaux	64
5-1 : Grenat de Gadolinium (GGG)	64
5-2 : Cible de dioxyde d'uranium (UO ₂)	66
5-3 : Cible de fluorure de lithium (LiF)	67
II-6: Phénomènes physiques	67
6-1: Traces latentes dans le GGG	67

6-2 : Emission d'ions secondaires	67
II-7: Expériences	68
7-1: TOF-SIMS	68
1-a : Chambre d'irradiation	68
1-b : Principe	68
1-c : Electronique de détection	70
i- (CFD)	71
ii- (CTN)	71
iii- (TMS ϕ)	71
1-d : Manipulation	71
7-2: Imagerie (TOF-XY)	73
2-a : Chambre d'irradiation	73
2-b : Principe	73
2-c : Electronique de détection	75
2-d : Acquisition du Ganil	76
2-e : Manipulation	77
Bibliographie	82

CHAPITRE III : RESULTATS, ANALYSES ET DISCUSSIONS

III-1 : Caractérisation des traces latentes dans le $Gd_3Ga_5O_{12}$.	85
1-1 : Analyse des résultats expérimentaux	86
1-2 : Application du modèle de la pointe thermique inélastique	88
2-a : Application du modèle pour le $Gd_3Ga_5O_{12}$	89
2-b : Extension du modèle pour d'autres matériaux : évolution de la constante du couplage électron-phonon	90
III-2 : Emission d'ions secondaires	97
2-1 : Simulation par SRIM	97
1-a : La perte d'énergie	97
1-b : Contributions des agrégats dans l'émission d'ions secondaires	98
2-2 : Methodes d'analyses	99
2-a : Identification des ions émis	99
2-b : Calcul des rendements ioniques relatifs	104
2-c: Résultats et discussions	106
c-1 : Effet de l'efficacité de détection sur les rendements	107
c-2 : Distributions en tailles d'agrégats	108
c-3 : Corrélation avec le rendement total de pulvérisation	112
c-4 : Contribution de l'émission ionique dans la pulvérisation	116

III-3 : Résultats préliminaires de l'expérience de l'imagerie	117
3-1 : Identification des ions émis	117
1-a : Etude de la ligne de gaz	117
1-b : calibration en temps et en masse des spectres	119
Bibliographie	123
Conclusion générale	127
Abstract	131
Résumé en arabe	133
Publications et communications	135

Introduction

L'étude des interactions des ions multichargés avec la matière (les processus fondamentaux de l'interaction, la relaxation de l'énergie déposée dans les matériaux et les modifications induites dans ces matériaux) fait encore l'objet de recherches très intenses. Dans ce travail, nous nous intéresserons dans une première étape à la création de défauts induits par irradiation dans le grenat gadolinium gallium $Gd_3Ga_5O_{12}$. En suite, on s'intéressera aux effets observés à la surface et plus précisément au phénomène de pulvérisation suite à un bombardement des cibles de UO_2 et LiF par des ions lourds multichargés, pour essayer de le corréler avec ceux qui apparaissent dans le volume.

La relaxation d'un solide localement très excité suite à un dépôt d'énergie est l'étape la moins bien connue dans le processus d'interaction ion – matière. L'étude des propriétés des espèces pulvérisées (rendement, distribution en masse, en angle et en vitesse) nous permet d'apporter des informations sur la relaxation du matériau.

Au *CIRIL*, la pulvérisation du dioxyde d'uranium a été étudiée dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique « pulvérisation électronique » avec les faisceaux de la **Sortie Moyenne Energie (SME)**, suite à un dépôt inélastique de l'énergie cinétique sur les électrons de la cible [*Schl 01*]. Ainsi dans le régime du pouvoir d'arrêt nucléaire « pulvérisation nucléaire » avec les ions multichargés de la ligne **LIMBE** « **L**igne des **I**ons **M**ultichargés de **B**asse **E**nergie », suite à un dépôt élastique de l'énergie sur les atomes du matériau cible [*Hara 03*].

En plus, à basse énergie avec les faisceaux de **LIMBE**, l'énergie potentielle des ions multichargés devient comparable à l'énergie cinétique du projectile, et des effets de pulvérisation liés à l'état de charge peuvent apparaître, on parle donc de la pulvérisation potentielle « potential sputtering ».

La grande majorité (99 %) des espèces pulvérisées est neutre. Dans les études mentionnées au-dessus, l'étude de la pulvérisation a été focalisée sur les rendements totaux et les distributions angulaires des espèces pulvérisées. La technique utilisée, dite du

collecteur« catcher», ne permet pas de connaître la nature des particules pulvérisées : atomes isolés, molécules ou agrégats chargés ou neutres.

Afin de voir les effets de la charge et de la masse du projectile, nous avons entrepris l'étude de l'émission d'ions secondaires sous formes d'agrégats, suite à un bombardement d'une cible de dioxyde d'uranium par des ions lourds ($Z_p \geq 10$), lents ($v < v_B \sim 2,2 \times 10^6 \text{ ms}^{-1}$) et multichargés ($q > 1$), à une énergie cinétique constante, par la technique de la spectroscopie de masse des ions secondaires par temps de vol « **TOF-SIMS** ».

Nous avons également étudié les collisions des ions produits par les deux lignes du Ganil, **LIMBE** et la **SME**, avec les cibles de **UO₂** et des cibles de **LiF**, par une technique d'imagerie déjà utilisée avec succès à l'institut de physique nucléaire de Frankfurt pour une cible de **LiF**, [**Schm 02**, **Jalo 02**], dans un régime d'énergie où les deux pouvoirs d'arrêt coexistent. Afin de séparer les effets du pouvoir d'arrêt dans le cas de la cible du **LiF**, et pour comparer les résultats obtenus dans ce cas avec ceux obtenus précédemment pour le dioxyde d'uranium, cette technique a été également employée.

Ce mémoire est composé de trois chapitres.

Dans le *premier*, nous rappellerons les principes de l'interaction ion-matière. Nous s'intéresserons aux paramètres qui gouvernent cette collision, notamment les notions du pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire, qui permettent de caractériser le ralentissement d'un projectile dans un matériau donné. L'évolution de la charge du projectile en fonction de sa vitesse de déplacement dans le solide et pendant son approche de la surface sera ensuite décrite. Une synthèse bibliographique concernant les différents modèles de la pulvérisation et les résultats expérimentaux obtenus antérieurement seront ensuite présentés.

Le *deuxième* chapitre présentera l'ensemble des dispositifs et les techniques expérimentales employés dans cette étude. Un bref descriptif des deux lignes d'irradiation sera donné. Les détecteurs utilisés dans la détection des ions secondaires seront détaillés La notion du pompage différentiel, les techniques spectroscopiques de temps de vol et d'imagerie, ainsi l'électronique de détection seront décrites par la suite.

Enfin, dans le *troisième* chapitre, nous exposerons les méthodes d'analyse des résultats expérimentaux et présenterons les résultats de l'étude de l'endommagement du grenat gadolinium gallium, ainsi que de l'émission d'ions secondaires sous forme d'agrégats, qui seront confrontés avec les modèles théoriques existants. Ensuite, nous présenterons les résultats préliminaires obtenus par la technique d'imagerie et suggérerons quelques propositions d'études pour compléter les travaux de recherches pour mieux appréhender les mécanismes mis en jeu pendant l'interaction ion solide.

Bibliographie

- [Hara 03] F. Haranger, thèse de Doctorat, université de Caen (2003).
- [Jalo 02] T. Jalowy, R. Neugebauer, M. Hattass, J. Fiol, F. Afaneh, J. A. M. Pereira, V. Collado, E. F. da Silveira, H. Schmidt-Böcking and K. O. Groeneveld, Nucl. Instr. Meth. B193 (2002) 762-767.
- [Schl 01] S. Schlutig, thèse, Université de Caen (2001).
- [Schm 02] H. Schmidt-Böcking, R. Dörner, J. Ulrich, ” COLTRIMS: The bubble chamber technique for low energy fragmentation processes in atomic, molecular, and surface physics”, Europhysicsnews (special issue): Atomic and molecular physics: New challenges and new opportunities. 33/6 (2002) p. 210-211.

CHAPITRE I

INTERACTION ION - MATIERE

Dans ce chapitre, nous allons présenter les paramètres essentiels qui décrivent les phénomènes résultants de l'interaction entre un projectile chargé et une cible. Nous mettrons l'accent sur ceux qui nous intéressent dans le cadre de ce travail, tels que la perte d'énergie et la notion du pouvoir d'arrêt nucléaire et électronique. L'évolution de la charge du projectile lent et multichargé le long de son parcours, près de la surface ou à l'intérieur du solide, sera ensuite présentée. La réponse du solide, suite au passage de l'ion, sera abordée par la description des mécanismes de mise en mouvement des atomes et d'excitation électronique. Les modèles théoriques qui tentent d'expliquer le phénomène d'érosion des surfaces irradiées, en relation avec le matériau cible, la charge et l'énergie du projectile, seront abordés.

I-1 : Interaction ion - atome isolé.

Le transfert d'énergie à l'ensemble de l'atome (noyau et électrons) lors d'une interaction particule chargée - atome, usuellement décomposé en deux parties : d'une part, la partie élastique qui est responsable de la mise en mouvement du centre de masse de l'atome, et d'autre part, la partie inélastique qui correspond aux modifications des configurations électroniques des deux partenaires par capture électronique, excitation ou ionisation.

1-a : Collisions élastiques.

Dans le domaine de faible énergie cinétique ($\sim keV$), le processus d'interaction entre un ion et un atome cible est considéré comme une collision élastique binaire entre deux corps « binary collision ». Ce mécanisme de collision est traduit par la conservation de l'énergie cinétique du système de particules impliquées dans la collision, l'énergie interne individuelle de chaque particule reste inchangée, ce qui implique que la configuration électronique des deux partenaires n'est pas modifiée lors d'une collision élastique. Le transfert d'énergie cinétique depuis l'ion à l'atome, est calculé en appliquant les règles de conservation de l'énergie cinétique et de la quantité de

mouvement lors de la collision. La figure I-1 présente la géométrie et les paramètres qui gouvernent le processus de collision dans le repère du laboratoire. (M_1, E_0, V_0) et (M_1, E_1, V_1) représentent la masse, l'énergie et la vitesse de l'ion projectile avant et après l'interaction, M_2 la masse de l'atome. T et V_2 sont l'énergie transmise et la vitesse de recul de ce dernier après collision. θ est l'angle de diffusion du projectile, ψ l'angle de recul de l'atome cible et b le paramètre d'impact qui correspond à la distance d'approche entre le noyau du projectile et de la cible

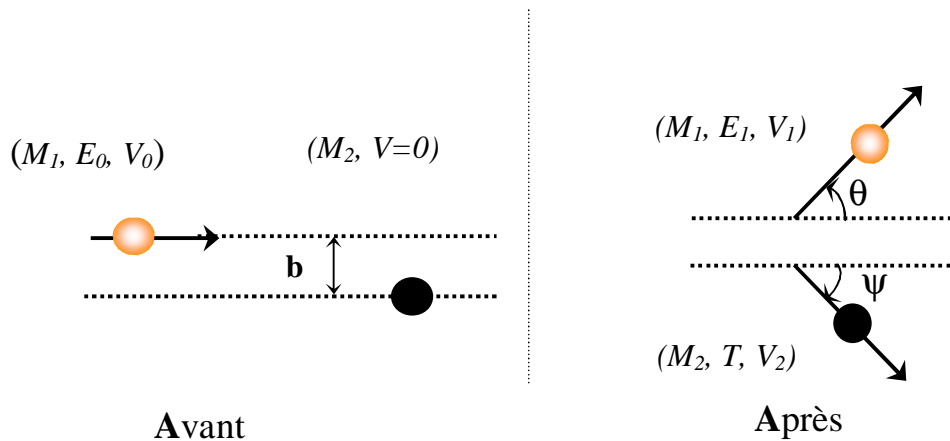


Figure I-1 : Interaction binaire ion-atome.

L'expression de l'énergie cinétique transférée est donnée dans le repère du laboratoire par [Well 95] :

$$T = \frac{4M_1 \cdot M_2}{(M_1 + M_2)^2} \cdot E_0 \cdot \cos^2 \psi \quad [\text{Rel. I-1}]$$

A chaque quantité d'énergie cinétique transférée, correspond un angle de diffusion θ pour le projectile et un angle de recul ψ pour l'atome cible, ce transfert est maximum si le choc est frontal ($b = 0$). Dans ce cas, la cible recule dans la direction du projectile ($\psi = 0$) et l'énergie transférée est :

$$T_{\text{Max}} = g E_0 = \frac{4M_1 \cdot M_2}{(M_1 + M_2)^2} \cdot E_0 \quad [\text{Rel. I-2}]$$

Si $M_1 < M_2$, une collision frontale entraîne une rétrodiffusion du projectile, l'énergie cinétique transmise est maximale pour $M_1 = M_2$ ($T_{\text{max}} = E_0$). Lorsque $M_1 \geq M_2$ le projectile est diffusé vers l'avant dans des angles θ à 90° . Dans le cas où $M_1 \gg M_2$, l'énergie cinétique transmise à la cible est très faible, et donnée par :

$$T_{Max} = \frac{4 \cdot M_2}{M_1} \cdot E_0 \quad [\text{Rel. I-3}]$$

Ce dernier cas correspond à celui d'une collision élastique entre un ion et un électron, et justifie le traitement d'une collision ion atome à basse énergie comme une collision élastique, la quantité d'énergie transmise aux électrons de la cible par le projectile étant très faible.

1-b : Diffusion de Rutherford.

La section efficace différentielle est un paramètre important de l'interaction ion solide, elle mesure la probabilité de transfert d'une quantité d'énergie comprise entre T et $T + dT$ à la cible ou la probabilité de diffusion du projectile dans un angle compris entre q et $q + dq$ (fig. I-2). La section efficace dépend fortement du potentiel interatomique.

En mécanique classique, les collisions binaires entre deux corps sont complètement déterminées par leurs vitesses, leurs masses, leur paramètre d'impact, leurs charges et le potentiel d'interaction Coulombien ($V(r) = Z_1 Z_2 e^2 / r$).

L'expression de la section efficace différentielle est donnée dans le système du centre de masse par la formule de Rutherford [**Ruth 11**] :

$$\frac{ds(q)}{d\Omega} = \left[\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4 E_c \cdot \sin^2 \frac{q}{2}} \right]^2 \quad [\text{Rel. I-4}]$$

où E_c représente l'énergie de centre de masse.

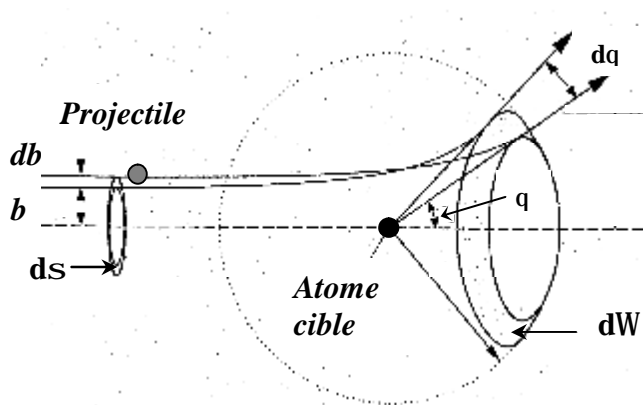


Figure I-2 : Section efficace de diffusion dans le système de centre de masse

Nous pouvons remarquer que la section efficace différentielle de Rutherford augmente lorsque l'angle de diffusion diminue. Ce qui implique que la section efficace diminue avec l'augmentation de l'énergie transmise.

1-c : Collisions inélastiques.

Ce processus de ralentissement domine à haute vitesse. Les collisions inélastiques sont des collisions entre l'ion incident et les électrons de la cible, l'énergie cinétique totale du système de particules n'est pas conservée. Ainsi l'énergie interne noyau cible-électrons est modifiée au cours de l'interaction. Dans le cas d'une collision ion-atome, chacun des deux partenaires peut voir sa population électronique modifiée. Les modifications des configurations électroniques des deux partenaires dépendent des processus fondamentaux intervenant dans les collisions inélastiques telles que, l'excitation, l'ionisation et la capture électronique (Fig. I-3).

- ◆ Dans le cas de l'excitation, le transfert d'énergie peut laisser le projectile ou l'atome cible dans un état excité.

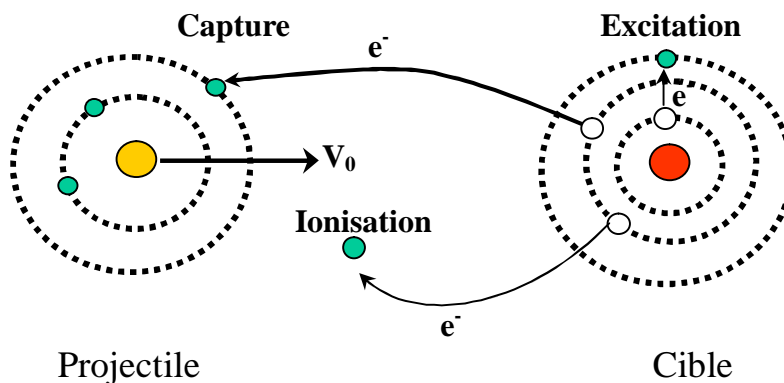


Figure I-3 : Processus inélastiques pendant l'interaction projectile chargé - atome

- ◆ Dans le cas de l'ionisation, un électron est arraché à un atome cible ou au Projectile.
- ◆ En ce qui concerne la capture électronique, l'atome cible perd un électron qui est capturé par le projectile. Ce phénomène de capture mène à un changement d'état de charge du projectile et par conséquent à l'ionisation de l'atome cible.

Ces trois processus inélastiques existent généralement toujours de façon simultanée. Mais la contribution relative dépend à la fois de la nature du projectile, de la cible, de la couche atomique considérée et de la vitesse relative à laquelle la collision a lieu. La figure I-4 présente les sections efficaces mesurées dans le cas d'une collision entre un proton et un atome d'hydrogène [Vern 96]. On distingue clairement trois domaines de vitesses :

- ♦ les basses vitesses ($V < V_B$), la capture d'un électron par le projectile est le phénomène dominant.
- ♦ les vitesses intermédiaires, les trois processus inélastiques coexistent.
- ♦ les grandes vitesses, l'excitation et l'ionisation sont presque équiprobables.

Ces trois processus inélastiques peuvent indirectement conduire à la pulvérisation de particules.

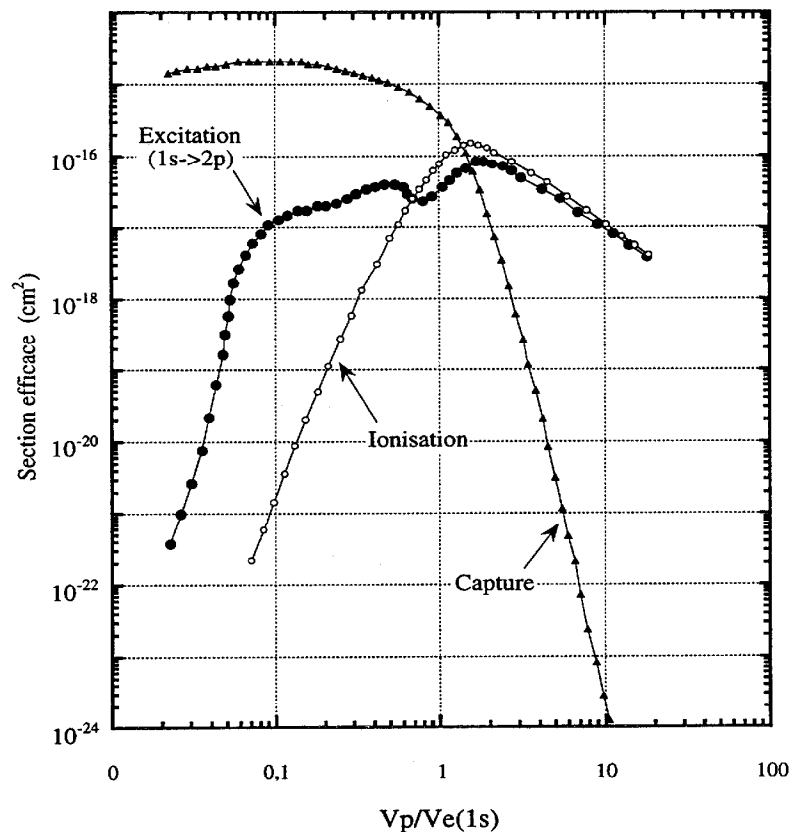


Figure I-4 : Sections efficaces des trois processus inélastiques lors de collisions proton-électron [Vern 96].

I-2 : Interaction ion – solide.

Les effets remarquables de l'interaction ion - solide, dépendent essentiellement des caractéristiques des deux partenaires concernés (ion, solide), notamment la masse M_I , la charge Z_I et l'énergie E_I de l'ion projectile, et la masse atomique M_2 , ainsi que la charge Z_2 de la cible.

L'interaction d'un ion énergétique avec un solide provoque généralement trois groupes de phénomènes (fig. I-5) :

- ♦ des effets sur l'ion projectile : tels que la perte d'énergie, l'échange de charge, la déviation et l'implantation du projectile.
- ♦ la création de défauts dans le matériau cible : cascade de collisions, excitation, ionisation, déplacement, échauffement du matériau...
- ♦ l'émission de la lumière (RX et photon) et des particules ioniques ou neutres (électrons, atomes, molécules, agrégats).

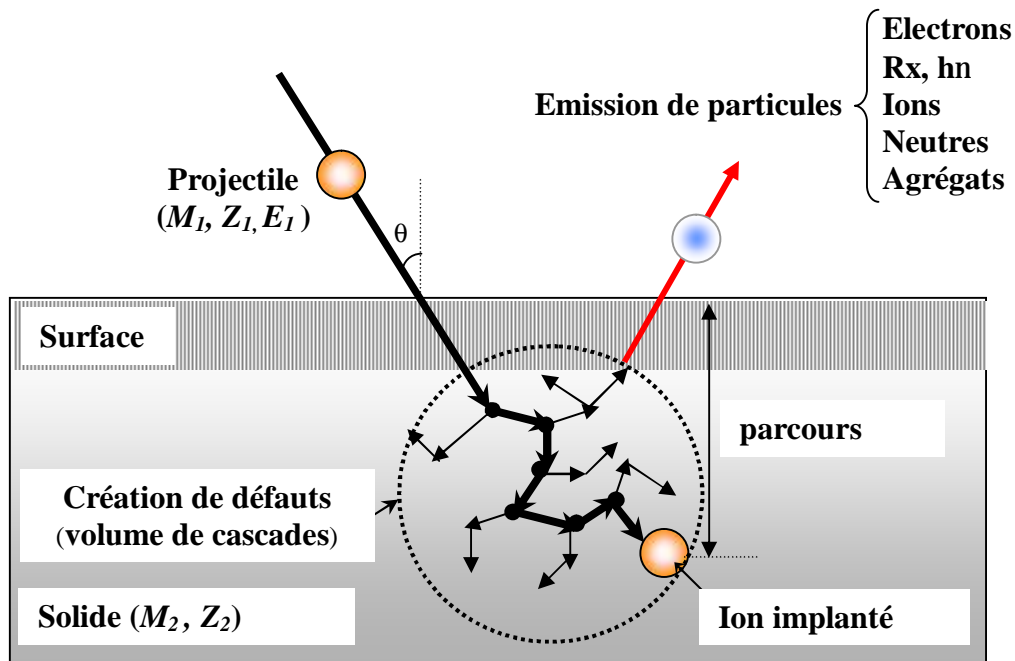


Figure I-5 : Processus d'interaction ion - solide.

2-1 : Effets sur l'ion projectile.

1-a : La perte d'énergie.

Pendant l'interaction ion-solide, l'ion incident transmet son énergie à la cible tout au long de son passage dans le matériau. La quantité d'énergie perdue par l'ion pendant son ralentissement dans le solide constitue alors un paramètre important pour comprendre aussi bien les processus d'endommagement du matériau que les mécanismes d'émission des particules de la surface de la cible. Ce paramètre appelé *pouvoir d'arrêt* de la cible est défini comme étant l'énergie perdue de l'ion par unité de longueur ($-dE/dx$).

A l'intérieur du solide, l'ion incident dissipe son énergie selon deux mécanismes :

- ♦ les collisions nucléaires, prépondérantes à faibles vitesses, sont des collisions élastiques entre le projectile et les atomes cibles, et sont définies par le *pouvoir d'arrêt nucléaire* ($-dE/dx)_n$.
- ♦ les excitations électroniques, dominantes à hautes vitesses, résultent des collisions inélastiques entre le projectile et les électrons de la cible, et sont définies par le *pouvoir d'arrêt électronique* ($-dE/dx)_e$.

D'après Lindhard et al. [**Lind 63**], la perte totale de l'énergie dans le solide est la somme des contributions nucléaire et électronique.

$$\left(-dE/dx\right)_T = \left(-dE/dx\right)_n + \left(-dE/dx\right)_e \quad [\text{Rel. I-5}]$$

Dans le cas d'une cible polyatomique comme le dioxyde d'uranium, l'estimation de la perte d'énergie doit tenir compte des pertes d'énergie induites par chaque type d'atome i selon leur densité volumique N_i et leur masse molaire A_i respectives. La perte d'énergie moyenne, définie par la règle d'additivité de Bragg, est la somme de la perte d'énergie induite par chacun des constituants :

$$\frac{dE}{dx} = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^n N_i \cdot A_i \left[\frac{dE}{dx} \right]_i \quad [\text{Rel. I-6}]$$

Le pouvoir d'arrêt permet d'évaluer le parcours réel de l'ion projectile dans la matière. Au cours de l'interaction, la vitesse de l'ion projectile diminue et l'ion se retrouve piégé dans le solide. Il est alors possible de déterminer par intégration de l'inverse de la perte d'énergie totale, la distance totale réelle parcourue (R_r) par un ion à l'intérieur de la cible.

$$R_r = \int_0^E \frac{1}{[dE/dx]} dE \quad [\text{Rel. I-7}]$$

où E représente l'énergie cinétique de la particule à son entrée dans le solide. Cependant, lors de son trajet dans le solide, l'ion présente une trajectoire non rectiligne du fait des collisions successives avec les constituants de la cible. Ceci conduit à des fluctuations dans le parcours (Straggling). Le paramètre important habituellement utilisé est le parcours projeté (R_p) suivant la direction du faisceau incident (fig. I-6).

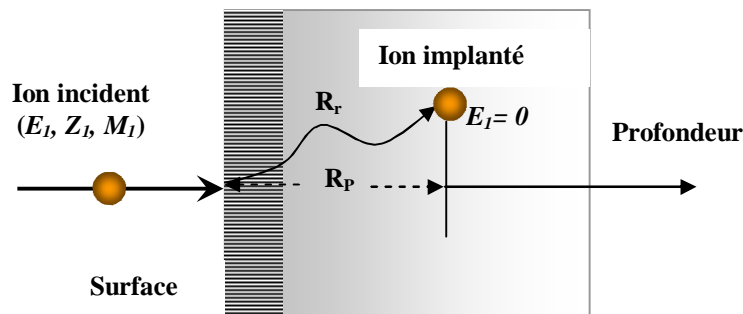


Figure I-6 : Parcours projeté R_p d'un ion dans un solide.

Notons que ces deux processus de perte d'énergie (électronique et nucléaire) existent toujours de façon simultanée. Leur importance relative dépend de l'ion projectile (énergie, charge et masse), et de la nature du matériau cible.

1-b : L'interaction ion - ion.

i : Collisions élastiques.

Ce processus de ralentissement dominant à basse vitesse ($V_1 < V_B$), est dû aux collisions élastiques entre l'ion incident et les noyaux des atomes cibles. L'ion incident transmet l'énergie cinétique aux noyaux des atomes cibles d'une façon élastique. Ces transferts directs d'énergie conduisent directement à des déplacements atomiques et par conséquent à la création de défauts et à l'éjection de particules de la surface du matériau.

ii : Le pouvoir d'arrêt nucléaire.

Les chocs élastiques entre les deux particules, régis par les lois de la mécanique classique et dont l'interaction est purement coulombienne, conduisent à des déplacements atomiques. La section efficace de collision S , représente la probabilité pour que l'ion projectile (M_1, Z_1, E_1) cède une quantité d'énergie T à l'atome cible (M_2, Z_2) pendant le processus d'interaction. D'après Lehman [Lehm 77], la section efficace de collision, dans le système de Gauss, est donnée par :

$$dS(E_1, T) = p \cdot \frac{M_1}{M_2} Z_1^2 Z_2^2 e^4 \frac{dT}{E_1 T^2} \quad [\text{Rel. I-8}]$$

Dans un milieu contenant N atomes cibles par unité de volume, l'énergie moyenne transmise par le projectile sur un parcours Δx est :

$$\bar{T} = N \Delta x \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T S(E_1, T) dT \quad [\text{Rel. I-9}]$$

T_{\min} représente une énergie minimale non nulle, introduite afin d'éviter la divergence de l'intégrale et T_{\max} l'énergie maximale fournie lors du choc frontal.

La grandeur ($\overline{\Delta E} = -\bar{T}$) est la perte moyenne d'énergie sur le parcours Δx . Nous pouvons également définir la perte moyenne d'énergie par unité de longueur de parcours : $\overline{\Delta E} / \Delta x = -\bar{T} / \Delta x$. Le pouvoir d'arrêt usuel s'écrit $-dE/dx$. Dans le cas de collisions élastiques intervenant dans un potentiel coulombien ($U(r) = Z_1 Z_2 / r$), le pouvoir d'arrêt est donné par :

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_n = 4pN [Z_1 Z_2 \cdot e^2]^2 \cdot \frac{1}{M_2 V_1^2} \ln \left[\frac{T_{\max}}{T_{\min}} \right] \quad [\text{Rel. I-10}]$$

Notons que cette formule du pouvoir d'arrêt nucléaire est une approximation grossière. Elle ne tient pas compte de l'écrantage des noyaux atomiques dû au nuage électronique des atomes cible et du projectile.

En utilisant un potentiel écranté de type Thomas-Fermi : $U_{TF}(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} j(r/a_{TF})$, où a_{TF} correspond au rayon d'écrantage, et $j(r/a_{TF})$ la fonction d'écrantage qui dépend à priori de la

vitesse de l'ion dans la mesure où l'écrantage dépend de l'état de charge de l'ion et des atomes cibles. Biersack [**Bier 68**] proposa une expression analytique du pouvoir d'arrêt nucléaire plus réaliste :

$$-\frac{dE}{dx}\Big|_n = 4pN a_{TF} \left[\frac{M_1}{M_1 + M_2} \right] \cdot Z_1 Z_2 e^2 \cdot \frac{\ln(e)}{2e(1 - e^{-1.49})} \quad [\text{Rel. I-11}]$$

Avec :

$$a_{TF} = \frac{0.4685}{\left[(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2}) \right]^{2/3}} (\text{\AA}).$$

et $e = \frac{M_2}{M_1 + M_2} \cdot \frac{E_1}{Z_1 Z_2 e^2} \cdot a_{TF}$ est l'énergie réduite dans le système du laboratoire, qui présente une mesure sur l'intensité de collision.

1-c : L'interaction ion-électron.

i : Collisions inélastiques.

Les collisions inélastiques, dominant à hautes vitesses ($V_1 \gg V_B$), correspondent aux chocs entre l'ion projectile et les électrons de la cible. Lors de l'interaction, les électrons vont ressentir simultanément le potentiel attractif des noyaux cibles et de l'ion projectile. Une partie de l'énergie cinétique perdue par l'ion projectile peut être transmise aux électrons, conduisant à des processus inélastiques d'excitation.

ii : Le pouvoir d'arrêt électronique.

Le dépôt inélastique d'énergie dépend de la vitesse V_I de l'ion projectile. Pour simplifier les descriptions des phénomènes accompagnés lors des irradiations, nous distinguons trois domaines différents de vitesses définis par rapport à la quantité $(Z_I^{2/3} V_B)$.

• **Domaine de hautes vitesses ($V_1 \gg Z_1^{2/3} V_B$).**

A ces vitesses, l'ion est complètement épluché de ses électrons et peut être donc considéré comme un ion de charge ponctuelle égale à $(Z_I e)$. Son ralentissement résulte des collisions élastiques avec les électrons de la cible dans un potentiel coulombien. L'expression du pouvoir d'arrêt dans ce domaine de vitesses, obtenue par un calcul classique de **Bohr** [**Bohr 15**] est donnée par la relation suivante :

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = 4p(N Z_2) \cdot \left[\frac{Z_1 e^2}{4p e_0} \right]^2 \frac{1}{m_e V_1^2} \cdot \ln \left[\frac{T_{\max}}{T_{\min}} \right] \quad [\text{Rel. I-12}]$$

NZ_2 est la densité électronique volumique de la cible et m_e la masse de l'électron.

Cette description balistique simple néglige tous les phénomènes d'excitations, pour tenir compte de ces excitations électroniques. Bethe a développé des calculs de mécanique quantique [Beth 33]. Le pouvoir d'arrêt électronique devient alors :

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = 4p(N Z_2) \cdot \left[\frac{Z_1 e^2}{4p e_0} \right]^2 \frac{1}{m_e V_1^2} \cdot \ln \left[\frac{2m_e V_1^2}{\hat{I}} \right] \quad [\text{Rel. I-13}]$$

La perte d'énergie électronique est donc proportionnelle à $1/V_1^2$ ($\sim 1/E^2$) et Z_2 . L'énergie moyenne d'excitation \hat{I} (Fig. I-7) est estimée [Zieg 80] par la relation semi-empirique $\hat{I} \approx 10 \cdot Z_2$ (eV).

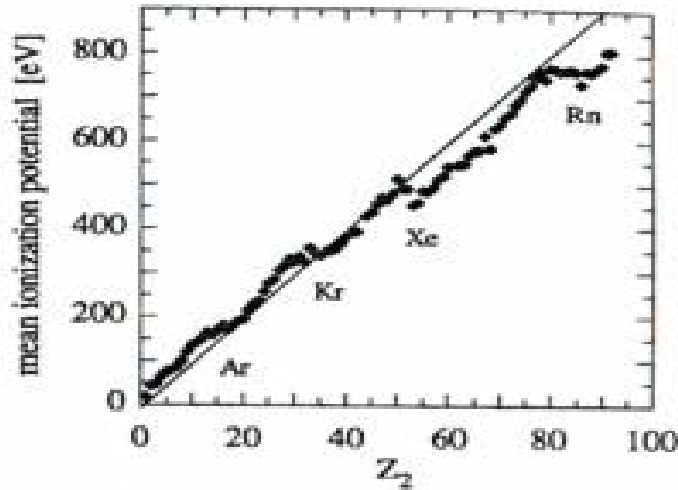


Figure I-7 : Le potentiel d'ionisation moyen \hat{I} en fonction de la charge Z_2 de plusieurs atomes. La droite correspond à $\hat{I} = 10 \cdot Z_2$.

La relation de **Bethe** [Rel. I-9] n'est valable que dans le cas où l'ion est complètement nu dans le solide. Sa vitesse V_1 doit être donc supérieure à la vitesse de ses propres électrons ($V_1 \gg Z_1^{2/3} V_B$), et à la vitesse des électrons de la cible ($V_1 \gg Z_2^{2/3} V_B$). Afin d'étendre le domaine de

validité de la formule de **Bethe** [Rel. I-9], une formulation plus complète de la perte d'énergie électronique, qui tient compte de la charge effective, de la correction des couches profondes qui augmente avec la diminution de la vitesse, des effets relativistes et de la densité du matériau cible, a été établie par **Bethe** et **Bloch** [**Bloc 33**] par des calculs quantiques:

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = 4p(NZ_2) \cdot \left[\frac{Z_1 e^2}{4p e_0} \right]^2 \frac{M_1}{2m_e E_1} \cdot \left[\ln \left[\frac{2 m_e V_1^2}{I(1-b^2)} \right] - b^2 - \frac{C}{Z_2} - d \right] \quad [\text{Rel. I-15}]$$

Avec :

$$b = V_1 / c.$$

$$C = \sum_i \frac{C_i}{Z_2}$$

C représente la correction des couches profondes et *d* la correction de l'effet de la densité du solide.

• **Domaine des vitesses intermédiaires ($V_1 \sim Z_1^{2/3} V_B$).**

Dans ce domaine de vitesse, l'ion se rhabille. Il capture des électrons de la cible et son état de charge diminue. On s'écarte de la loi de dépendance en I/E du dépôt d'énergie [Rel. I-9]. Le pouvoir d'arrêt passe par un maximum, appelé *pic de Bragg*, puis décroît en $E^{1/2}$ lorsque l'ion rentre dans le domaine des basses vitesses. Il y a de moins en moins d'ionisations des atomes cibles. Dans ce domaine de vitesses, il n'existe aucune formulation simple du pouvoir d'arrêt électronique.

• **Domaine des basses vitesses ($V_1 \ll Z_1^{2/3} V_B$).**

Dans ce domaine de basses vitesses, la théorie du pouvoir d'arrêt électronique de Bethe n'est plus valable, l'ion possède la majorité de ses électrons. Au cours de la collision entre l'ion et un atome cible, les nuages électroniques des deux partenaires se recouvrent pour former une quasi-molécule possédant ses propres états électroniques. Seuls les électrons des couches externes de la cible contribuent à la perte d'énergie de l'ion [**Lind 61**]. Ainsi dans ce domaine d'énergie, **Lindhard** et **Scharff** [**Scha 63**] ont proposé une expression du pouvoir d'arrêt électronique proportionnelle à la racine carrée de l'énergie cinétique de l'ion dans le solide :

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = 8p e^2 r_B N \cdot \frac{Z_1^{7/6} Z_2}{[Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}]^{3/2}} \cdot \left[\frac{\sqrt{2M_1}}{V_B} \right] \cdot \sqrt{E_1} \quad [\text{Rel. I-16}]$$

r_B représente le rayon de Bohr ($r_B = \frac{h^2}{m_e e^2} \cong 0.53 \text{ \AA}$).

Dans ce domaine de vitesses, **Firsov** [*Firs 59*] a proposé une autre expression du pouvoir d'arrêt électronique proportionnelle à la racine carrée de l'énergie cinétique de l'ion :

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = N_A \cdot 5,15 \cdot [Z_1 + Z_2] \cdot 10^{-15} \cdot \left[\frac{\sqrt{2M_1}}{V_B} \right] \cdot \sqrt{E_1} \quad (\text{eV/cm}) \quad [\text{Rel. I-17}]$$

Les expressions précédentes [Rel. I-11 et I-12] conduisent, malheureusement à des valeurs de pouvoir d'arrêt électronique assez éloignées des résultats expérimentaux. La précision des calculs des pouvoirs d'arrêt reste, dans une grande gamme d'énergie, insuffisante, à cause des difficultés de tenir compte de point de vue analytique, de tous les effets accompagnant la pénétration de l'ion projectile dans la matière tels que les potentiels d'ionisation dans le solide, les potentiels d'interactions réels, les effets des couches électroniques profondes, les effets d'écrantage,...etc. Cependant, le programme informatique, *SRIM 2003* (Stopping and **R**ange of **I**ons in **M**atter) [*Zieg 85*] basé sur des calculs Monte-Carlo, qui tient compte de l'énergie, la vitesse, la masse de l'ion, les propriétés du matériau et l'ajustement des modèles théoriques précédents sur les données expérimentales existantes, donne de très bonnes estimations du pouvoir d'arrêt, des distributions des ions implantés, des distributions angulaires et énergétiques des ions transmis et rétrodiffusés, les rendements (le nombre de particules éjectées) par ion incident, les parcours et les trajectoires des ions dans le solide.

La figure I-8 présente le pouvoir d'arrêt nucléaire, électronique et total d'une cible de UO_2 en fonction de l'énergie cinétique du projectile Xe , calculé à la charge d'équilibre par le programme *SRIM 2003*. Elle montre clairement que le pouvoir d'arrêt nucléaire est largement dominant à basse énergie ; tandis que le pouvoir d'arrêt électronique domine à haute énergie. A une valeur de l'énergie $E = 81 \text{ keV}$, correspond un rapport $(dE/dx)_n / (dE/dx)_e \sim 11.5$, la perte d'énergie par

collisions nucléaires est donc onze fois plus grande que la perte d'énergie par collisions électroniques.

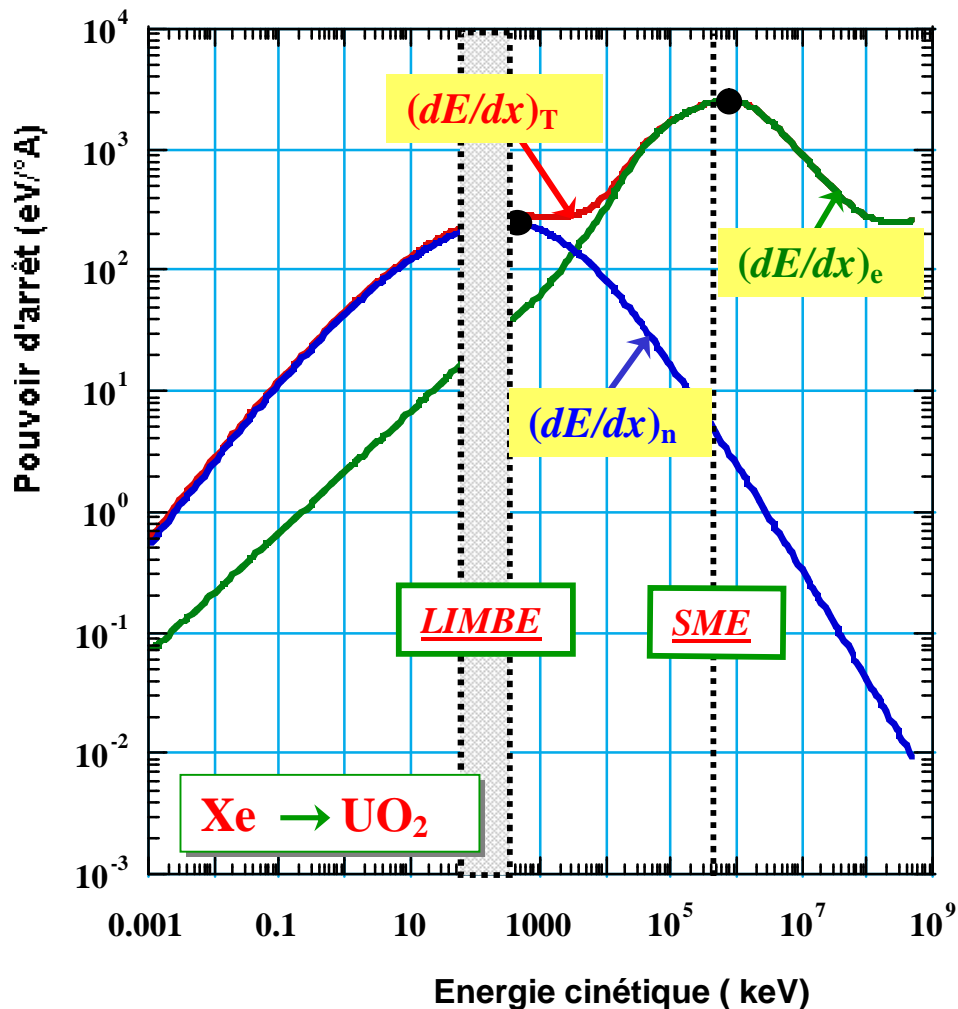


Figure I-8 : Evolution du pouvoir d'arrêt en fonction de l'énergie de la particule incidente dans une cible de dioxyde d'uranium pour un ion Xénon.

2-2 : Effets sur la charge de l'ion.

Les processus de capture électronique et d'ionisation, dominent à basses et hautes vitesses respectivement. La population électronique d'un projectile ionique dépend fortement de sa vitesse de déplacement dans le solide. La présence d'un cortège électronique autour du noyau, influence les

effets d'échange entre le projectile et le matériau cible, et par conséquent les pertes d'énergie électroniques et nucléaires.

Pour les ions de grandes vitesses, la notion de charge effective de l'ion, proposée par **Bohr** [**Bohr 48**] afin d'obtenir une meilleure estimation du pouvoir d'arrêt électronique, sera introduite dans cette section. Concernant les ions de faibles vitesses, nous nous intéresserons plus particulièrement à l'évolution de la population électronique des ions multichargés au voisinage immédiat de la surface de la cible, en introduisant ainsi le concept de l'atome creux. L'énergie potentielle transportée par un ion multichargé sera envisagée en tant que paramètre pertinent de la description de l'interaction ion-surface.

2-a : La charge effective à hautes vitesses.

Lorsqu'un ion assez énergétique pénètre dans la matière, il est premièrement dépouillé de ses électrons, puis en ralentissant, il capture à nouveau des électrons et prend une charge d'équilibre en fonction de sa vitesse V_I . La charge Z_I n'est plus la même qu'avant son entrée dans la matière. Le concept de la charge effective est introduit par **Bohr** [**Bohr 48**], afin de prolonger le domaine de validité du modèle de Bethe et Bloch. Il consiste à remplacer la charge de l'ion Z_I par la charge ionique effective Z_{eff} . **Bohr** a proposé l'expression suivante de la charge effective de l'ion :

$$Z_{eff} = Z_I^{1/3} \cdot \frac{V_I}{V_B} \quad \text{Si} \quad V_I < V_B Z_I^{2/3} \quad [\text{Rel. I-18}]$$

$$Z_{eff} = Z_I \quad \text{Si} \quad V_I \gg V_B Z_I^{2/3} \quad [\text{Rel. I-19}]$$

La charge effective peut être évaluée à l'aide de l'expression analytique proposée par **Barkas** [**Bark 63**] :

$$Z_{eff} = Z_I [1 - \exp(-125b Z_I^{-2/3})] \quad [\text{Rel. I-20}]$$

où $b = \frac{V_I}{c}$ et c est la vitesse de la lumière.

D'après cette relation, la charge effective prend des valeurs proche de Z_I à très basses vitesses et diminue avec l'augmentation de la vitesse.

2-b : L'atome creux à basses vitesses.

Lorsque la vitesse de l'ion projectile dans le solide est inférieure à la vitesse orbitale de la majorité des électrons de la cible ou de ses propres électrons, la capture électronique devient le processus inélastique le plus probable. Ainsi dans le régime du ralentissement nucléaire, l'équilibre de charge conduit à un ion quasiment neutralisé. La population électronique d'un projectile incident d'état de charge élevé sera donc très largement hors équilibre et d'intenses processus de transfert d'électrons auront lieu entre l'ion et la surface du solide. Cependant, il est clair que le calcul théorique de l'évolution de la charge du projectile dans le temps est très difficile et dépend fortement du couple ion - solide étudié.

La figure I-9 présente une description schématique du comportement du projectile multichargé au voisinage de la surface. Nous distinguons trois étapes différentes :

Ø Étape I : **Accélération de l'ion par sa charge image.**

Dans un premier temps, l'ion multichargé suffisamment proche de la surface, induit une réponse collective des électrons de la cible par la création d'une charge image dans le cas d'un métal et d'une polarisation du milieu pour un isolant, équivalente à la migration en surface des électrons d'un métal. La charge image de signe opposé accélère l'ion multichargé vers la surface.

Ø Étape II : **Neutralisation et formation d'un atome creux de Rydberg.**

A partir d'une distance donnée de la surface du solide, la probabilité de neutralisation augmente par la capture des électrons de la surface. Ces électrons sont principalement capturés par les couches les plus externes de l'ion (les états élevés de Rydberg). Les couches internes restent transitoirement vides, formant ainsi un atome exotique appelé « atome creux » [Arna 97].

Ø Étape III : **Relaxation sous la surface.**

Lorsque l'atome creux pénètre la surface du solide, les électrons peu liés dans les couches externes sont arrachés. On parle alors d'épluchage de l'atome creux, d'autres électrons sont capturés par les états bas de Rydberg. Parallèlement à la neutralisation par capture d'électrons dans les états extrêmement excités et en conséquence de la relaxation de l'énergie potentielle de l'ion multichargé, les états électroniques internes commencent à se remplir, essentiellement par des processus de désexcitations radiatives (RX) et émissions de types Auger. La probabilité de neutralisation augmente rapidement. Cette neutralisation peut être décrite par le modèle Classical-

Over-the *Barrier Model* « *COBM* » [Ryuf 80] adapté au cas des ions lents multichargés-métaux [Burg 91].

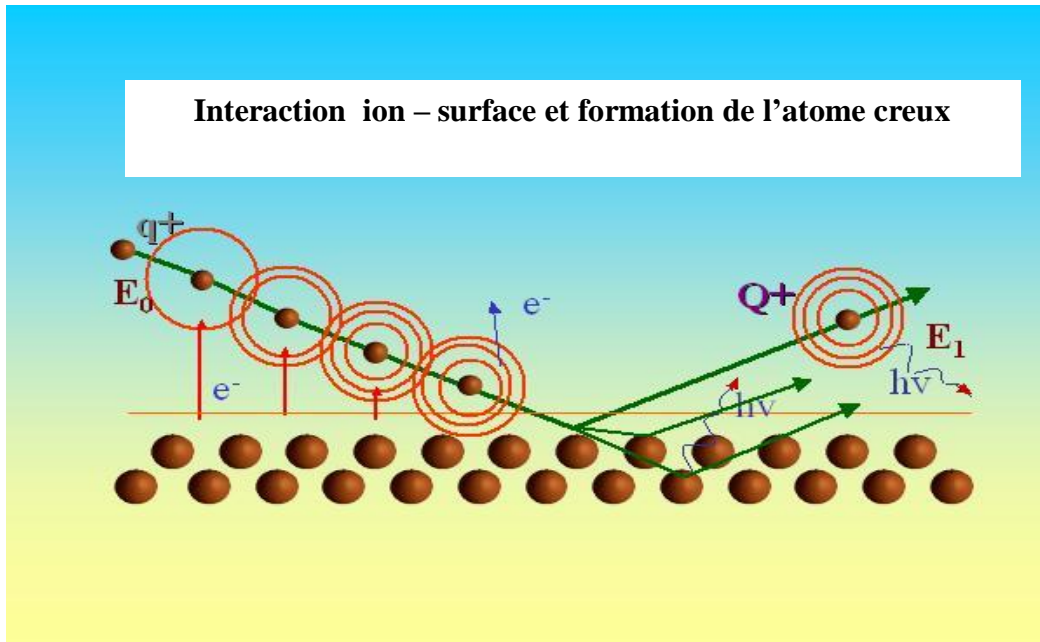


Figure I-9 : Scénario d'interaction ions multichargés surface.

Les ions lents multichargés sont complètement neutralisés quand la diffusion sous faibles angles se produit. Ainsi les particules chargées diffusées proviennent de la surface du solide, tandis que les particules neutres proviennent des couches internes [Pesi 01]. La charge d'équilibre de l'ion projectile multichargé à l'intérieur du solide sous la surface est largement inférieure à sa charge initiale Z_I ($Z_{eff} \sim 1$ pour $V_I < V_B$) [Sche 97].

La mesure de l'état de charge des ions lents multichargés, après leur passage à travers une feuille mince de la matière, permet de déterminer le temps nécessaire pour que l'ion lent multichargé atteigne son état de charge d'équilibre dans le solide.

2-3 : Variation de l'énergie potentielle en fonction de la charge.

L'énergie potentielle associée à un ion multichargé est définie comme étant la somme des énergies d'ionisations successives depuis l'atome neutre jusqu'à l'ion dans son état de charge final. La figure I-10 présente l'évolution de l'énergie potentielle des ions multichargés Ne^{q+} , Ar^{q+} et Xe^{q+} en fonction de la charge correspondante.

Dans le domaine du pouvoir d'arrêt électronique, l'énergie potentielle d'un ion projectile de grande énergie, même s'il est totalement épluché, est négligeable devant son énergie cinétique (par exemple au Ganil : $E_c(Xe^{q+}) = 24 \text{ MeV/uma}$; $E_p(Xe^{54+}) \sim 202 \text{ keV}$).

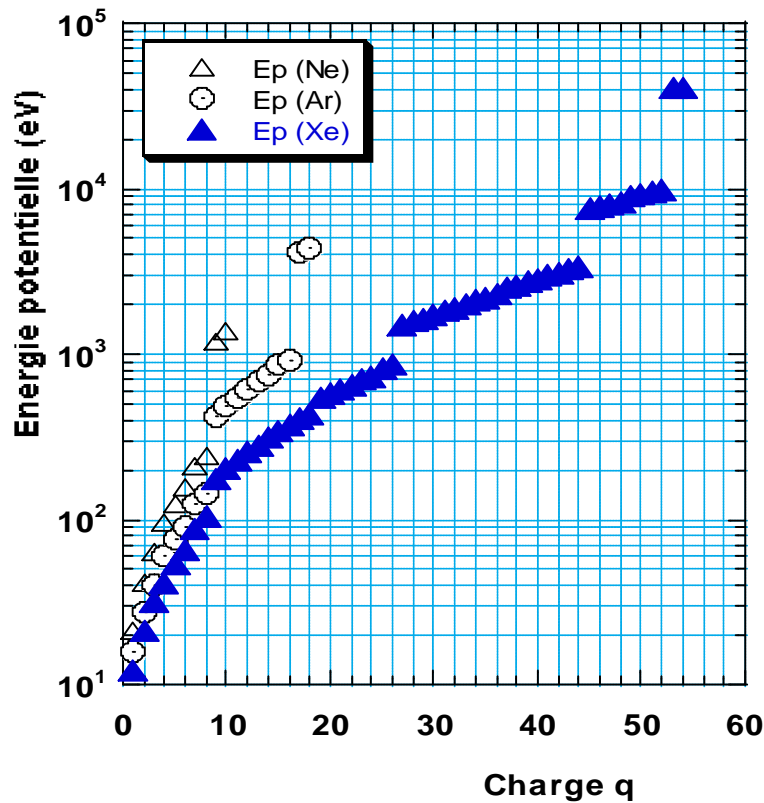


Figure I-10 : Variation de l'énergie potentielle des ions de Ne^{q+} , Ar^{q+} et Xe^{q+} en fonction de la charge.

Par contre dans le domaine du pouvoir d'arrêt nucléaire, l'énergie potentielle d'un ion multichargé devient comparable ou plus grande que son énergie cinétique (par exemple : $E_c(Xe^{q+}) = 81 \text{ keV} \cdot q$, $E_p(Xe^{45+}) \sim 65 \text{ keV}$), et devient ainsi un paramètre pertinent, de l'interaction ion matière dans ce domaine d'énergie, qui doit être pris en compte. Des effets d'émission de particules depuis la surface sont alors observés. La vitesse du projectile, n'est plus le seul paramètre important de la description de cette interaction, la charge et l'énergie potentielle doivent être prises en considération. Il est clair que le projectile multichargé de basse énergie dépose son énergie cinétique ou potentielle par des mécanismes différents. Cependant, il n'est pas évident de séparer les effets liés à ces deux mécanismes complémentaires de perte d'énergie.

2-4 : Effets induits dans le matériau cible.

4-a : Création de défauts par collisions élastiques à basses vitesses.

Les transferts d'énergie aux atomes de la cible pendant le ralentissement nucléaire peuvent conduire, si l'énergie cinétique transférée est suffisamment grande, à des déplacements atomiques. Si l'énergie transférée à un atome, est supérieure à l'énergie seuil de déplacement E_d (E_d dépend de la nature du matériau et de son orientation cristalline, par exemple pour le *cuivre*, $E_d \langle 100 \rangle = 19eV$, $E_d \langle 110 \rangle = 23eV$, $E_d \langle 111 \rangle = 76eV$) [**King 80**]), cet atome sera éjecté suffisamment loin de son site et donne lieu à la création de défauts de **Frenkel**. De plus si l'énergie communiquée à l'atome primaire qui a initié la cascade (soit l'ion projectile lui même ou un atome de la cible (en anglais : **Primary Knock-on Atom : PKA**) est suffisamment grande par rapport à l'énergie seuil (E_d), il peut à son tour déplacer d'autres atomes (**Secondary Knock-on Atom : SKA**), induisant ainsi une cascade de collisions et peut être l'éjection des atomes de la surface. Le nombre moyen d'atomes déplacés (N_d) par atome primaire ayant reçu l'énergie E_T selon la description de **Kinchin** et **Pease** basée sur le modèle de la sphère dure [**Kinc 55**], est défini selon trois cas :

- 1) $N_d = 0$, Si $E_T < E_d$; le noyau cible reste immobile.
- 2) $N_d = 1$, Si $E_d < E_T < 2 E_d$; le noyau cible se déplace en site interstitiel
cédant ainsi sa place à une lacune conduisant à la formation du défaut de Frenkel.
- 3) $N_d = \frac{1}{2Ed}$, Si $E_T > 2 E_d$; le noyau cible devient à son tour un projectile
primaire pour les autres atomes. Ces déplacements successifs formeront une cascade de collisions.

Le programme **SRIM** permet de simuler la trajectoire d'un ion dans un solide, ainsi que les déplacements atomiques résultant de son ralentissement

4-b : Création de défauts par collisions inélastiques à hautes vitesses.

Contrairement aux basses énergies où les défauts induits par des chocs élastiques sont créés par des processus directs, les défauts induits à hautes énergies par des collisions inélastiques font intervenir des processus indirects et complexes.

La majorité de l'énergie perdue par le projectile le long de sa trajectoire dans le matériau est transférée aux électrons de la cible, entraînant une forte densité de charge dans la zone localisée autour de la trajectoire des ions. Cette forte densité d'ionisation peut conduire à la création d'une zone fortement endommagée « *trace latente* ». Les interactions inélastiques jouent un rôle majeur dans les isolants et les composés organiques [*Chai 96*], et un faible effet dans les métaux. Dans de nombreux matériaux cristallins, cette trace est constituée de matière désordonnée et on parle donc d'amorphisation [*Barb 91*]. Dans d'autres matériaux, un changement de phase cristalline peut être observé [*Beny 01*]. Dans le cas de dioxyde d'uranium, l'apparition d'une structure polygonale sous irradiation par des ions de Xénon de 370 MeV , ressemble à l'apparition de sous joints de grains [*Garr 98*].

4-c : cas des ions lents multichargés.

L'irradiation d'un solide par des ions lents multichargés, peut induire des processus atomiques élastiques et également des processus électroniques inélastiques. Cependant, il apparaît que le dépôt d'énergie d'un tel ion, lors de collisions élastiques sur les atomes de la cible, dépend fortement de l'état de charge de l'ion dans le solide, qui est loin de son état de charge d'équilibre, au moins dans les premiers temps de son parcours sous la surface.

De plus, l'influence d'un ion fortement chargé sur les électrons d'un solide ne peut être négligée. Ainsi l'excitation électronique est également induite par ionisation de la surface à l'approche de l'ion, de même, lors de la neutralisation et de la désexcitation de l'ion sous la surface. Les différents processus mis en jeu vont fortement perturber le système électronique du solide. La quantification d'une telle excitation électronique ainsi que ses conséquences sur l'état de la matière, nécessite de prendre en considération un nombre important de particules en interaction. Dans le cas des métaux, l'étude de l'interaction ion multichargé - surface, peut se faire par l'introduction du concept de la charge image [*Burg 93*]. L'ion va gagner une énergie cinétique significative supplémentaire due à leur accélération par sa charge image.

Pour le cas des ions lents multichargés, jusqu'à maintenant il n'existe aucun modèle théorique qui permet de décrire l'excitation d'un solide irradié par un tel projectile. L'étude de l'effet de la charge du projectile sur le processus de pulvérisation ionique, est une tentative

expérimentale entreprise dans le cadre de cette thèse pour mieux comprendre les mécanismes d'excitation du solide dans ce cas précis, par l'intermédiaire de la mise en mouvement de ses atomes.

I-3 : L'émission ionique des particules.

Dans les sections précédentes, nous nous sommes intéressés à la réponse d'une cible solide au passage d'un ion énergétique et de son devenir, en s'approchant de la surface et à l'intérieur du matériau. Au cours des paragraphes suivants, nous nous intéresserons au phénomène de pulvérisation, provenant de l'éjection des particules (atomes, molécules, agrégats, neutres ou ionisés) d'une surface solide, suite à une irradiation ionique et plus particulièrement par des ions multichargés à basse et à haute énergies.

Comme mentionné précédemment (§ : I-2), l'ion projectile interagit avec le solide par des collisions élastiques avec les noyaux de la cible à basse énergie ($\sim keV/uma$), et par collisions inélastiques avec les électrons de la cible à haute énergie ($\sim MeV/uma$). On distinguera donc la pulvérisation nucléaire induite par le pouvoir d'arrêt nucléaire [Zieg 85] et la pulvérisation *électronique* induite par le pouvoir d'arrêt électronique [Schi 01]. Dans le cas des projectiles lourds hautement chargés de basse énergie, des effets de pulvérisation liés à l'état de charge du projectile ont été récemment observés [Sche 00], d'où la notion de la pulvérisation potentielle.

3-1 : La pulvérisation nucléaire.

Dans le régime de basses vitesses ($V_I < V_B$), l'ion projectile dépose son énergie cinétique sur les atomes de la cible par des collisions élastiques. Si l'énergie transférée aux atomes cibles est supérieure à l'énergie de liaison en surface, ces atomes peuvent être éjectés de la surface vers le vide, ou subir des collisions qui peuvent mettre en mouvement d'autres atomes à l'intérieur du solide entraînant des *cascades de collision*.

Selon la quantité d'énergie initiale déposée sur l'atome (PKA) et le nombre d'atomes de recul créés par le passage de l'ion, on distingue trois régimes de pulvérisation nucléaire (fig. I-11) : régime de collisions simples, de cascade linéaire et le régime de pointe. Le processus de collision simple et de cascade linéaire appartient au régime linéaire de la pulvérisation, tandis que celui de la pointe appartient au régime non linéaire de la pulvérisation nucléaire.

1-a : Régime de collisions simples.

La pulvérisation dans ce régime de simples collisions, est caractérisée par le faible nombre d'atomes mis en mouvement lors du ralentissement de l'ion projectile et la grande sensibilité à l'angle d'incidence. Cette situation correspond à la pulvérisation induite par des projectiles de faible énergie cinétique ou par des ions légers (*H*, *He* de quelques *keV*) [Yama 96]. L'énergie moyenne transférée à un atome (*PKA*) est insuffisante pour développer une cascade de collisions (Fig. I-11 a). Dans ce régime, la pulvérisation est induite par de très courtes séquences de collisions, dont la contribution doit être observée dans la distribution en angle et en énergie des atomes pulvérisés (Fig. I-13 et Fig. I-14).

Selon Eckstein et al. [Ecks 91], on distingue quatre mécanismes de pulvérisations (Fig. I-12) dans ce processus de collisions.

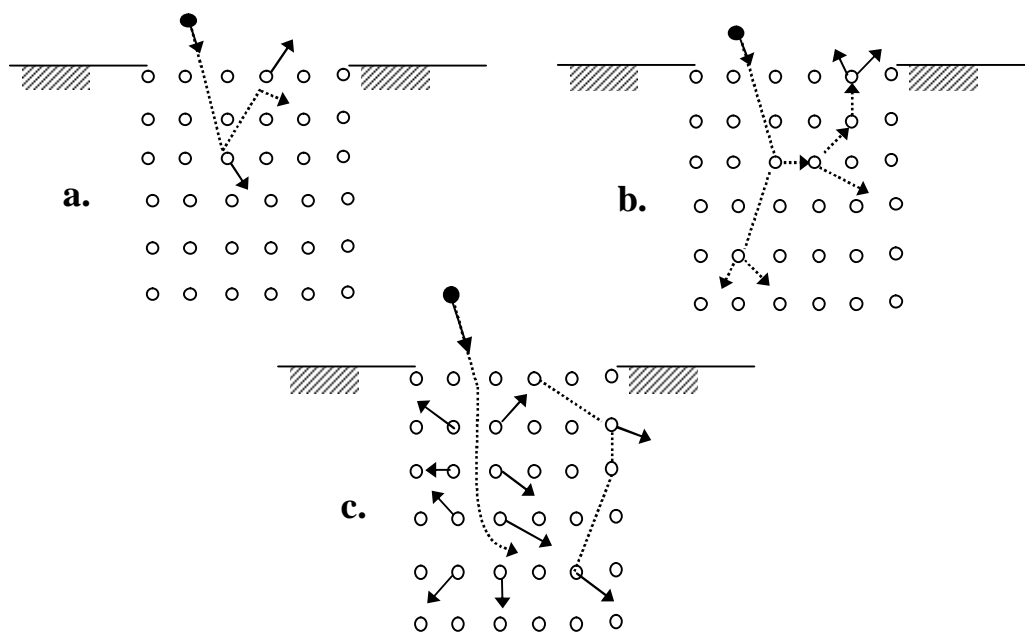


Figure I-11 : Régimes de pulvérisation nucléaire [Sigm 81], régime de collisions simples (a), régime de cascade de collisions linéaires (b), régime de pointe (c)

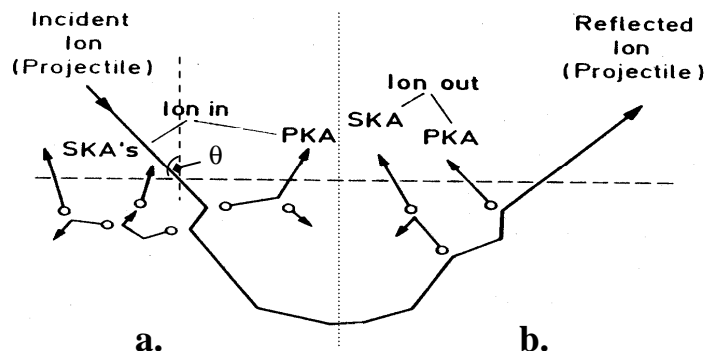


Figure I-12 : Les quatre mécanismes d'éjection des atomes dans le régime de collisions simples à l'entrée de la surface (a) et à la sortie de la surface (b).

- 1) Ejection d'un atome de recul primaire à la surface d'entrée : *PKA ion in*.
- 2) Ejection d'un atome de recul secondaire à la surface d'entrée : *SKA ion in*.
- 3) Ejection d'un atome de recul primaire à la surface de sortie : *PKA ion out*.
- 4) Ejection d'un atome de recul secondaire à la surface de sortie : *SKA ion out*.

La figure I-13 présente le rendement de pulvérisation obtenu par des calculs Monte Carlo [Bier 84], en fonction de l'énergie cinétique initiale de l'ion Néon bombardant une cible de Nickel sous une incidence normale ($q = 0$). Les résultats de ces calculs montrent, d'une part que le rendement de pulvérisation suit l'évolution du pouvoir d'arrêt nucléaire. Le nombre d'atomes pulvérisés augmente et le rendement atteint un maximum ($Y_{max} \sim 2$) pour une énergie égale à 10 keV, puis décroît pour les énergies supérieures. D'autre part, le rendement augmente avec la masse du projectile ($Y_{max}(H/Ni) \sim 0.015$; $q = 0^\circ$).

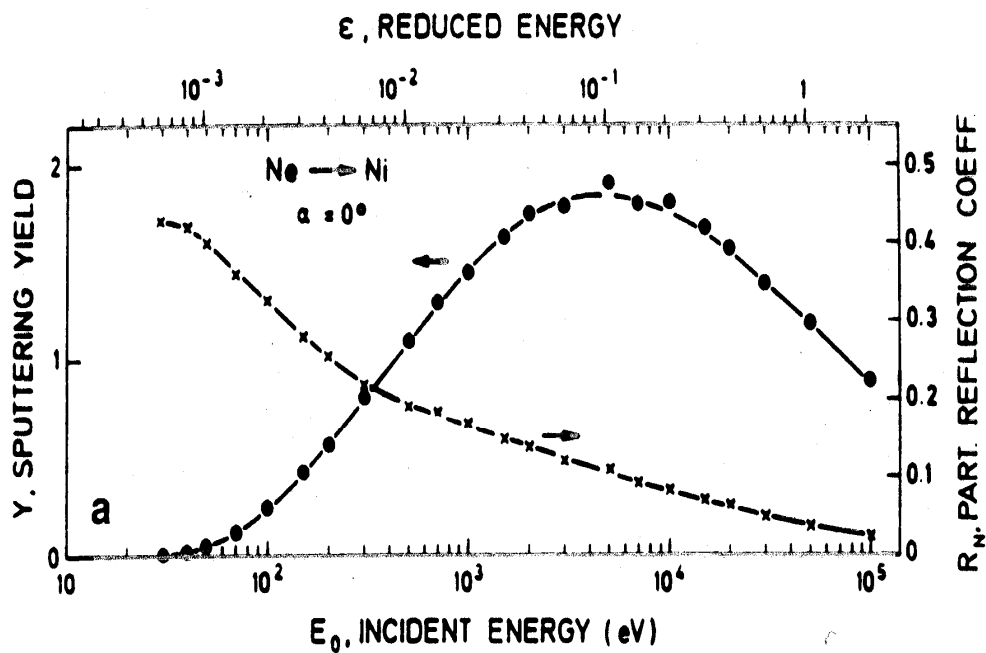


Figure I-13 : Rendement de pulvérisation total en fonction de l'énergie cinétique initiale du projectile

La figure I-14 montre les contributions relatives des quatre processus de pulvérisation proposés par Eckstien [Bier 84].

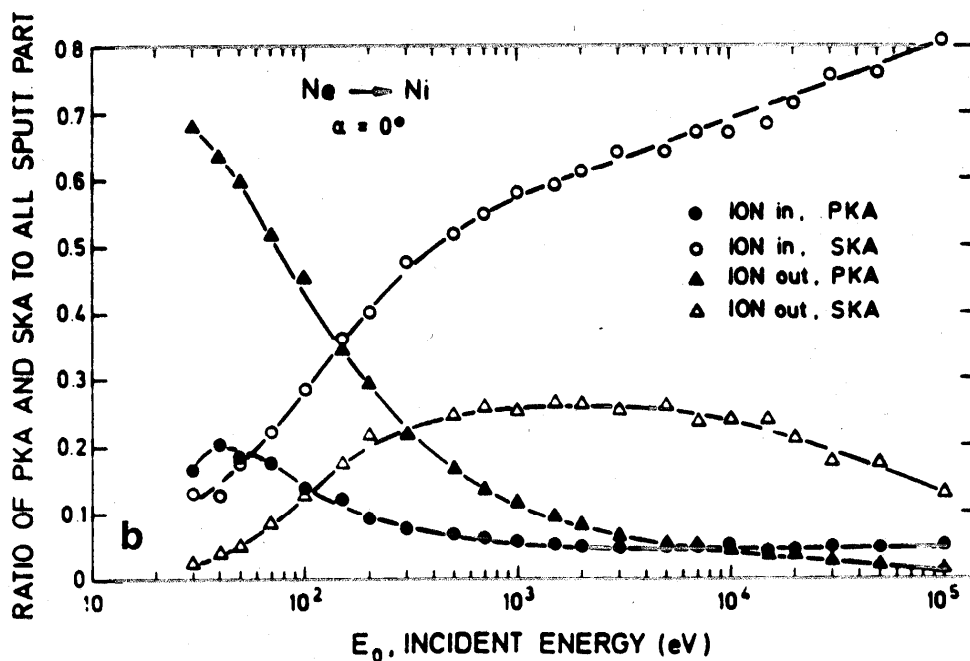


Figure I-14 : Les contributions relatives des quatre processus de pulvérisation

D'après ce calcul, la pulvérisation à basse énergie cinétique est essentiellement induite par l'émission d'atomes de recul primaires lors de la rétrodiffusion du projectile (*PKA ion rétrodiffusé*). En effet, la probabilité de création d'atomes de recul secondaires (*SKA*) énergétiques est très faible et l'énergie transférée lors d'une collision, à grand paramètre d'impact, dans la voie d'entrée est trop faible pour permettre l'émission d'un atome de recul primaire (*PKA ion incident*). Au contraire, pour les ions projectiles de grande énergie cinétique, l'énergie moyenne transférée lors des collisions dans la voie d'entrée est suffisamment importante pour que la pulvérisation d'atomes de recul secondaire (*SKA*) soit le processus dominant. Pour des projectiles de masse élevée, le processus de pulvérisation d'atomes de recul secondaires (*SKA*) dans la voie d'entrée devient très rapidement dominant.

Ainsi, dans le cas d'un ion *xénon* et d'une cible de dioxyde d'uranium, il est attendu que le processus de pulvérisation dominant dans le régime de simples collisions serait celui de l'éjection d'un atome de recul secondaire (*SKA*) lorsque le projectile entre dans le solide (*ion incident*). Cela peut être justifié par le transfert maximum d'énergie ($T_{max} = [4M_1M_2E_1/(M_1+M_2)^2]$). Dans le cas de l'hydrogène dans le nickel [$T_{max}(H/Ni) = 4.(1.58)/(1+58)^2 .E \gg 6,7.10^{-2}.E$] et du xénon dans l' UO_2 [$T_{max}(Xe/UO_2) = 4.(129.270)/(129+270)^2 .E \gg 8,75.10^{-1}.E$].

La pulvérisation dans ce régime de collisions simples peut être facilement étudiée par des programmes de simulations numériques, tels que *SRIM* et *ACAT* [*Yama 78*]. Les résultats de simulation dans ce régime sont en accord avec les valeurs expérimentales [*Bier 87*].

1-b : Régime de cascades linéaires.

Dans le régime de cascade linéaire, les collisions entre l'ion projectile et les atomes de la cible créent des atomes de recul suffisamment énergétiques qui peuvent à leur tour créer d'autres générations d'atomes de recul. La densité d'énergie déposée sur les atomes de la cible est relativement faible, de telle sorte que la densité des atomes mises en mouvement par cascade est supposée pas trop élevée pour que les collisions entre ces atomes de recul soient très rares (Fig. I-11, b). Dans ces conditions, les séquences de cascade peuvent être décrites par l'équation linéaire de transport de Boltzmann [*Sigm 69*]. Ces collisions sont habituellement traitées comme des collisions binaires entre deux participants uniquement, dont l'énergie est comprise entre quelque *keV* jusqu'à quelques centaines de *keV*, sauf pour les ions lourds qui induisent une forte densité d'atomes en mouvement [*Sigm 81*].

L'étude théorique de cascade de collision linéaire a été bien détaillée par P. Sigmund [*Sigm 69*]. Le processus de pulvérisation peut être divisé en trois étapes :

1. Le ralentissement et la dissipation de l'énergie de l'ion.
2. Le développement de la cascade lui-même.
3. Le passage des atomes de la cascade de collision à travers la surface et deviennent des atomes pulvérisés.

Les distributions d'énergie théoriques de la cascade à l'intérieure de la cible « spectre interne » prédisent un comportement en puissance E^{-n} ($n \gg 2$). La distribution expérimentale d'énergie des atomes pulvérisés « spectre externe » s'écarterait cependant de la distribution d'énergie interne « spectre interne », essentiellement par l'effet des forces de liaison en surface lors du passage de l'atome éjecté.

La théorie de cascades linéaires de collision a été initialement développée pour des cibles amorphes par la résolution de l'équation de transport de **Boltzmann**, pour des sections efficaces de collisions élastiques (nucléaires) de types **Thoms-Fermi** [*Sigm 69*]. L'expérience montre que le réseau cristallin ne joue pas un rôle important sur les rendements totaux, les distributions en énergie et en angle ; ainsi que la validité de ce modèle peuvent être étendues aux cibles polycristallines. La théorie de cascade linéaire prédite une distribution angulaire en cosinus du flux d'atomes pulvérisés :

$$\frac{d\Phi}{d\Omega} \propto \cos^n \theta \quad \text{Avec } 1 \leq n \leq 2 \quad [\text{Rel. I-16}]$$

Où θ représente l'angle polaire entre les particules pulvérisées et la normale à la surface. Cette distribution est indépendante de l'angle d'incidence, à l'exception pour les incidences rasantes « glancing » où il faut tenir compte des effets additionnels dus à la structure de la surface.

En prenant $n=1$, le rendement différentiel de pulvérisation, contenant les distributions en angle et en énergie, donne la distribution triplement différentielle de **Sigmund-Thompson** pour le flux Φ d'atomes pulvérisés :

$$\frac{d^3\Phi}{dE d^2\Omega} \propto \frac{E}{(E + U_s)^{3-2m}} \cdot \cos \theta \quad [\text{Rel.I-17}]$$

U_s est l'énergie de liaison de surface. Elle représente l'énergie seuil de pulvérisation des particules, usuellement prise égale à la chaleur de sublimation (la somme de l'énergie de fusion et l'énergie d'évaporation) du solide considéré. θ : correspond à l'angle par rapport à la normale à la

surface du flux d'atomes pulvérisés dans l'angle solide dW . m : est un paramètre dépendant de l'énergie utilisée dans la description d'un potentiel d'écrantage coulombien dans l'estimation des sections efficaces de collision et varie entre 0.5 pour les énergies moyennes (100 keV dans le cas de Ar/Cu) et 0 pour les très faibles énergies.

La forme de la distribution en énergie [Rel. I-17] du flux d'atomes pulvérisés, est indépendante de l'énergie de l'ion projectile, de l'angle d'incidence ainsi que de la direction d'émission des atomes pulvérisés et présente un maximum à :

$$E_{Max} = \frac{U_s}{2(1-m)} \quad [\text{Rel. I-18}]$$

De plus, le rendement de pulvérisation déduit à partir de l'expression du flux est proportionnel au pouvoir d'arrêt nucléaire ($-dE/dx$)_n.

1-c : Régime de la pointe.

Lorsque la densité d'énergie transférée aux atomes cible atteint un certain niveau, la majorité des atomes à l'intérieur d'un petit volume, appelé, volume de la cascade ou de la pointe, [*Thom 81*], sont mis en mouvement (Fig.11-I, c). Dans ce petit volume, presque tous les atomes en mouvement, interagissent entre eux. Il s'agit du régime de pulvérisation non-linéaire qui existe par exemple pour des ions lourds d'énergie supérieure à 100 keV. Cette non linéarité est souvent expliquée par le concept de la pointe thermique

Si les atomes de recul dans la pointe peuvent atteindre l'équilibre thermodynamique local, alors la distribution de leurs énergies cinétiques correspond à une distribution de *Maxwell-Boltzmann*. Le flux d'atomes traversant la surface est alors caractérisé par la relation suivante [Rel. I-19] :

$$\frac{d^3\Phi}{dE d^2\Omega} \propto E e^{-E/kT_p} \cdot \cos q \quad [\text{Rel. I-19}]$$

T_p représente la température de la pointe ($T_p \sim 10^3 - 10^4$ K) et correspond à l'énergie moyenne des atomes dans le volume de la pointe.

La faiblesse majeure de ce modèle est l'hypothèse très forte d'un équilibre thermodynamique local. En effet, le concept de température est de nature statistique et ne peut pas s'appliquer qu'à un système comportant un grand nombre d'éléments. Ce point est aujourd'hui encore le sujet de nombreuses controverses. En introduisant une force de liaison en surface dont les

atomes doivent s'affranchir pour être pulvérisés, une relation alternative à la relation [Rel. I-19] peut s'écrire selon l'expression suivante :

$$\frac{d^3 \Phi}{dE d^2 \Omega} \propto E e^{-(E+U_s)/kT_p} \cdot \cos q \quad [\text{Rel. I-20}]$$

Sigmund et collaborateurs [*Sigm 81*], [*Sigm 84*] ont proposé une relation dans l'hypothèse d'un volume de pointe cylindrique semi- infini donnée par la relation suivante, où T_A correspond à la température ambiante (macroscopique) du solide.

$$\frac{d^3 \Phi}{dE d^2 \Omega} \propto E e^{-(E+U_s)/k(T_p+T_A)} \cdot \cos q \quad [\text{Rel. I-21}]$$

3-2 : La pulvérisation électronique.

La perte d'énergie des projectiles dont la vitesse est supérieure à la vitesse de Bohr ($V > V_B$), provient principalement de l'excitation électronique de la cible. Cette forte excitation locale peut conduire à la mise en mouvement des atomes et à la création de défauts. Près de la surface, cette mise en mouvement des atomes pourra se traduire par l'émission de particules vers le vide. On parle donc de la pulvérisation *électronique*.

La pulvérisation électronique est un phénomène indirect qui nécessite l'existence d'un mécanisme permettant de convertir l'excitation du système électronique en mouvement d'atomes. Ainsi, dans ce régime, les propriétés spécifiques du matériau jouent un rôle très important. Les cristaux ioniques ou les solides des gaz rares, sont des matériaux où l'excitation électronique conduit souvent à la formation d'excitons pour lesquels la pulvérisation électronique est observée à faible pouvoir d'arrêt. Pour une excitation électronique très intense, les différences de comportement entre les matériaux s'estompent et on observe alors une pulvérisation électronique des isolants comme dans les semi-conducteurs [*Itoh 87*] et les métaux [*John 93, Brow 93*].

La figure I-14 présente les temps caractéristiques des événements induits lors du passage de l'ion lourd énergétique dans un solide isolant [*Ritc 82*].

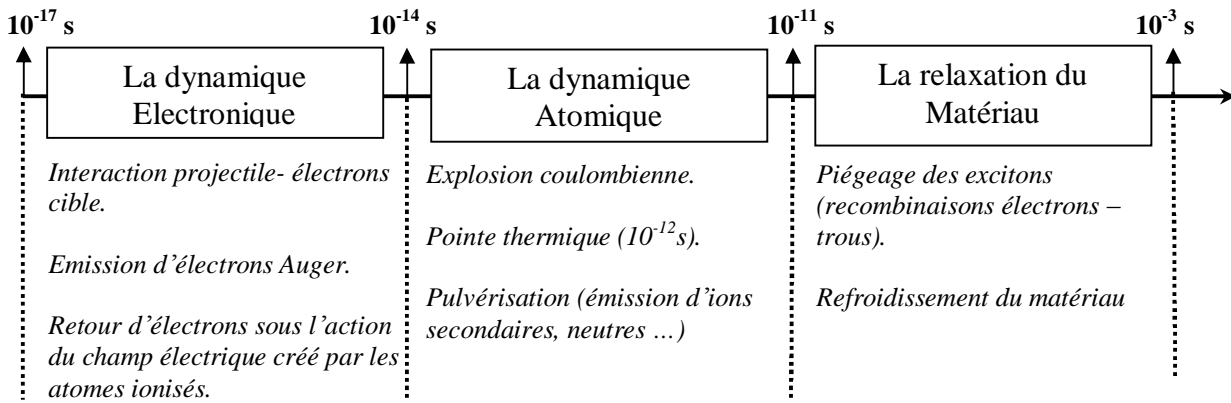


Figure I-14 : Temps caractéristiques de l'interaction ion lourd matériau isolant.

Cependant, plusieurs modèles sont proposés, d'un côté pour décrire la dissipation de l'énergie d'un projectile le long de sa trajectoire dans le solide et d'autre part pour expliquer le phénomène d'émission des particules. Dans les paragraphes suivants, on s'intéresse beaucoup plus aux modèles *collectifs*, qui décrivent les processus d'émission des particules sous *formes d'agrégats* ; phénomène observé au cours du bombardement des solides par des ions lourds ou des ions polyatomiques [Bite 87], ainsi que par des ions lent multichargés [Sche 98]. Notons que ces modèles sont issus de deux différentes approches : thermique et hydrodynamique.

2-a : Approche thermique.

Ce modèle fut proposé en 1923 par Desauer [Desa 23], et appliqué pour la première fois aux métaux par Seitz et Koehler en 1956 [Seit 56]. Il consiste à supposer que l'énergie de l'ion incident déposée localement sur les électrons de la cible est diffusée aux atomes du réseau via le couplage électron-phonon. Le fort dépôt d'énergie autour de la trajectoire de l'ion peut ainsi provoquer la fusion d'une région cylindrique le long du parcours de l'ion. On parle donc de « la *pointe thermique* ».

L'évolution de la température au cœur de la trace va dépendre de la quantité d'énergie déposée, du parcours des électrons excités ainsi que des propriétés thermique du matériau. L'élévation brutale de température au niveau de la trajectoire de l'ion, peut conduire ainsi à l'émission d'atomes en surface. Deux modèles sont proposés (fig. I-15) pour expliquer l'émission thermique des particules [Reim 93] :

1. Le modèle de pulvérisation par évaporation thermique (*processus individuel*), qui correspond au régime de pointe décrit précédemment.

2. Le modèle de pulvérisation par flux gazeux (*processus collectif*), qui correspond à une transition de phase solide-gaz irréversible.

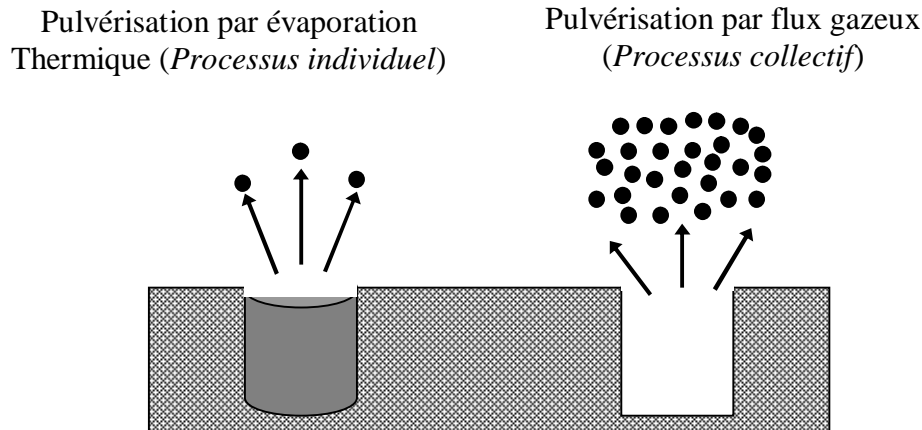


Figure I-15 : Processus de pulvérisation par pointe thermique [Reim 93].

Dans les deux cas, la distribution angulaire de pulvérisation doit être proche de celle d'un flux isotrope ($dY/d\Omega \sim \cos(\theta)$). Pour ces deux modèles également, il existe un seuil en pouvoir d'arrêt en dessous duquel la pulvérisation n'a pas lieu. Ce seuil est défini par l'énergie de liaison de surface dans le modèle d'évaporation et par la température de condensation dans le modèle de flux gazeux. Enfin, le modèle d'évaporation prédit une variation quadratique du rendement en fonction du pouvoir d'arrêt électronique, $Y \sim [dE/dx]_e^2$ dans le cas de dépôt d'énergie élevé et une variation linéaire $Y \sim [dE/dx]_e$ pour les faibles densités d'excitations, tandis que le modèle de flux gazeux prédit une variation en $[dE/dx]_e^3$ [Urba 87], du rendement de pulvérisation.

Dans le modèle de la pointe thermique développé au *CIRIL* pour caractériser les défauts induits dans les isolants [Toul 94, Meft 94], dans les semi-conducteurs [Vett 98] et dans les conducteurs [Toul 94], le matériau est subdivisé en deux sous systèmes en interaction :

1. Le gaz d'électrons, à la température T_e , caractérisé par sa chaleur spécifique C_e et sa conductivité thermique K_e .
2. Le réseau atomique, à la température T_a , caractérisé lui aussi par sa chaleur spécifique C_a et sa conductivité thermique K_a .

Le transfert de l'énergie des ions incidents se fait en deux temps :

- I. l'énergie des ions incidents est déposée sur les électrons en un temps de l'ordre de 10^{-15} secondes.
- II. l'énergie est ensuite transférée des électrons vers les atomes en un temps variant de 10^{-13} à 10^{-10} secondes. Ce transfert est gouverné par le couplage électron-phonon.

Au cours de ce processus, l'énergie diffuse radialement dans les deux sous systèmes. Le bilan de transfert d'énergie se traduit par l'écriture de deux équations différentielles couplées régissant l'évolution de la température des deux sous-systèmes. Ce bilan s'établit dans une géométrie cylindrique dont l'axe (Ox) est l'axe de passage des ions. r est la distance à cet axe et t le temps (Fig. I-16).

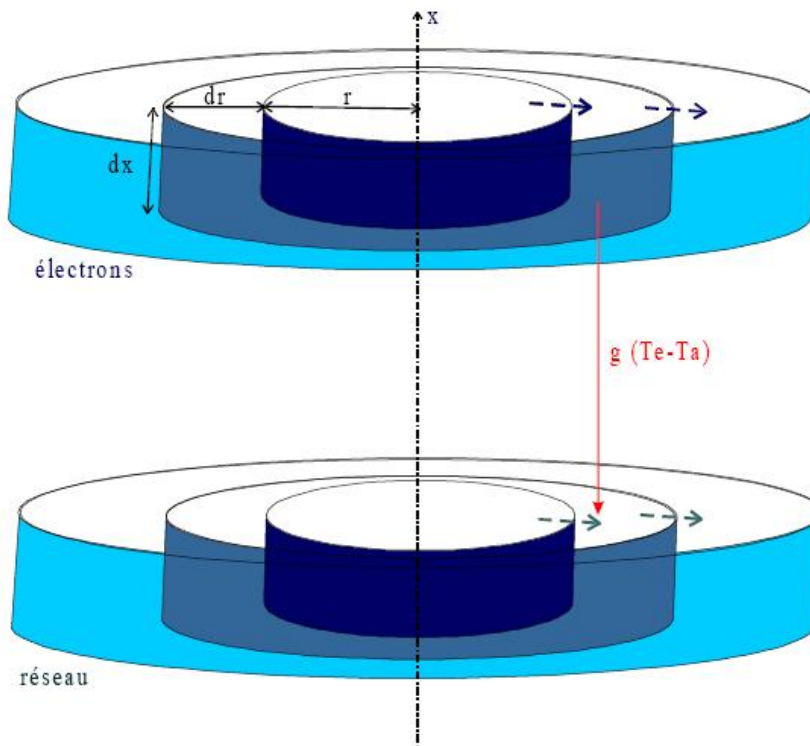


Figure I-16 : Géométrie cylindrique d'échange de température entre les deux systèmes.

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right] - g(T_e - T) + B(r, t) \quad [\text{Rel. I-22}]$$

$$r C_a \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r K_a(T) \frac{\partial T}{\partial r} \right] + g(T_e - T) \quad [\text{Rel. I-23}]$$

T_e , T , C_e , C_a et K_e , K_a sont la température, la chaleur spécifique et la conductivité thermique du système électronique et du système atomique respectivement. ρ est la densité de masse du matériau cible. $B(r,t)$ représente la densité d'énergie par unité de temps déposée sur les électrons par l'ion incident à un rayon r et un temps t . $g(T_e - T)$ est la constante de couplage électron-phonon et représente le transfert d'énergie des électrons chauffés vers le réseau.

2-b : Approche hydrodynamique.

Selon Guinan [*Guin 74*], l'énergie des ions projectiles se dissipe plus probablement par un processus hydrodynamique que par un mécanisme thermique. Ainsi du fait de la grande densité d'énergie déposée par le projectile et de la présence d'un fort gradient de densité d'énergie, une *onde de choc* peut se propager depuis la zone excitée vers le reste du matériau. Une onde de choc, est une perturbation mécanique, à travers laquelle des changements significatifs des paramètres thermodynamiques ont lieu telles que la pression, la température et la densité du matériau. Par conséquent, la pulvérisation peut être alors réalisée par différentes voies :

Ø Lorsque cette onde se propage depuis la zone excitée à l'intérieur, vers le reste du matériau, elle se réfléchit sur la surface et peut conduire par à l'émission *macroscopique* des particules par l'ablation « mécanique » de la surface.

Ø Une onde de choc peut également laisser la matière dans un état thermodynamique correspondant aux conditions d'évaporation ou d'expansion par flux gazeux décrites précédemment [*Reim 92, Maho 92*].

Les modèles de pulvérisation par choc, correspondent à une réponse du continuum du matériau cible excité, ils traitent la pulvérisation comme un processus *collectif* et reposent sur une approche hydrodynamique. Deux modèles sont proposés pour expliquer l'émission des particules :

1. Le modèle de désorption par onde de choc.
2. Le modèle de désorption par impulsion de pression.

i- Pulvérisation par onde de choc.

Le modèle d'émission de particules par onde de choc (Fig. I-17), considère le volume, dans lequel l'énergie est déposée par le projectile lors d'une interaction, de forme sphérique. La pulvérisation n'est pas uniquement attribuée à la densité d'énergie mais aussi au gradient de densité d'énergie impliquant l'action d'une contrainte.

L'onde de choc est une perturbation mécanique. Elle provoque des changements brutales des paramètres thermodynamiques, telles que : la pression, la température et la densité du matériau.

L'augmentation de ces paramètres crée une contrainte. Si cette dernière est suffisamment élevée, le matériau peut alors se fracturer et des parties peuvent être éjectées.

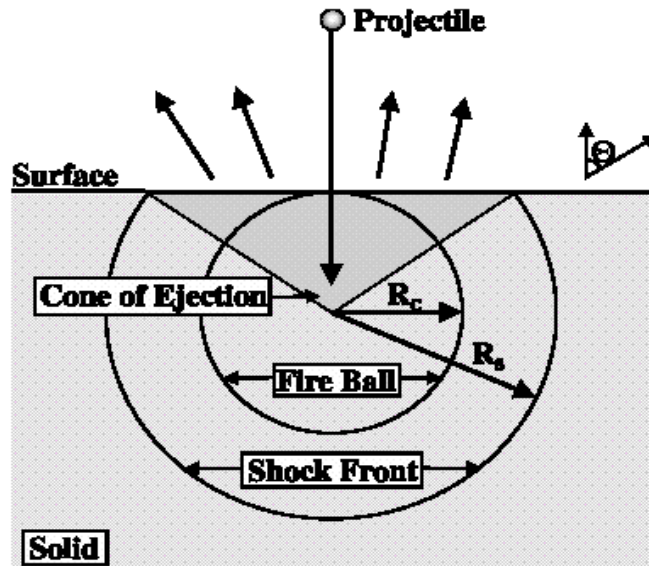


Figure I-17 : Schéma d'une onde de choc sphérique

D'après Kita et al. [Kita 81], c'est seulement pour des projectiles lourds ayant une énergie de l'ordre d'une centaine de keV que les effets de l'onde de choc peuvent jouer un rôle pour l'émission des particules. Les ions déposent leur énergie à une profondeur R_c (fig. I-17) et il existe un seuil d'énergie pour que l'onde de choc, générée par ce dépôt d'énergie, provoque à la surface du matériau cible l'émission d'un cône de matière. Le rendement de pulvérisation varie avec le pouvoir d'arrêt en $(dE/dx)^{3/2}$ [Kita 81, Bite 87].

ii- Pulvérisation par impulsion de pression.

Hedin [Hedi 85] et Johnson [John 89] guidés par le modèle de l'onde de choc et les résultats expérimentaux concernant l'émission des molécules organiques, ont proposé le modèle de pulvérisation par impulsion de pression. Ce modèle basé sur l'équation de diffusion de la chaleur suppose une diffusion classique de l'énergie $\mathcal{E}(\rho, z, t)$, et non de la température, depuis la région excitée vers le reste du matériau. L'évolution temporelle du gradient de densité d'énergie pendant la diffusion peut être assimilé à une impulsion de pression locale (Fig. I-18). Si la composante

perpendiculaire de la pression en un point de la surface est supérieure à une certaine pression critique, dépendante de l'énergie de liaison de surface, alors des particules peuvent être éjectées.

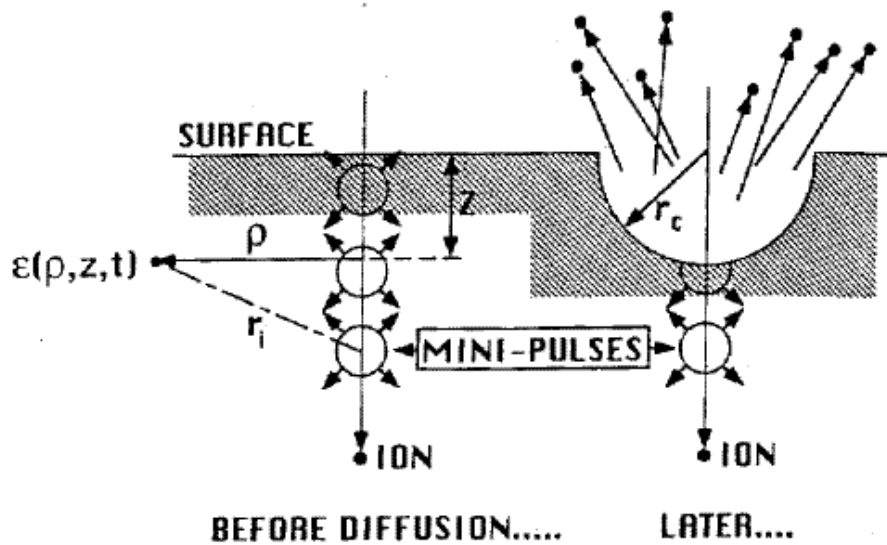


Figure I-18 : Processus de pulvérisation par impulsion de pression

Ce modèle prédit une distribution angulaire de pulvérisation sous une incidence normale fortement anisotropique et piquée à 45° autour de la normale à la surface. Le rendement de pulvérisation doit évoluer en fonction du pouvoir d'arrêt en $(dE/dx)^3$, dans le régime de fortes densités d'excitation, et varie en (dE/dx) dans le cas de faibles densités d'excitation [John 89].

2-e : Résultats expérimentaux.

Le dioxyde d'uranium (UO_2), irradié par des ions lourds produits par les faisceaux de la ligne *SME* du *Ganil* dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique a été étudié par Schlutig [Schl 01]. La méthode employée pour caractériser les éléments éjectés est celle dite de collecteur. L'ensemble des résultats montre que l'émission des particules contenant de l'uranium (atomes, molécules ou agrégats, neutres ou ionisés) se fait préférentiellement selon la normale à la surface et ceci indépendamment de l'angle d'incidence du faisceau.

Pour les distributions angulaires des éjectas, deux types de fonctions sont ajustées aux résultats expérimentaux. La première étant de la forme $A \cos^n \theta$ correspondant à la prédiction générale des différents modèles thermiques qui ont été présentés précédemment. La deuxième, étant d'une forme plus complexe, et correspond à un modèle d'écoulement gazeux supersonique. Cette dernière forme est la plus ajustée aux résultats expérimentaux. L'intégration sur les angles

d'émission des deux fonctions obtenus après ajustement, permet de déterminer le rendement total de pulvérisation d'atomes d'uranium (Fig. I-19). Les rendements obtenus sous incidence oblique (60°) et sous incidence normale, présentent une variation similaire en fonction du pouvoir d'arrêt électronique $Y \sim \left[\frac{dE}{dx} \right]_e^n$, $n = 2.6$ pour l'incidence normale et $n = 2.5$ pour l'incidence oblique à 60° .

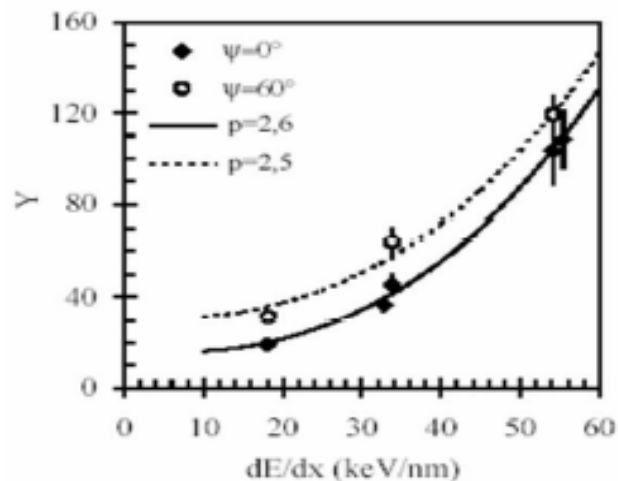


Figure I-19 : Rendements de pulvérisation d'atomes de l'uranium en fonction du pouvoir d'arrêt électronique [Schl 01].

3-3 : La pulvérisation potentielle.

Nous avons vu dans les paragraphes précédents que la pulvérisation électronique et la pulvérisation nucléaire sont induites par le ralentissement de l'ion projectile par des collisions avec les électrons et les noyaux du matériau cible respectivement. Ces deux régimes de pulvérisation, sont souvent bien distincts car dépendants de l'énergie cinétique du projectile et de la réponse du matériau. Cependant, une excitation électronique intense de la surface peut être obtenue par une interaction avec un ion lent multichargé. Il est donc intéressant de comparer les résultats obtenus par les deux processus d'irradiation.

L'étude de l'influence de la charge initiale d'un ion lors de l'interaction avec une surface a déjà fait l'objet de plusieurs études expérimentales. L'influence de l'énergie potentielle transportée par un ion multichargé sur le phénomène de pulvérisation a notamment été étudiée en fonction de la nature et des propriétés du matériau irradié, métal, semi-conducteur ou isolant, cristaux ioniques ou covalents.

3-a : Résultats expérimentaux.

Récemment, différents groupes de recherche se sont intéressés à la pulvérisation induite par l'interaction ions lents multichargés – surface. Des résultats particulièrement intéressants ont été obtenus par la mesure de rendements de pulvérisation et les distributions angulaires des éléments pulvérisés.

Tombrello et al. [Tomb 89], ont mesuré les distributions angulaires et les rendements de pulvérisation en fonction de l'état de charge du projectile à basse énergie (Ar^{q+} , $q = 4$ à 11 avec une énergie cinétique de 48 à 60 keV) sur une cible de l'iodure de césium CsI . La technique utilisée est celle du collecteur. Les résultats de cette étude montrent que la distribution angulaire de pulvérisation suit une loi en cosinus : $dY/dW \propto \cos^n \theta$ avec $n = 0.68 \pm 0.01$ et que le rendement total de pulvérisation augmente avec l'état de charge.

Neidhart et al. [Neid 95] ont utilisé la technique de la microbalance à quartz pour mesurer la perte de masse afin de déterminer les rendements totaux de pulvérisation. Les effets de la charge de l'ion incident ainsi que l'énergie cinétique, ont été étudiés sur le fluorure de lithium LiF . Les résultats montrent que la perte de masse d'une couche mince de LiF , lors de l'irradiation par des ions d'argon de charge 1^+ à 9^+ , augmente linéairement avec l'énergie potentielle de l'ion incident, et ceci quelque soit l'énergie cinétique du projectile comprise entre 10 eV et 1 keV (Fig. I-20). Notons que cette technique de mesure ne permet pas de connaître la nature des espèces pulvérisées.

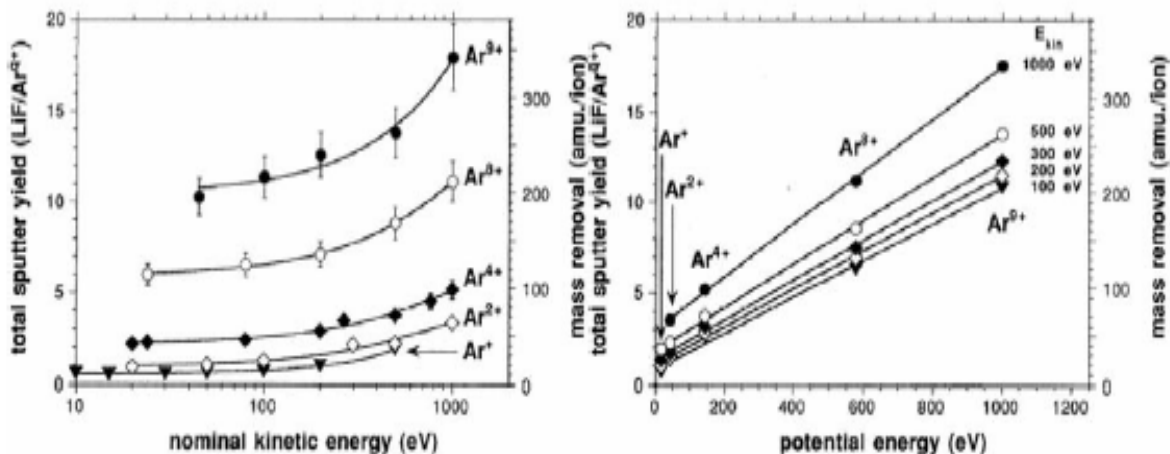


Figure I-20 : Rendement de pulvérisation (Ar^{q+} ($q = 1-9$)/ LiF) à une énergie cinétique comprise entre 10 eV et 1 keV [Neid 95].

Sporn et al. [Spor 97] ont étudié la pulvérisation de l'oxyde de silicium (SiO_2), en utilisant la même technique de mesure de perte de masse et ont également trouvé une augmentation du rendement de pulvérisation avec l'état de charge du projectile (Fig. I-21).

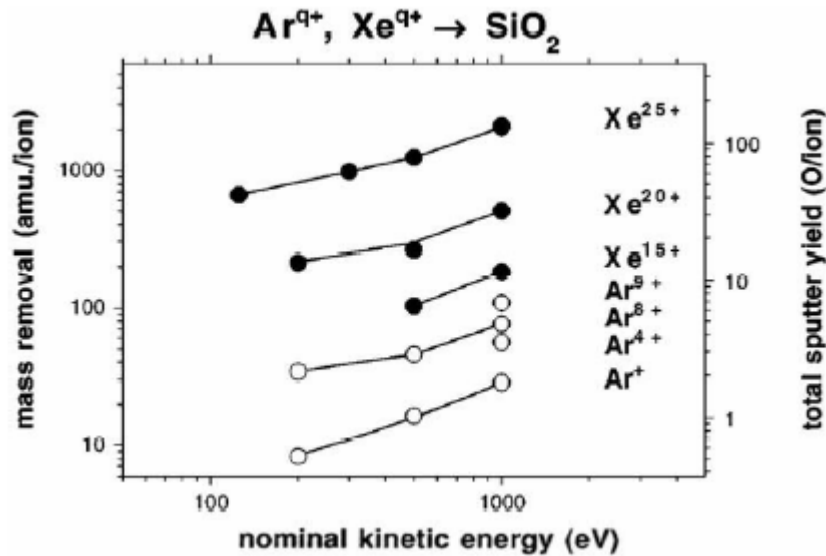


Figure I-21 : Rendement de pulvérisation (Ar^{q+} ($q = 1-9$) et Xe^{q+} ($q = 15-25$) / SiO_2) en fonction de l'énergie cinétique [*Spor 97*].

Hayderer et al. [*Hayd 01*] ont étudié la pulvérisation de l'oxyde de magnésium (MgO) et de l'alumine (Al_2O_3) et ont montré que le rendement de pulvérisation de chacun de ces deux isolants augment avec la charge du projectile. Cependant, dans le cas de l'oxyde de magnésium, les résultats obtenus semblent indiquer une forte dépendance du rendement de pulvérisation avec l'énergie cinétique du projectile. En effet l'extrapolation des résultats indique que le rendement de pulvérisation tend vers zéro lorsque l'énergie cinétique tend vers zéro, et ce, quelque soit l'état de charge considéré (Fig. I-22). Ceci indique que la pulvérisation ne semble pas réalisable sans dépôt d'énergie cinétique dans le cas de MgO , contrairement au SiO_2 (Fig. I-20) et au Al_2O_3 (Fig. I-23) pour lesquels l'extrapolation des résultats indique qu'une pulvérisation, induite uniquement par l'énergie potentielle de l'ion incident, est envisageable (rendement non nul pour une énergie cinétique nulle).

La pulvérisation du dioxyde d'uranium par des ions lents multichargés dans le régime du pouvoir d'arrêt nucléaire, tenant compte des effets importants de la charge du projectile, a fait l'objet de la thèse de F. Haranger [*Hara 03*]. Cette étude a été principalement réalisée auprès de la ligne *LIMBE*, qui délivre des ions multichargés de faibles énergies cinétiques.

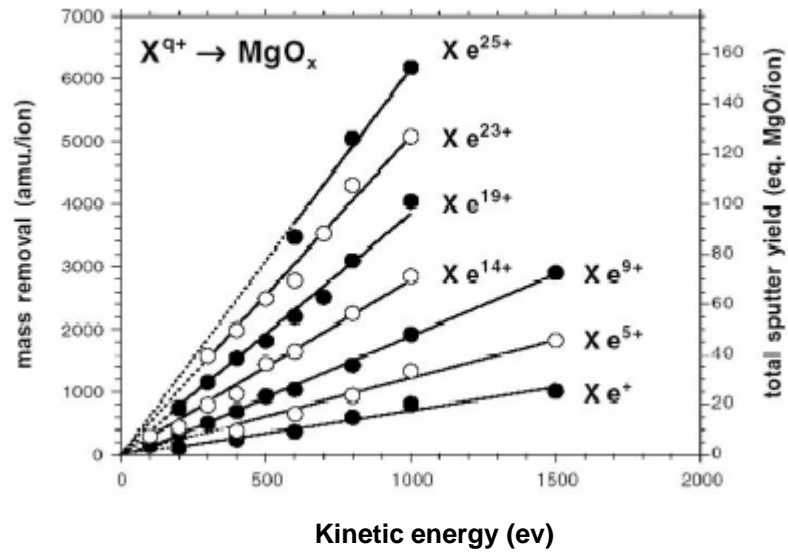


Figure I-22 : Rendement de pulvérisation ($Xe^{q+}(q = 1-28) / MgO$) en fonction de l'énergie cinétique [Hayd 01].

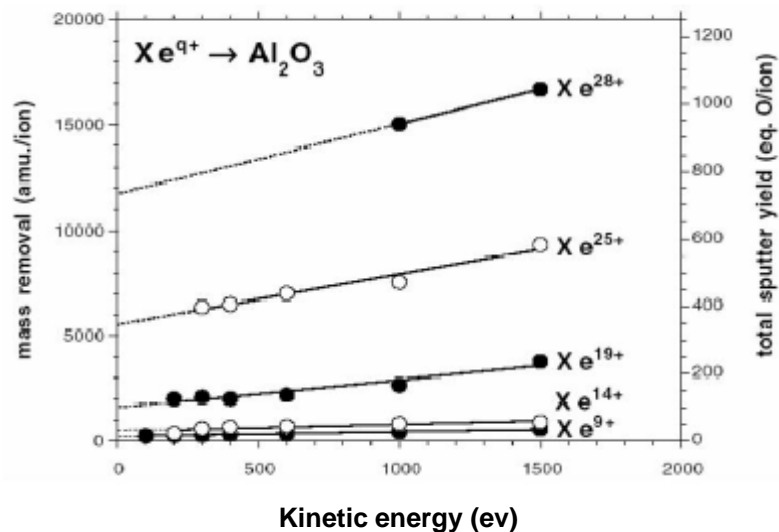


Figure I-23 : Rendement de pulvérisation ($Xe^{q+}(q = 1-28) / Al_2O_3$) en fonction de l'énergie cinétique [Hayd 01].

La méthode employée est celle dite de collecteur. Le collecteur utilisé, est un feuille mince et ultra pur d'aluminium (99.999% d'Al), pour permettre une très grande efficacité de détection des particules éjectées. Ces feuilles d'aluminium seront analysées plus tard par la technique RBS (Rutherford Backscattering spectroscopy), pour déterminer les rendements et les distributions des particules pulvérisées. Une augmentation des rendements de pulvérisation avec l'état de charge des

ions a été observée, quelque soit l'énergie cinétique du projectile qui varie entre 1.5 keV et 81 keV pour une incidence normale (Fig. I-24).

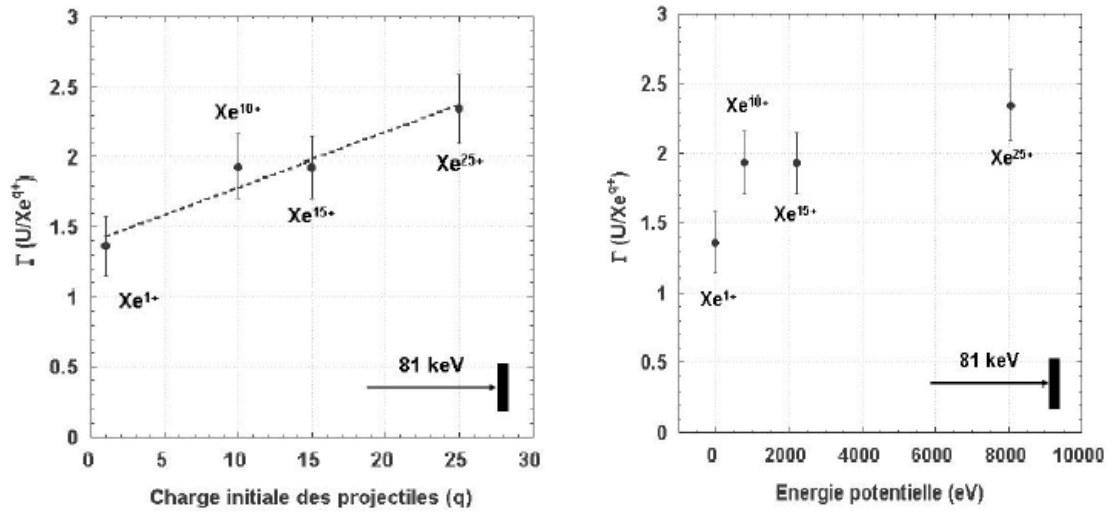


Figure I-24 : Rendement de pulvérisation ($Xe^{q+}(q = 1-25) / UO_2$) en fonction de la charge initiale et l'énergie potentielle du projectile à $E_C = 81$ keV [Hara 03].

Les distributions angulaires mesurées à 8 et 81 keV correspondent aux prédictions du modèle de cascades de collisions linéaires.

Au cours de l'interaction ion lent multichargé – solide, la neutralisation de l'ion aura lieu avant que celui ci atteigne la surface, par l'intermédiaire d'échange d'électrons avec la surface. Cependant l'inversion de population électronique de l'atome ainsi créé constitue un état exotique très excité. Ainsi, il est très probable qu'une grande partie de l'énergie potentielle transportée par le projectile sera libérée sous la surface [Hatt 99]. Par l'intermédiaire des transitions Auger provenant de la désexcitation de l'ion, l'énergie potentielle de ce dernier est transférée à l'énergie cinétique des électrons émis et en excitation électronique d'une région réduite au voisinage de la surface. De telles perturbations de la structure électronique de la surface d'un métal seront rapidement atténuées et l'énergie sera dissipée vers l'ensemble du solide. Par contre les isolants et les semi-conducteurs où le nombre d'électrons libres est réduit peuvent subir des modifications structurales, si le système électronique ne peut rapidement retourner vers un état d'équilibre. Dans ce dernier cas la formation des défauts cristallins, la désorption ou la pulvérisation de particules auront lieu comme une conséquence de la libération de l'énergie potentielle.

Pour les *isolants*, deux mécanismes par lesquels l'énergie potentielle est convertie à des processus générant l'émission de particules sont proposés : l'explosion coulombienne et la désorption par migration de défauts.

3-b : pulvérisation par explosion Coulombienne (EC).

Ce modèle proposé par Fleisher et al. [*Flei 75*], est basé sur le fait qu'un ion multichargé énergétique interagissant avec la surface d'un isolant laisse dans son sillage un volume fortement ionisé. Cette accumulation de charges positives entraîne une forte répulsion électrostatique entre les ions, pouvant conduire à une véritable explosion locale, provoquant l'émission d'ions secondaires chargés positivement [*Pari 01, Bite 79*] dépendant de deux grandeurs :

1. La durée d'écrantage des charges qui doit être supérieure à la fréquence de vibration du réseau.
2. La rigidité élastique du matériau (le module de Young) qui doit être inférieure aux répulsions coulombiennes entre les ions positifs.

Ce modèle prévoit que la pulvérisation dans les matériaux isolants est plus importante que dans les métaux où les électrons libres écrantent plus rapidement la charge des ions positifs. Par la suite, l'onde de choc générée par cette explosion coulombienne peut conduire à l'ablation de la surface et à l'émission de particules neutres sous formes d'atomes ou d'agrégats. Ainsi, la pulvérisation par onde de choc est un *processus collectif*, entraînant une augmentation du rendement des particules pulvérisées (ions et neutres) avec l'énergie potentielle de l'ion. Le point faible de ce modèle est que la durée de vie des trous créés dans le solide, peut être suffisamment courte pour conduire à une neutralisation, même dans les isolants, avant que les atomes du réseau ne puissent gagner une énergie importante par répulsion électrostatique [*Auma 99*]. Cependant, la création d'une grande densité de trous peut considérablement augmenter leur durée de vie [*Sche 99*]. De plus, il a été montré expérimentalement que la grande majorité des particules pulvérisées sont neutres [*Neid 95, Sche 99*]. Ce qui est en contradiction avec l'existence d'une zone fortement chargée autour du point d'impact du projectile pendant une longue durée.

3-c: la désorption par migration de défauts.

Le modèle de pulvérisation potentielle par migration de défauts proposé par Aumayr et al. [*Auma 99*] est basé sur la localisation des défauts électroniques créés par l'excitation de la bande de valence du solide par l'ion multichargé. Dans certains matériaux isolants, tels que les halogénures d'alcalins (*LiF, NaCl*) et *SiO₂*, cette excitation de la bande de valence conduit à une déformation du réseau agissant comme piège pour les trous ou excitons créés. Ces défauts constituent alors respectivement de trous auto piégés et des excitons auto piégés. La figure I-25 présente le processus de pulvérisation potentielle par migration de défauts dans le fluorure de lithium.

L'excitation de la bande de valence par l'ion multichargé peut conduire à la formation d'un exciton autopiégé, notamment par neutralisation Auger du projectile. A température ambiante, cet exciton auto piégé va rapidement se scinder en deux centres colorés, un centre H (ion moléculaire F_2 à la position d'un anion du réseau) et un centre F (un électron localisé sur un site anionique). Les centres F et H créés au cœur du matériau peuvent en suite diffuser vers la surface, où le centre H s'annihile pour former un atome neutre F^0 et le centre F peut neutraliser un certain Li^+ pour former un atome neutre Li^0 . Ainsi, le modèle de désorption par migration de défauts électroniques prédit une émission d'atomes neutres peu énergétiques depuis la surface. Ce qui constitue un point de concordance avec les résultats expérimentaux.

Les premières mesures de rendement de pulvérisation [Niedh 95, Spor 97, Auma 99, hayd 01] avaient montré une forte influence de l'état de charge du projectile sur la pulvérisation

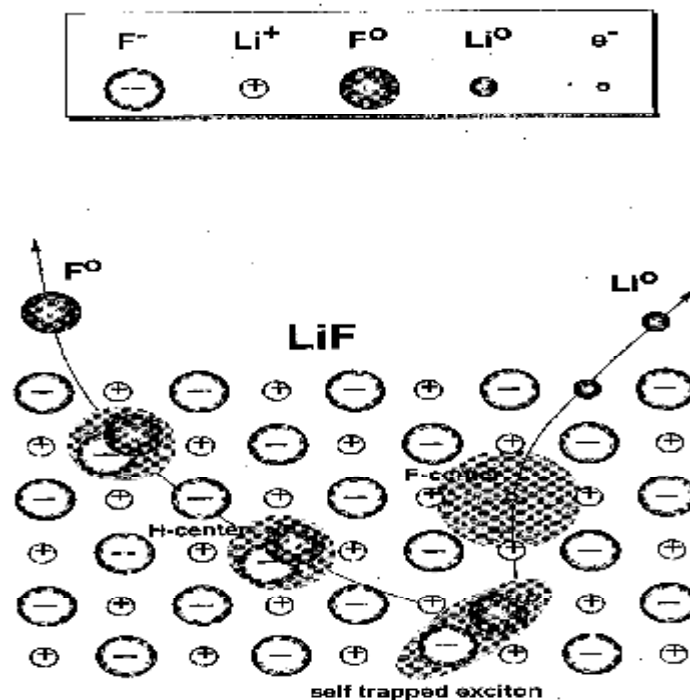


Figure I-25 : représentation schématique de la pulvérisation potentielle par migration de défauts

des cibles de SiO_2 , LiF et $NaCl$, provenant du couplage électron - phonon fort, qui est capable de créer des excitons et de trous auto piégés. Le modèle de pulvérisation potentielle par migration de défauts semblait donc parfaitement correspondre à ces résultats.

Une généralisation de ce modèle a été proposée afin d'expliquer l'augmentation des rendements de pulvérisation potentielle dans quelques matériaux présentant un faible couplage électron – phonon, comme l'oxyde de magnésium [*hayd 01*] : *la pulvérisation potentielle assistée par énergie cinétique*. Dans le cadre de la désorption assistée par migration de défauts, ce modèle suppose que les déplacements atomiques induits par une cascade de collisions élastiques, peuvent créer des sites de piégeages pour les électrons excités, trous ou excitons. Ce processus peut être traduit par l'équation différentielle suivante :

$$\frac{dY}{dt} = c_p N_{ST} + c_{KP} N_{LD} N_{ED} \quad [\text{Rel. I-24}]$$

où N_{ST} , N_{LD} et N_{ED} correspondent respectivement aux taux de création de défauts électroniques auto piégés, aux taux de création de défauts cristallins et aux taux de création de défauts électroniques. Les coefficients c_p et c_{KP} décrivent respectivement le rendement de conversion d'un défaut électronique en désorption de particules en surface, et le rendement de conversion en désorption de particules associé à une paire de défauts électronique et structural. Dans le cas de MgO_x , N_{ST} est nul et N_{LD} est également nul lorsque l'énergie cinétique du projectile est nulle. Ainsi, le rendement de pulvérisation tend vers zéro lorsque l'énergie cinétique du projectile tend vers zéro. De même, le rendement de pulvérisation augmente linéairement avec l'énergie cinétique du projectile si le nombre de défauts cristallins créés est proportionnel à l'énergie cinétique du projectile. Notons que ce modèle sous sa forme actuelle, ne permet pas d'expliquer l'émission de particules sous forme d'agrégats.

3- 4 : Emission d'agrégat.

Il y a plus de 40 ans que Honig [*Honi 58*] a observé le phénomène d'émission d'agrégats pendant la pulvérisation ionique. Depuis, il apparaît difficile de comprendre le mécanisme d'émission et de formation de tels gros agrégats stables et intacts pendant le processus de pulvérisation. Cette question restée sans réponse, attire la tension des chercheurs théoriciens et expérimentateurs, et par conséquent ce sujet fait l'objet de nombreux travaux [*Hofe 91, Nord 99, Wuch 96, Rehn 01*]. La plus facile information expérimentale que l'on peut avoir sur le processus de formation des agrégats, est la distribution des rendements partiels ou les distributions de masse en taille d'agrégats. Deux méthodes ont été extensivement employées pour obtenir de telles distributions.

La première, est la mesure des distributions de masses des agrégats ioniques par la technique de la spectroscopie de masse des ions secondaires (SIMS) [Coon 93, Wuch 96]. Cependant, deux problèmes majeurs limitant l'efficacité de mesure par cette technique, Le premier est la difficulté de contrôler et de détecter les gros agrégats, et le second, la forte possibilité de fragmentation des agrégats (surtout les gros agrégats) pendant le vol dans le spectromètre, ce qui explique les valeurs élevées de l'exposant d (de -4 à -8) dans la relation I-25, pour le cas des petits agrégats ($n \leq 40$) [Coon 91, Wuch 93].

La deuxième méthode consiste à mesurer la distribution des agrégats neutres par la technique de la post-ionisation par électrons ou par laser [Coon 93, Urba 89]. La difficulté majeure de cette technique, est la probabilité inconnue de la fragmentation des agrégats pendant l'étape de la post-ionisation. L'analyse des particules émises collectées sur un collecteur convenable par la technique de la microscopie électronique à transmission a été utilisée [Rehn 01]. Il a été montré [Coon 91, 93, Wuch 93, 96, Sche 98], que le rendement de pulvérisation des agrégats émis obéit à une loi en puissance de la forme :

$$Y(n) \propto n^d \quad [\text{Rel. I-25}]$$

n représente le nombre d'atome par un agrégat donné. Les valeurs mesurées de l'exposant d ne sont pas toutes concordantes. Elles varient entre -2 et -15, et dépendent fortement des conditions de pulvérisation, telles que, l'énergie cinétique, la charge et l'angle d'incidence du projectile, ainsi que des propriétés du matériau cible.

Le rendement total de pulvérisation est défini comme étant le nombre total d'atomes éjectés individuellement ou sous forme d'agrégats par projectile incident. Wucher et al. [Wuch 93, 96], ont proposé et montré l'existence d'une corrélation entre le rendement total et l'exposant d (lorsque le rendement total augmente, d augmente) dans le cas de l'argent bombardé par des faisceaux d'ions de gaz rares, d'énergie variant entre 1 et 5 keV. Cette corrélation a été observée dans le cas d'une cible de cuivre [Coon 91].

Notons que plusieurs modèles publiés ont décrit le phénomène d'émission d'agrégats [Stau 00]. Parmi eux, deux modèles prédisant une loi en puissance avec la taille d'agrégats sont souvent cités. Le premier est le modèle hydrodynamique d'Urbassek [Urba 87] décrit précédemment, prédit une valeur de d égale à -7/3. Le second est le modèle de l'onde de chocs de Bitensky et Parilis présenté auparavant [Bite 87] qui prédit une valeur de -2 pour l'exposant d . Cette dépendance en puissance est commune entre les différents travaux et apparaît comme un phénomène général [Stau 00]. Un autre modèle basé sur une combinaison statistique près de la surface de particules

individuelles pulvérisées. Si l'énergie de centre de masse des atomes et des molécules constituant l'agrégat est plus petit que l'énergie de liaison de ce dernier, on peut avoir éventuellement l'émission de particules sous forme d'agrégats. Ce modèle prédit une variation exponentielle du rendement en fonction de la taille d'agrégat [*Coon 93*]. Cependant, jusqu'à maintenant, il n'existe aucun modèle théorique capable de reproduire la distribution en puissance des rendements en taille d'agrégats avec les valeurs élevées de l'exposant δ déterminées expérimentalement. Seules des simulations numériques combinées, de la Dynamique Moléculaire (*MD*) et Monté Carlo (*MC*), sont capables de reproduire les résultats expérimentaux du rendement de pulvérisation dans le cas des cibles métalliques [*Wuch 93*]. Dans le troisième chapitre, nous confronterons ces prédictions théoriques à nos résultats expérimentaux.

Bibliographie

- [*Auma 99*] F. Aumayr, Comm. At. Mol. Phys, 34, (1999) 201.
- [*Barb 91*] A. Barbu, A. Dunlop, D. Lesueur and R. Averback, Euro Phys. Lett 15, (1991) 37.
- [*Bark 63*] H. Barkas, Nuclear Research Emulsion, Vol. 1, Chapter9, 371, Academic Press, New York, 1963.
- [*Beny 01*] A. Benyagoub, F. Couvreur, S. Bouffard, F. Levesque, c. dufour, E. Paumier, Nucl. Instr. Meth. B175, (2001) 417.
- [*Beth 33*] H. Bethe, Handbuch der Physik 14, (1933) 491.
- [*Bier 68*] J. P. Biersack, Zeit. Für Phys. 211, (1968) 495.
- [*Bier 84*] J. P. Biersack, W. Eckstien, Appl. Phys, A34, (1984) 73.
- [*Bier 87*] J. P. Biersack, Nucl. Inst. Meth. B27, (1987) 21.
- [*Bite 79*] I. S. Bitensky, M. N. Murakmetov, E. S. Parilis, Zhur. Tek. Fiz. SSSR, 49, (1979) 1044.
- [*Bite 87*] I. S. Bitensky and E. S. Parilis, Nucl. Instr. And Meth B 21, (1987) 26.
- [*Bohr 15*] N. Bohr, Phil. Mag. 30, (1915) 581.
- [*Bohr 48*] N. Bohr, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk, 18 (1948).
- [*Bria 96*] J. P. Briand, S. Thuriez, G. Giardino, G. Borsoni, M. Frument, M. Eddrief, C. sébenne, phys. Rev. Lett. 77, (1996) 1452.
- [*Brow 93*] W. L. brown, In Ionization of Solids by Secondary Electrons, ed. R. A. Baragiola, Plenum, (1993) 395.
- [*Burg 91*] J. Burgdörfer, P. Lerner, F. W. Meyer, Phys. Rev, 144 (1991) 880.
- [*Chai 96*] V. Chailley, Thèse de l'université de Caen (1996).
- [*Coon 91*] S. R. Coon, W. F. Calawy, J. W. Burnett, M. J. Pellin, D. M. Gruen? D. R. Spiegel, and J. M. White, Surf. Sci. 259 (1991) 275.
- [*Coon 93*] S. R. Coon, W. F. Calawy, M. J. Pellin, and J. M. White, Surf. Sci. 298 (1993) 161.
- [*Desa 23*] F. Desauer, Z. Physik 38, (1923) 12.
- [*Ecks 91*] W. Eckstien, Computer Similation of Ion-solid Interaction, Springer-Verlag, 1991.
- [*Firs 59*] O. B. Firsov, Sov. Phys. JETP9, (1959) 1076.
- [*Flei 75*] R. L. Fleisher, P. B. Price, R. M. Walker, Nuclear track in Solids, Univ. of California Press, 1975.
- [*Garr 98*] F. Garrido, c. choffel, L. thomé, J. C. Dran, L. Nowicki, A. Turos, J. Domagala, Nucl. Inst. Meth. B136, (1998) 465.

- [**Gerh 94**] B. Gerhard, K. Wein, Intern. Journ. of Mass. Spectro. and Ion Proce, 140 (1994) 1-110.
- [**Guin 74**] M. J. Guinan, J. Nucl. Mater. 53, (1974) 171.
- [**Hara 03**] F. Haranger, thèse, université de Caen (2003).
- [**Hatt 99**] M. Hattass, T. Schenkel, A. V. Hamza, A. V. Barnes, M. W. Newman, J. W. McDonald, T. R. Niedermayr, G. A. Machicoane, D. H. Schneider, Phys. Rev. Lett., 82, (1999) 4795.
- [**Hayd 01**] G. Hayder, S. cernusca, M. Schmid, P. Varga, HP. Winter, F. Aumayr, D. Newmann, V. Hofmann, N. Stolterfoht, C. Lemell, Phys. Rev. Lett., 86, (2001) 3530.
- [**Hofe 91**] W. O. Hofer, in: Sputtering by Particle Bombardment, Vol. 3, Eds. R. Behrisch and K. Wittmaack (Springer, 1991).
- [**Honi 58**] R. E. Honig, J. Appl. Phys. 29 (1958) 549.
- [**Itoh 87**] N. Itoh, Nucl. Inst. And Meth. B27, (1987) 155.
- [**John 89**] R. E. Johnson, B. U. Sundqvist, A. Hedin, D. Fenyö, Phys. Rev. B 40, (1989) 49.
- [**John 93**] R. E. Johnson, In Ionization of Solids by Heavy Particles, ed. R. A. Baragiola, Plenum, (1993) 419.
- [**Kinc 55**] G. Kinchin and Pease, Rep. Prog. Phys. 18, (1955) 1.
- [**King 83**] King et al, J. Nucl. Matter, 117, (1983) 12.
- [**Kita 81**] Y. Kitazoe, N. Hiraoka, Y. Yamamura, Surf. Sci. 111, (1981) 381.
- [**Lehm 77**] C. Lehman, Interaction of Radiation with Solid and Elementary Defects
- [**Lind 61**] J. Lindhard and M. Scharff, Phys. Rev. 124, (1961) 128.
- [**Lind 63**] J. Lindhard, V. Nielsen, M. Schraff and P. V. Thomsen, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 3, (1963) 10.
- [**Maho 92**] J. F. Mahoney, J. Perel, T. D. Lee, P. A. Martino, P. Williams, J. Am. Soc. Mass. Spec., 3, (1992) 441.
- [**Meft 94**] A. Meftah, F. Brisard, J. M. Costantini, M. Hage-Ali, J. P. Stoquert, F. Studer, M. Toulemonde, Phys. Rev. B 48 (1993) 920.
- [**Neid 95**] T. Neidhart, F. Pichler, F. Aumayr, HP. Winter, M. Schmid, P. Varga, Phys. Rev. Lett., 74, (1995) 5280.
- [**Nord 99**] K. Nordlund, J. Keinonen, M. Ghaly, R. S. Averback, Nucl. Instr. and Meth. B 148 (1999) 74.
- [**Pari 01**] E.S. Parilis, Phys. Script. T92, (2000) 197.
- [**Rehn 01**] L. E. Rehn, R. C. Birtcher, S. E. Donnelly, P. M. Baldo, and L. Funk, Phys. Rev. Lett., 87, (2001) 207601.

- [**Reim 92**] C. T. Reimann, in Fundamental processes in sputtering of atoms and molecules, P. Sigmund (Ed.) (Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk., Copenhagen, 1992).
- [**Reim 93**] C. T. Reimann, Matematisk-fysiske Meddelelser 43, (1993) 351.
- [**Ryuf 80**] H. Ryufuku, K. Sasaki, T. Watanabe, Phys. Rev. A21, (1980) 745.
- [**Scha 63**] J. Lindhard, M. Scharff, H. E. Sciott, Range Concept and Heavy Ion range, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk, 3, (1963)14.
- [**Sche 00**] T. Schenkel, M. W. Newman, T. R. Neidermayr, G. A. Machicoane, J. W. Mcdonald, A V. Barnes, A. V. Hamza, J. C. banks, B. L. Doyle, K. J. Wu, Nucl. Instr. And Meth . B 161 (2000) 569.
- [**Sche 97**] T. Schenkel, M. A. briere, H. Schmidt-Böcking, K. Bethge, D. H. Schneider, Eur. Phys. J. D 1, (1998) 297 - 302 .
- [**Sche 98**] T. Schenkel, A V. Barnes, A. V. Hamza, D. Schneider, Phys. Rev. Lett, 78 (1997) 2481.
- [**Sche 99**] T. Schenkel, A. V. Hamza, A V. Barnes, D. Schneider, Progr. Sur. Sci; 61, (1999) 23.
- [**Schi 01**] G. Schiwietz, E. Luderer, G. Xiao and P. L. Grande. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res B175, (2001) 1-11.
- [**Schl 01**] S. Schlutig, thèse, Université de Caen (2001).
- [**Seit 56**] F. Seitz et J. S. Koehler, Solid State Physics 2, (1956) 305.
- [**Sigm 69**] P. Sigmund, Phys. Rev. 184, (1969) 383 and 187, (1969) 768
- [**Sigm 81**] P. Sigmund, C. Clausen, J. Appl. Phys., 52, (1981) 990.
- [**Spor 97**] M. Sporn, G. Libiseller, T. Neidhart, M. Schmid, F. Aumayr, HP. Winter, P.Varga, M. Grether, N. Stolterfoht, Phys. Rev. Lett., 79, (1997) 945.
- [**Stau 00**] C. Staudt, R. Heinrich, and A. Wucher, Nucl. Instr. And Meth. B 164 – 165(2000) 677.
- [**Thom 81**] D. A. Thompson, Radiat. Eff. , 56, (1981) 105.
- [**Tomb 89**] D. L. Weathers, T. A. Tombrello, M. H. Prior, R. G. Stokstad, R. E. Tribble, Nucl. Instr. Meth. B42, (1989) 307.
- [**Toul 94**] M. Toulemonde, S. Bouffard, S. Studer, Nucl. Instr. Meth B 91 (1994) 108.
- [**Urba 89**] M. H. Urbassek, Rad. Eff. Defects Solids 109 (1989) 293.
- [**Vern 96**] D. Vernhet, J. P. Rozet, K. Wohrer, L. Adoui, C. Stephan, A. Cassimi, J. M. Ramillon, Nucl. Instr. Meth. B107 (1996) , 71.
- [**Vett 98**] J. Vetter, R. Scholz, D. Dobrev, L. Nistor, Nucl. Instr. Meth. B 141 (1998) 747.
- [**Well 95**] R. Weller. In Handbook of Modern Ion-Beam Materials Analysis, eds J. R. Tesmer and M. Nastasi (Materials research Society, Pittsburgh, Pa) 1995.
- [**Wint 02**] H. P. Winter and F. Aumayr, Euro. Phys. News, 33(6), (2002) 215-217.
- [**Wuch 93**] A. Wucher, M. Wahl, H. Oechsner, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B 83(1993)73.

[**Wuch 96**] A. Wucher, M. Wahl, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B 115(1996)581.

[**Yama 96**] Y. Yamamura, H. Tawara, At. Dat. Nucl. Data. Tab., 62, (1996) 149.

[**Zieg 85**] J.F. Ziegler, J. P. Biersack, U. Littmark, in « The Stopping and Ranges of Ions in Solids », Vol 1, Pergmon Press, New York (1985).

CHAPITRE II

DISPOSITIFS ET TECHNIQUES EXPERIMENTALES

Les irradiations réalisées dans cette thèse ont été effectuées sur deux lignes différentes de faisceaux du GANIL. Les irradiations avec des ions multichargés à basse énergie, dans le régime du pouvoir d'arrêt nucléaire, ont été réalisées sur la ligne LIMBE (**L**igne des **I**ons **M**ultichargés de **B**asse **E**nergie), et les irradiations avec des ions lourds à haute énergie, dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique, ont été effectuées sur la ligne IraSME (**I**rradiation **S**ortie **M**oyenne **E**nergie). Des irradiations aussi avec des ions légers, dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique, ont été réalisées sur le tandem Van de Graaff de Bruyères-le-Châtel.

Dans ce chapitre, nous allons décrire les lignes d'irradiations, les outils expérimentaux et les techniques spectroscopiques que nous avons utilisées pour étudier dans une première phase l'endommagement du *GGG* et dans une seconde phase, l'émission d'ions secondaires sous formes de monomères et d'agrégats émis par une cible de dioxyde d'uranium UO_2 .

II-1 : La ligne LIMBE.

La ligne *LIMBE* (fig. II-1) a été construite dans le but de développer les recherches sur les interactions ions – atomes, ions – molécules, ions – agrégats et ions – surfaces à basse énergie. Dans notre cas ; nous avons travaillé à basse énergie E telle que $:1.5 \text{ keV}/q \leq E \leq 25 \text{ keV}/q$. q est l'état de charge du projectile incident. Cette ligne se compose d'une source d'ions de type *ECR* (**R**ésonance **C**yclotronique **E**lectronique) appelée *SUPERSHyPIE* (**S**ource **H**ybride pour la **P**roduction d'**I**ons **E**xotique et **SUPER**) car elle produit des ions fortement chargés) et deux lignes de faisceaux dédiées aux expériences de physique. Les chambres d'irradiations se trouvent aux bouts de ces deux lignes

(*L3* et *L4*). Ces deux lignes du faisceau sont équipées de différents éléments d'optique (quadripôles, steerers, profileurs (fentes et collimateurs), cages de Faraday pour le diagnostic du faisceau, et pulser produisant un faisceau pulsé) permettant d'obtenir un faisceau satisfaisant aux caractéristiques désirées par les physiciens.

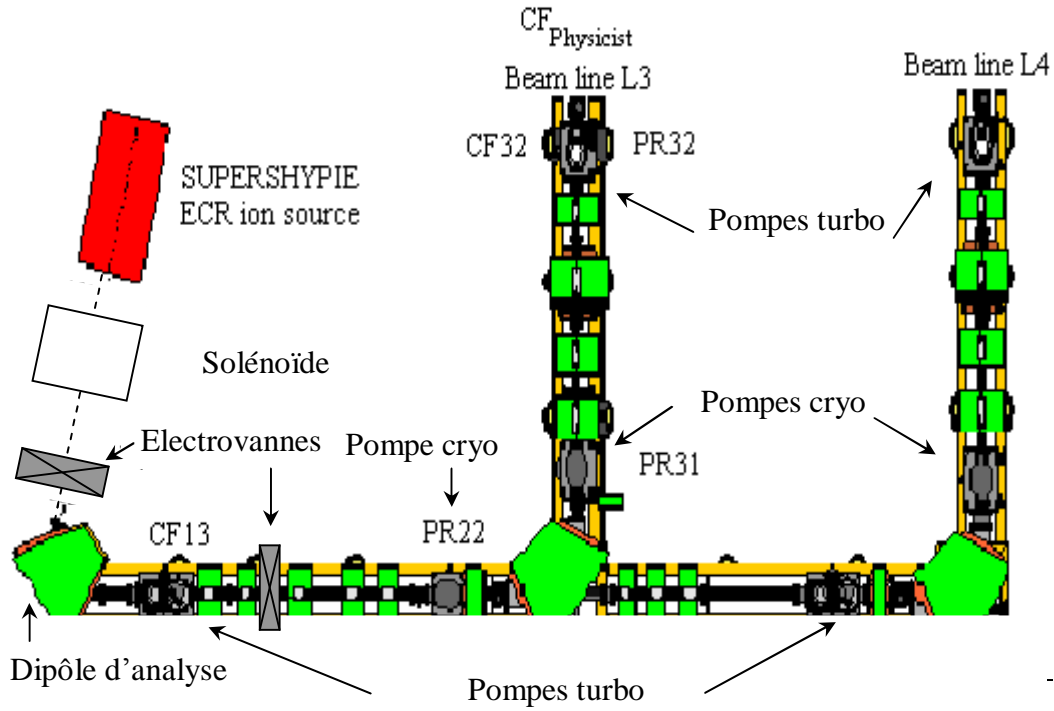


Figure II-1: La ligne d'ions multichargés de basse énergie (LIMBE) [Maun 02].

1-a : La source ECR.

Les ions multichargés de basse énergie ($\sim keV/q$) sont produits par une source *ECR 14 GHz* (fig.II-2). Les atomes sont introduits dans la source sous forme gazeuse. Deux gaz sont injectés dans la source : le gaz principal que l'on souhaite ioniser et un gaz support (de masse faible devant la masse du gaz principal), qui permet de créer, d'entretenir le plasma et d'améliorer les performances de la source.

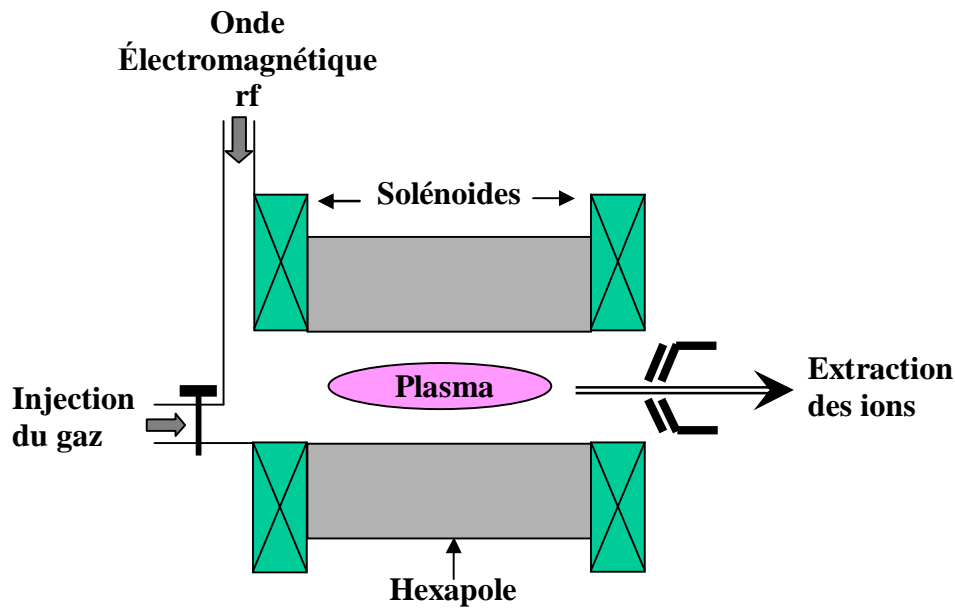


Figure II-2 : Schéma de principe d'une source ECR [Gell 85]

Les ions sont produits par l'intermédiaire d'un plasma confiné dans deux champs magnétiques statiques : l'un transverse créé par un hexapôle et l'autre longitudinal créé par deux solénoïdes (Fig.II-2). L'onde haute fréquence accélère les électrons contenus dans le plasma en leur apportant de l'énergie cinétique grâce à la condition de résonance cyclotronique électronique (la fréquence de giration des électrons dans le plasma est égale à la fréquence de l'onde radiofréquence injectée). Dans le cas d'une source destinée à la production d'ions multichargés, telle que *SUPERSHyPIE*, l'ionisation vers des états de charges élevées se fait pas par pas, par collisions successives des électrons énergétiques avec ces ions.

1-b : Extraction des ions.

Les ions se présentant à l'interface plasma-vide sont accélérés par un champ électrique créé par deux électrodes : Une électrode d'extraction et une électrode plasma. La source et l'électrode plasma sont portées à une tension (U_s) de quelques dizaines de *kV*. Les ions ont donc une énergie (qU_s) eV, où q est l'état de charge de l'ion extrait. Le faisceau extrait de la source est composé d'ions de charges différentes. Les ions sont alors sélectionnés en q/m (où m est la masse de l'ion produit et q sa charge) à l'aide d'un dipôle magnétique d'analyse.

1-c : La conduite du faisceau.

Les ions ainsi sélectionnés sont conduits grâce à des séries de quadripôles vers la chambre d'irradiation en passant par des déflecteurs (steerers) pour centrer l'axe du faisceau avec l'axe de la ligne et des fentes horizontales et verticales pour ajuster la taille du faisceau.

Ainsi la ligne est pourvue d'un pulser électrostatique composé de deux plaques parallèles, permettant de pulser le faisceau verticalement, afin de pouvoir faire des expériences en temps de vol. Ces deux plaques sont associées à des alimentations et à un système de push and pull (Fig.II-3). A chaque front du signal généré par le générateur de pulses, le push pull fait envoyer une impulsion de tension de -2.5 kV sur l'une des plaques parallèles (V_p) avec un temps de montée lié à la capacité de ces deux plaques (pour une capacité de 10 nF, le temps de montée est de 6 ns pour une tension de 1.2 kV), l'autre plaque est polarisée en continue (V_{sta}). Lorsque l'amplitude de l'impulsion de tension (V_p) prend une valeur négative moins de $(-1.3$ kV), le faisceau va être dévié vers le bas. Il sera dévié vers le haut lorsque cette valeur est plus importante que $(-1.3$ kV). Il n'y aura pas de déviation du faisceau lorsque l'amplitude passe par la valeur $(-1.3$ kV).

Des cages de Faraday placées dans différents endroits le long de la ligne permettent de mesurer l'intensité du faisceau d'ions extrait de la source. Et enfin pour assurer la propreté du faisceau d'ions (faisceau avec l'ion et l'état de charge désirés), un vide poussé de l'ordre de 10^{-7} mbar est maintenu le long de la ligne, grâce à des pompes turbomoléculaires et cryogéniques.

II-2 : GANIL – SME.

Les ions multichargés de haute énergie, sont produits dans une source *ECR*, à partir d'une vapeur provenant d'une cible gazeuse ou solide. Une fois les faisceaux extraits de la source, ils sont accélérés par des cyclotrons injecteurs à secteurs plats *C01* et *C02*, de manière à les pré-accélerer afin de pouvoir les injecter sur la première orbitale d'un cyclotron à secteurs séparés *CSS1* (Fig.II-4).

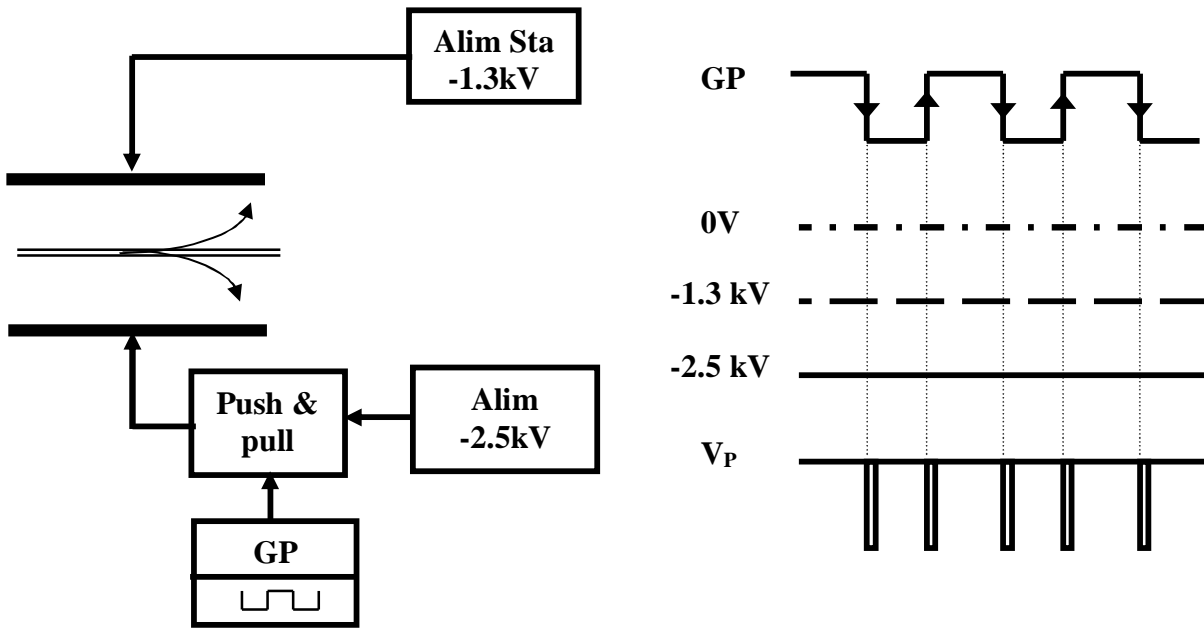


Figure II-3 : Caractéristiques du pulser du faisceau.

A la sortie de ce premier CSS, les ions ont acquis une énergie allant de 4 à 13 MeV/u, puis traversent une feuille de carbone « épilucheur » d'épaisseur adéquate qui a pour rôle d'augmenter la charge des ions (d'un facteur 2.5). L'un des états de charges est guidé vers la salle *DI* (Sortie Moyenne Énergie). Les autres états de charges sont dirigés vers un deuxième cyclotron CSS2, leur énergie à la sortie de ce deuxième CSS, est comprise entre 24 MeV/u pour l'uranium ($^{238}\text{U}^{58+}$) et 96.4 MeV/u pour le carbone ($^{12}\text{C}^{6+}$). Le spectromètre *a* de haute résolution sélectionne l'énergie désirée et le faisceau est conduit vers les salles d'expériences.

2-a : La salle d'irradiation D1.

La salle *DI*, dans la quelle nous avons travaillé (Fig.II-5). est constituée de trois lignes d'irradiation. Deux d'entre elles utilisent le faisceau d'ions de Sortie Moyenne Énergie qui sort de *CSSI*. Il s'agit de la ligne *IraSME* (Irradiation en Sortie Moyenne Énergie) destinée aux expériences de la matière condensée et de la ligne dite de physique atomique. La troisième ligne est issue du spectromètre *a*, qui délivre des ions de haute énergie vers le dispositif *IraBAT* (Irradiation à Basses Températures). L'ensemble des irradiations que nous avons effectuées à haute énergie ont été réalisées dans le dispositif *IraSME*.

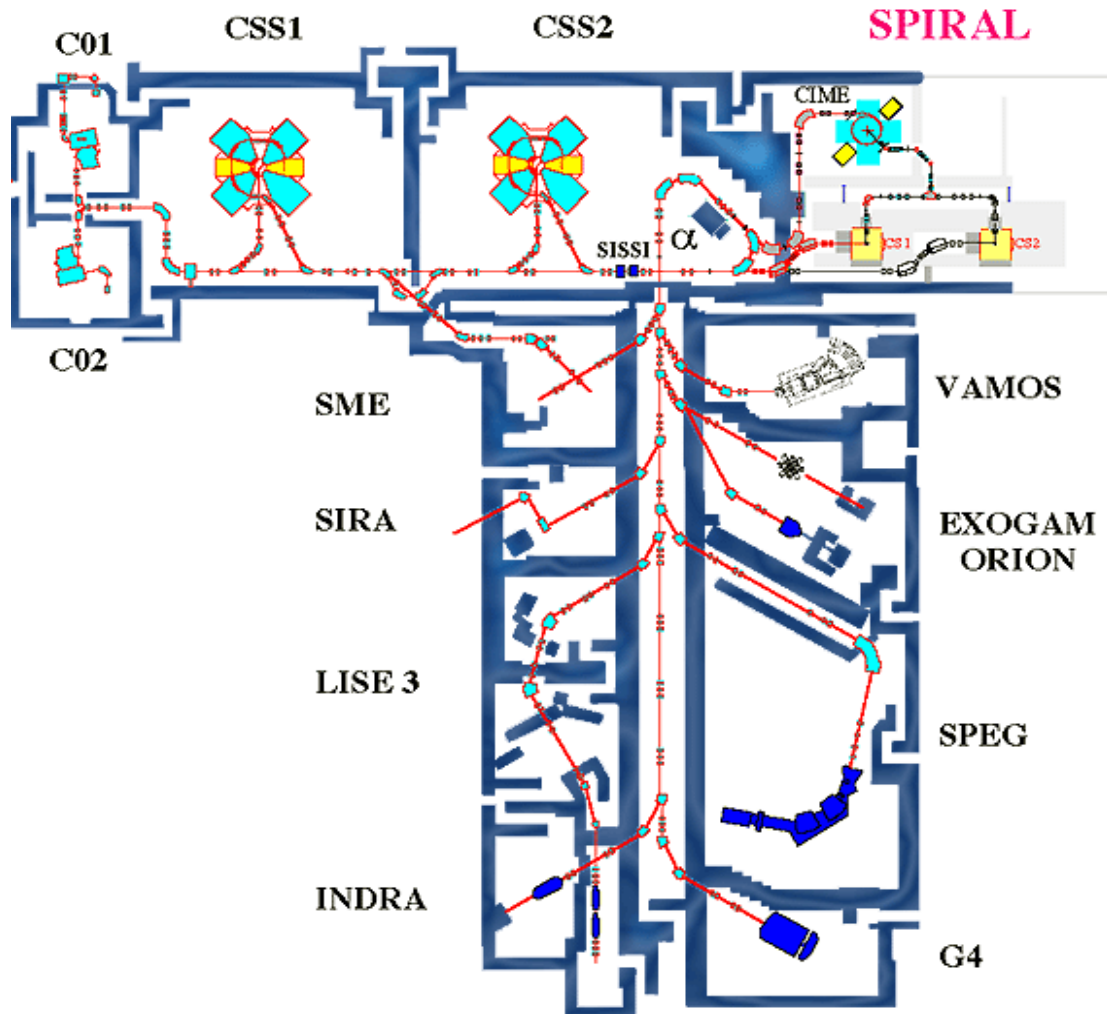


Figure II-4 : Aires expérimentales du GANIL

2-b : La conduite du faisceau.

La figure suivante (fig II-6) présente les différents éléments de réglage et de caractérisation du faisceau de la ligne *IraSME*. Les dipôles de balayage permettent d'irradier une surface homogène ($5 \times 5 \text{ cm}^2$). Les steerers positionnent le balayage en un point choisi. Un jeu de fentes définit la taille de la surface irradiée. L'homogénéité de l'intensité du faisceau est contrôlée par une sonde de profil, constituée de deux réseaux perpendiculaires de fils conducteurs.

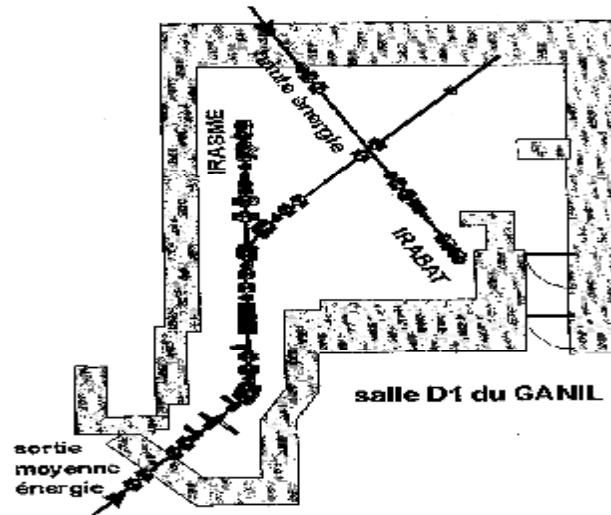


Figure II-5: La salle d'irradiation D1.

Un détecteur plein, à électrons secondaires, constitué de trois feuilles métalliques minces ($0.8 \mu\text{m Al} / 1 \mu\text{m Ti} / 0.8 \mu\text{m Al}$) inséré dans la ligne du faisceau permet de mesurer l'intensité du faisceau pendant l'irradiation. Une cage de Faraday escamotable mesure le flux d'ions incidents pendant le réglage du faisceau et permet de calibrer le détecteur à électrons secondaires. Une plaque contenant de trous de différents diamètres pour réduire la taille du faisceau et une alumine luminescente sous irradiation pour visualiser le faisceau sont insérées à l'intérieur la boîte d'irradiation. Au bout de la ligne, se trouve la chambre d'irradiation.

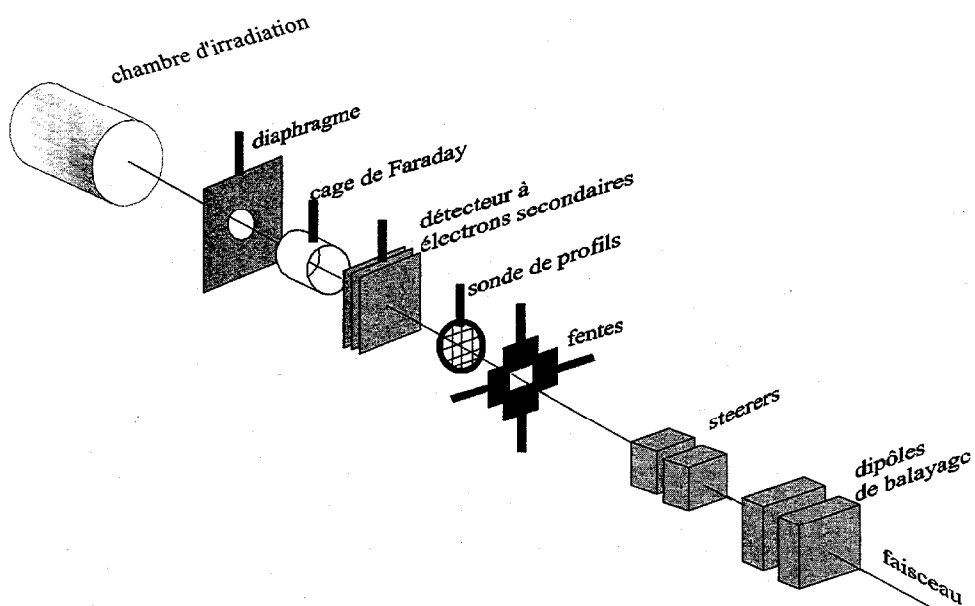


Figure II-6 : Eléments constituant la ligne IraSME

II-3 : Le vide

Pour que le gaz résiduel présent dans l'enceinte ne perturbe pas la mesure, il est indispensable que le vide dans la chambre soit le plus poussé possible. Grâce aux outils de pompage utilisés, le dispositif permet de travailler en ultravide dans une gamme de pression comprise entre 5.10^{-10} et 5.10^{-9} mbar. Usuellement, des catégories séparent les différents régimes de pression suivant des critères arbitraires. Les limites ne sont pas clairement établies et peuvent varier d'un auteur à un autre. Pour notre part, nous adopterons la convention suivante :

VIDE PRIMAIRE	VIDE SECONDAIRE	ULTRAVIDE
De l'atmosphère à 1 mbar (flux visqueux)	Du vide intermédiaire de 1 à 10^{-3} mbar au vide moléculaire de 10^{-3} à 10^{-8} mbar	En dessous de 10^{-8} mbar

:

A chaque type de vide, sont associés des modes de pompage particulier. Nous allons maintenant préciser lesquels nous avons choisis pour vider notre enceinte, en tenant compte des contraintes imposées par le raccordement du dispositif à l'accélérateur.

3-a : Le pompage différentiel.

L'utilisation de l'accélérateur nécessite la mise en communication de la chambre d'analyse dans laquelle le vide est de l'ordre inférieur à 10^{-8} mbar, avec la ligne de faisceau au sein de laquelle la pression de gaz résiduel est supérieure d'au moins trois ordres de grandeurs. Pour limiter les échanges gazeux entre les différentes parties en communication, nous avons placé des tubes suffisamment larges pour laisser passer un faisceau bien colimaté; mais aussi suffisamment long pour diminuer leurs conductances, de sorte à ne pas créer un gradient de pression trop fort, de petits volumes. Les croix, sont maintenues en vide poussé à l'aide des pompes turbomoléculaires : ce sont les chambres de pompage différentiel, montées en amont et en aval du dispositif. Des vannes permettent d'isoler chaque partie, de telle sorte que la chambre puisse pomper indépendamment des lignes de faisceau. La figure II-7, présente un schéma synoptique de la ligne de pompage

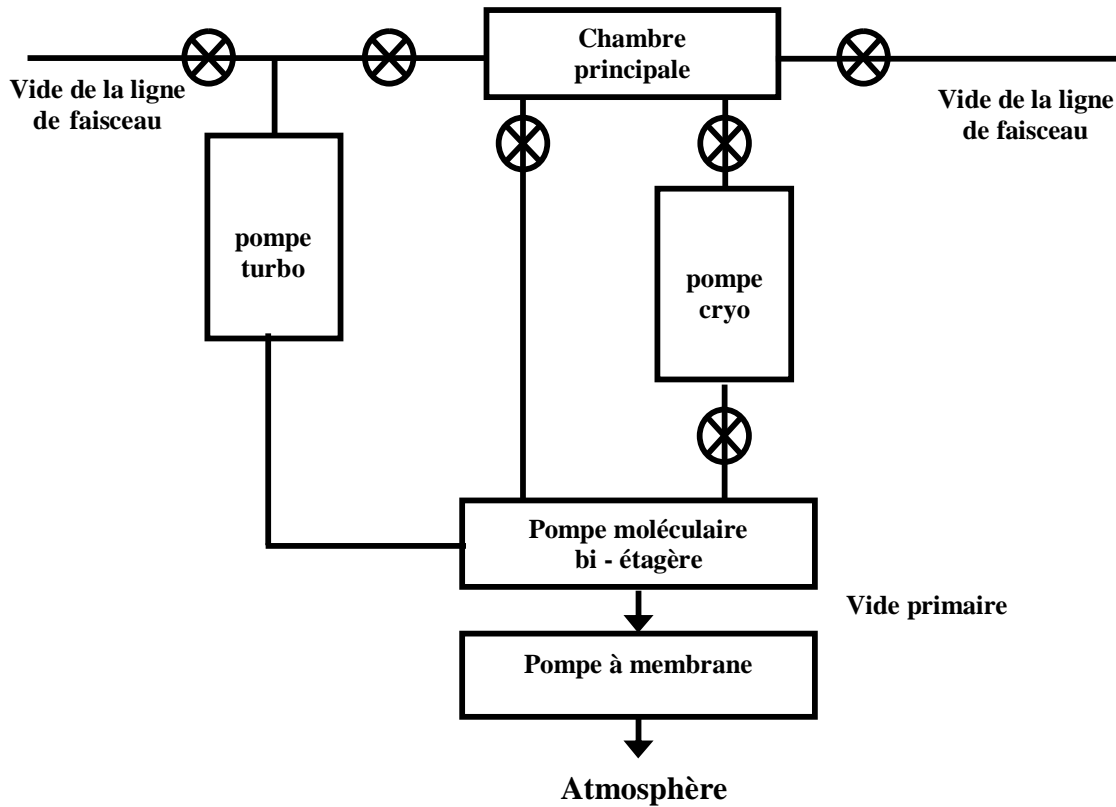


Figure II-7 : Schéma de principe du pompage différentiel [Jung 96]

Le vide primaire est atteint grâce à un groupe de pompage hybride constitué d'une pompe à membranes montée en série avec une pompe moléculaire. Pour le pompage secondaire, nous avons utilisé deux pompes turbomoléculaires raccordées au refoulement à la pompe sèche, qui permettent de vider les chambres de pompage différentiel. Le terme "pompe sèche" signifie que ces pompes fonctionnent sans huiles pour lubrifier les pièces en mouvement ou comme fluide moteur. Ainsi, nous éliminons totalement les problèmes liés à la rétrodiffusion d'hydrocarbures dans la chambre. L'ultravide est ensuite atteint par une pompe cryogénique à deux étages. Le premier est maintenu à 50°K et le deuxième à 17°K . Cette pompe située sous la chambre est isolée par une vanne à tiroir.

Nous signalons enfin que la chambre d'expérience est fabriquée à partir d'un matériau INOX et par conséquent possède des pressions de vapeurs et des taux de dégazage thermique extrêmement faibles. La technologie utilisée répond aux normes *CF* pour les brides de connections. Les joints d'étanchéité sont en cuivre et les pièces isolantes en céramique. Tout l'ensemble est étuvable jusqu'à 150°C .

II-4: Détecteurs.

Dans le cas d'un faisceau pulsé, il est impossible de mesurer directement des charges électriques élémentaires (10^{+4} projectiles monochargés par seconde $\sim 10^{-15}\text{A} = 1\text{fA}$). Il faut donc

employer des amplificateurs d'électrons pour contrôler le faisceau et détecter les ions secondaires émis par les détecteurs suivant les mesures envisagées.

4-1 :Channeltron.

Le channeltron (*CEM*: Channel Electron Multipliers) est un détecteur à dynodes continues. Il est constitué de trois parties : un support isolant en céramique de porosité zéro pour utilisation du détecteur en ultraviolet, des dépôts conducteurs de cuivre déposés sur les extrémités du channeltron afin d'assurer les contacts électriques, et une face interne revêtue d'un mélange spécifique de plomb et de silicate constitué une surface de verre émettrice d'électrons, lorsqu'elle frappée par une particule (Fig. II-8). Ces électrons sont accélérés par une différence de potentielle appliquée entre les bornes du channeltron et déclenchent une avalanche de d'autres électrons. Un nuage électronique apparaît à la sortie du canal. Pour contrôler la largeur et la propreté du faisceau, nous avons utilisé un channeltron dont le nombre d'électrons en sortie par ion incident est de l'ordre de 10^8 pour une tension de polarisation de -2.3 kV (la tension d'opération maximale est de 3.5 kV). La largeur à mi-hauteur du pulse à la sortie du channeltron (à 2.5 kV) est de 8 ns typiquement.

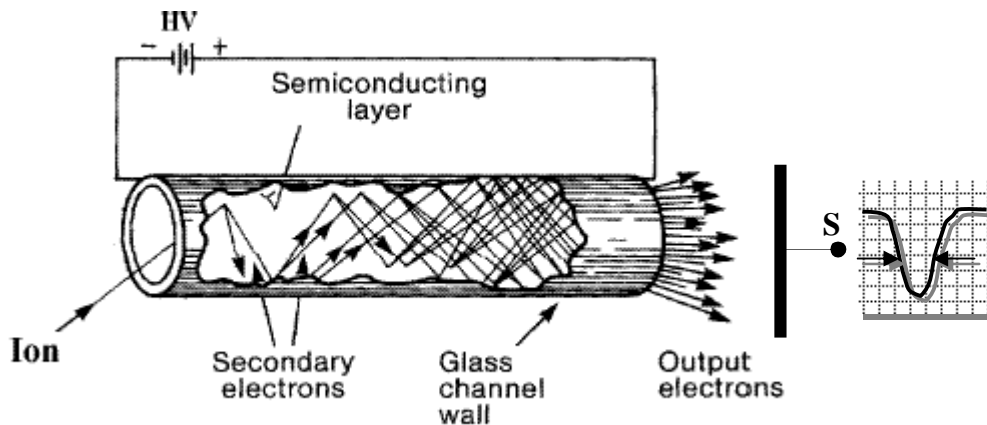


Figure II-8 : Principe de fonctionnement du channeltron.

4-2: Galettes à microcanaux (MCP).

Pour détecter les ions secondaires positifs émis, nous avons utilisé, des galettes de microcanaux placées à quatre millimètres du tube de temps de vol en bout de parcours des particules pulvérisées.

2-a: Principe d'une galette.

Les galettes à microcanaux sont largement utilisées pour détecter les électrons, les ions et les photons. Elles sont ainsi des éléments indispensables dans les techniques expérimentales de la spectroscopie *TOF-SIMS* et d'imagerie *XY-TOF*. Une galette à microcanaux est une fine plaque de verre à forte teneur en plomb constituée de la juxtaposition de multiplicateurs tubulaires d'électrons (microcanaux), placés en parallèle dont l'intérieur est recouvert d'un matériau émetteur d'électrons lorsqu'il est frappé par une particule (fig. II-9). Ces galettes de microcanaux sont sensibles aux ions, aux électrons et aux photons. Une métallisation *Ni-Cr* des deux faces de la galette assure la mise en parallèle électrique des microcanaux [Wiza 79].

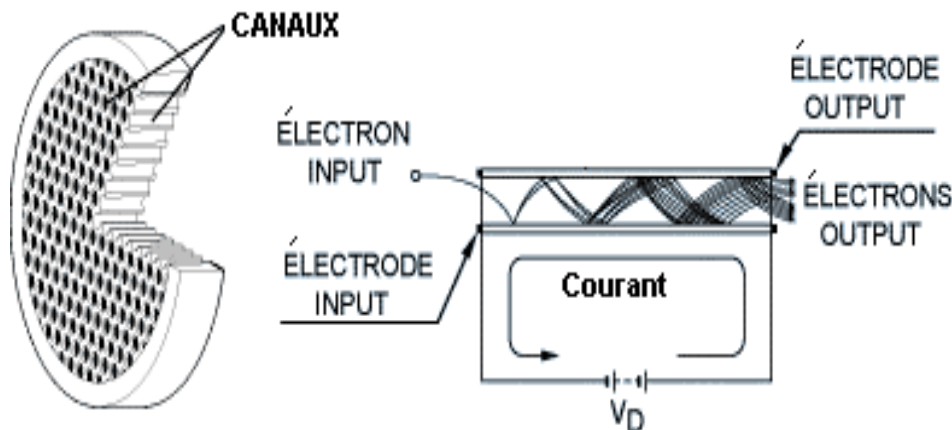


Figure III-9 :
Schéma de galette
à microcanaux.

Lorsque une différence de potentiel est appliquée entre les deux faces de la galette, chaque microcanal devient un multiplicateur tubulaire d'électrons. Une particule accélérée pénètre dans un microcanal par la face avant et frappe la paroi en provoquant l'émission d'électrons secondaires. Ces électrons sont alors accélérés par le champ électrique entre les deux faces de la galette et déclenchent une avalanche de d'autres électrons. Le gain à la sortie de la galette est de 10^3 à 10^4 . Pour augmenter le gain, une deuxième *MCP* est placée en chevron avec la première (fig. II-10). Le flux d'électrons à la sortie de la première galette, présente alors une source d'électrons secondaires pour la seconde galette. Le gain de l'ensemble est de l'ordre de 10^7 au minimum. Les électrons

sont accélérés de nouveau, puis recueillis sur une anode. Le détecteur fournit un signal analogique négatif, d'amplitude de quelques dizaines de millivolts (fig. II-7).

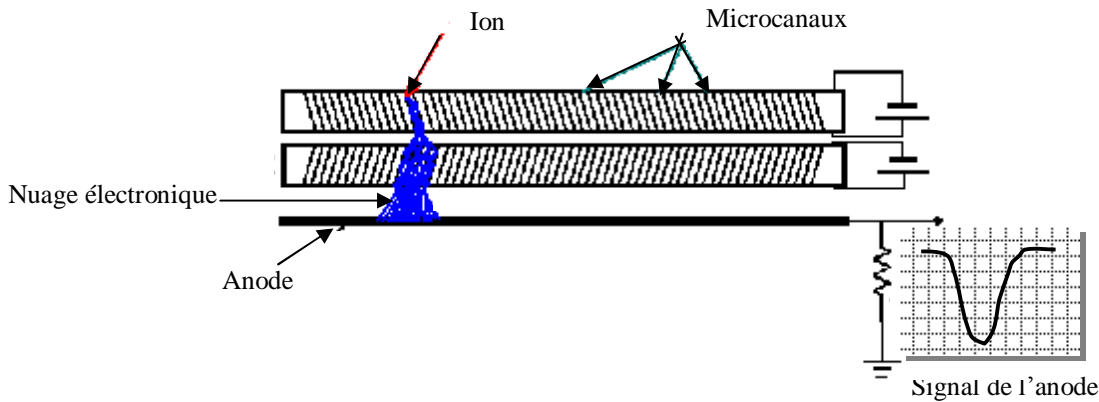


Figure II-10: Montages des galettes en chevron.

2-b: Caractéristiques des galettes à microcanaux.

b-1: Caractéristiques mécaniques.

Une galette à microcanaux est généralement de forme circulaire. La qualité du MCP dépend des caractéristiques géométriques des microcanaux, tels que leur longueur, leur diamètre ou leur inclinaison. Pour augmenter la surface visible par les particules incidentes et augmenter par conséquent la collision entre ces particules et les parois internes des canaux, ces derniers sont légèrement inclinés par rapport à la normale du plan des galettes ($\sim 12^\circ$). Celles que nous avons utilisées (*) ont un diamètre de 18 mm. Les canaux ont un diamètre de 5 μm et les centres des canaux sont espacés de 6 μm . Afin d'éviter le claquage des galettes, le vide dans l'enceinte ne doit pas être supérieur à 10^{-5} mbar. La différence de potentielle maximale permise entre les deux faces d'une galette est de l'ordre de 1.2 kV (donc 2.4 kV pour une structure de deux galettes en chevron).

b-2: rendement des galettes.

i : rendement géométrique.

Le rendement d'une MCP n'est pas de 100 % car elle n'est active que si la particule frappe l'intérieur d'un canal et ainsi produit une avalanche des électrons. Donc Une première limitation sera donc la surface que représente l'ensemble des microcanaux sur la face de la galette par rapport à la surface totale. Communément cette surface est de l'ordre de 62 %. Par conséquent, l'efficacité de détection sera de 62 % au maximum.

ii: Nature et énergie de la particule incidente.

Les rendements des galettes dépendent fortement du processus primaire d'émission d'électrons secondaires qui vont induire l'avalanche électronique. L'initiation de ce processus dépend des paramètres de la particule incidente (masse, vitesse, charge). Des mesures d'efficacité de détection [Ober 97] ont montré que plus un projectile est léger et /ou énergétique, plus il sera facile de le détecter (fig. II-11).

Les ions que nous voulons mesurer sont des agrégats de dioxyde d'uranium, sont relativement lourds et de faible énergie d'impact (~ 3 keV). Ce qui influence l'efficacité de détection de notre détecteur, et en conséquence rend la calibration des rendements mesurés indispensable. Le détecteur est conçu pour détecter les ions positifs et les photons.

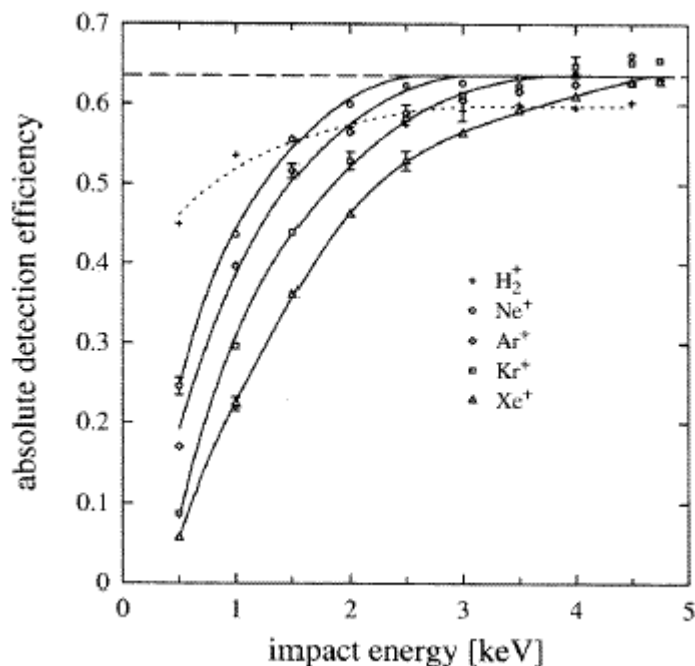


Figure II-11: Efficacité de détection des galettes pour différents projectiles [Ober 97].

4-3 : Détecteur de localisation.

Le détecteur de localisation est constitué de deux galettes à microcanaux couplées à une anode à doubles lignes à retard (fig. II-12) et permet de déterminer la position (x, y) sur la surface de l'anode du nuage électronique créé par l'impact d'ion secondaire sur les galettes à microcanaux et par conséquent, la localisation de l'endroit où l'ion a été frappé sur les galettes. L'obtention des informations sur la position des ions, et la mesure des spectres de temps de vol, permettront de remonter vers le vecteur vitesse initial V_0 des particules éjectées. →

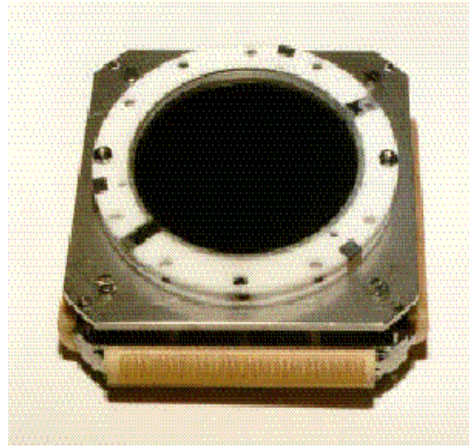
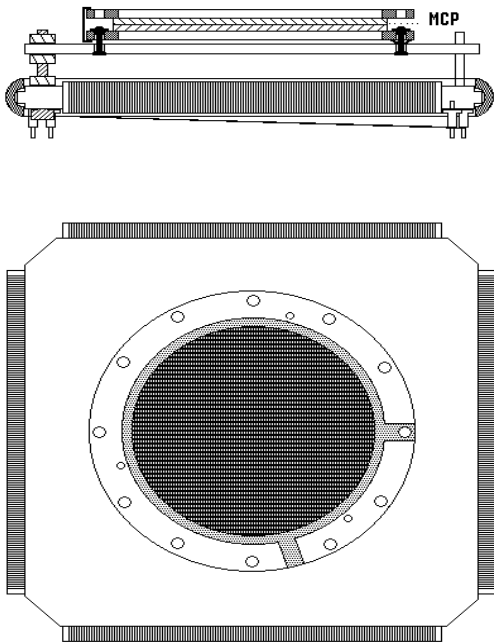


Figure II-12 : Schéma du détecteur de localisation.

3-a : Anode à doubles lignes à retard.

L'anode à doubles lignes à retard est constituée de deux paires de fils métalliques parallèles

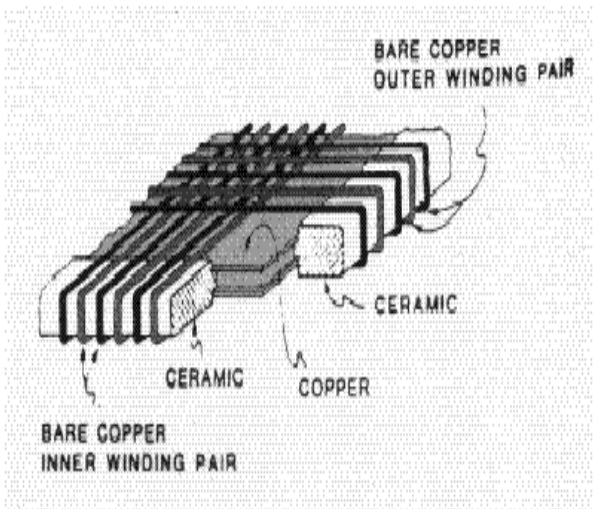


Figure II-13 : Enroulement des fils dans une anode à doubles ligne à retard [Sobo 88].

de transmission, de faible résistivité, perpendiculaires suivant les directions axiales X et Y (fig. II-14). Les deux paires d'enroulement perpendiculaires sont enroulées autour d'une plaque de cuivre encadrée par un cadre isolant de céramique et fixées sur les cotés de la plaque afin d'isoler les fils conducteurs les uns des autres, et d'isoler les fils de la plaque métallique.

3-b : Principe.

Une faible différence de potentiel est appliquée entre les deux fils parallèles de chaque enroulement. Lorsqu'une avalanche d'électrons arrive sur l'anode, elle va préférentiellement être captée par le fil polarisé positivement plus que de son voisin. Le signal d'électrons est alors situé sur un seul des deux fils. Le fil le plus polarisé est appelé *SIGNAL* ; l'autre le moins polarisé est appelé *REFERENCE* (fig. II-14)..

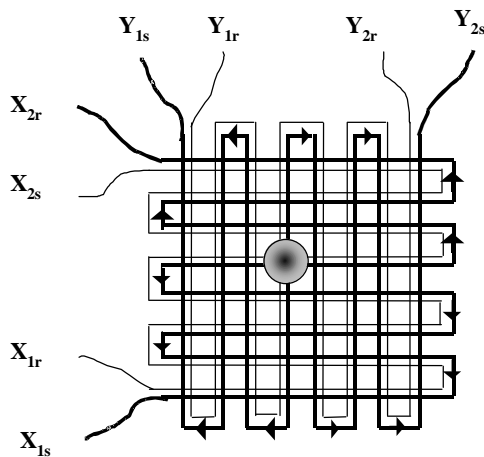


Figure II-14 : Fil SIGNAL et fil REFERENCE de l'anode.

Un courant d'électrons va se propager donc dans les deux directions de chaque fil signal ($X_1 \longleftrightarrow X_2$; $Y_1 \longleftrightarrow Y_2$). Il suffit de mesurer le temps mis par le signal pour atteindre chaque extrémité des deux fils pour en déduire la position (x, y) où il à été créé sur l'anode. Ce temps de propagation dépend de la vitesse de propagation du signal électronique dans le fil conducteur, et évidemment de la longueur du fil. Quel que soit l'axe de propagation (X ou Y), chaque abscisse est directement proportionnelle à la différence de temps ($T_{i1} - T_{i2}$, $i = x, y$) dans lesquels T_{i1} et T_{i2} sont les temps d'arrivée du signal électrons aux deux extrémités du fil ; mesurés par rapport à un temps référence ($t = 0$). Ici nous définissons le temps zéro par le moment où les ions secondaires arrivent sur les galettes donnant ainsi un signal galettes. La somme des temps de propagations ($T_s = T_{i1} +$

T_{i2} , $i = x, y$) est constante pour toutes les positions, est égale au temps de propagation du signal à travers la longueur entière du fil (fig. II-15).

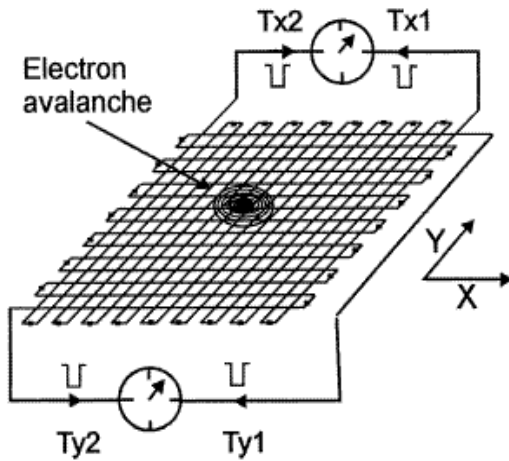


Figure II-15 : Principe de la ligne à retard et détection de la position plane d'un nuage électronique

II-5 : Choix des matériaux et préparation des échantillons.

5-1: Le Grenat de Gadolinium ($Gd_3Ga_5O_{12}$).

Des monocristaux de grenats de gadolinium gallium ($Gd_3Ga_5O_{12}$) ou (GGG) d'excellente qualité optique commercialisés par la société « Crismatec », d'épaisseur 0.5 mm ont été irradiés par les ions lourds rapides (^{86}Kr , ^{128}Te , ^{129}Xe , ^{181}Ta , ^{208}Pb , ^{238}U) à ganil en Sortie Moyenne Energie et des ions légers rapides (^{32}S , ^{52}Cr , ^{63}Cu) au tandem Van de Graaff 7 MV de Bruyères-le-Châtel de Bruyère dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique. Les paramètres de l'irradiation sont donnés dans le tableau II-1. Toutes les irradiations ont été réalisées à température ambiante. Le flux était de l'ordre de 3×10^8 particules $s^{-1}cm^{-2}$ à Ganil et de 10^9 particules $s^{-1}cm^{-2}$ à Bruyères-le-Châtel dépendant de l'ion incident et de l'échauffement de la cible. Pour chaque ion, plusieurs fluences ont été réalisées pour suivre l'évolution du dommage. La fluence maximale varie entre 5×10^{11} et 10^{14} particules cm^{-2} pour les faisceaux d'uranium et de carbone respectivement. Dans de nombreux cas, des feuilles d'aluminium de faibles épaisseurs ont été placées devant les échantillons pour faire varier l'énergie et le pouvoir d'arrêt électronique $(dE/dx)_e$ des ions incidents à la surface de la cible. Les valeurs de $(dE/dx)_e$ ont été calculés en utilisant le code de calcul **SRIM 2003** Durant l'irradiation, tous les échantillons ont été partiellement masqués pour permettre par la suite la comparaison entre la partie irradiée et la partie vierge (non irradiée). Le dommage induit par irradiation a été qualifié par la technique *c-RBS* (channelling-Rutherford backscattering ion) pour

tous les échantillons. Les analyses ont été réalisées au laboratoire *PHASE* de Strasbourg avec des particules alpha de 2 MeV sur le tandem Van de Graaff 4 MV. La figure II-16 montre un spectre *c-RBS* de $Gd_3Ga_5O_{12}$ en position canalisée et non canalisée pour la partie vierge et la partie irradiée dans la direction $\langle 111 \rangle$ de l'échantillon. Le spectre en position random est également tracé et simulé avec le programme *SAM* « Simulation for Analysis of Materials » [Stoq 98].

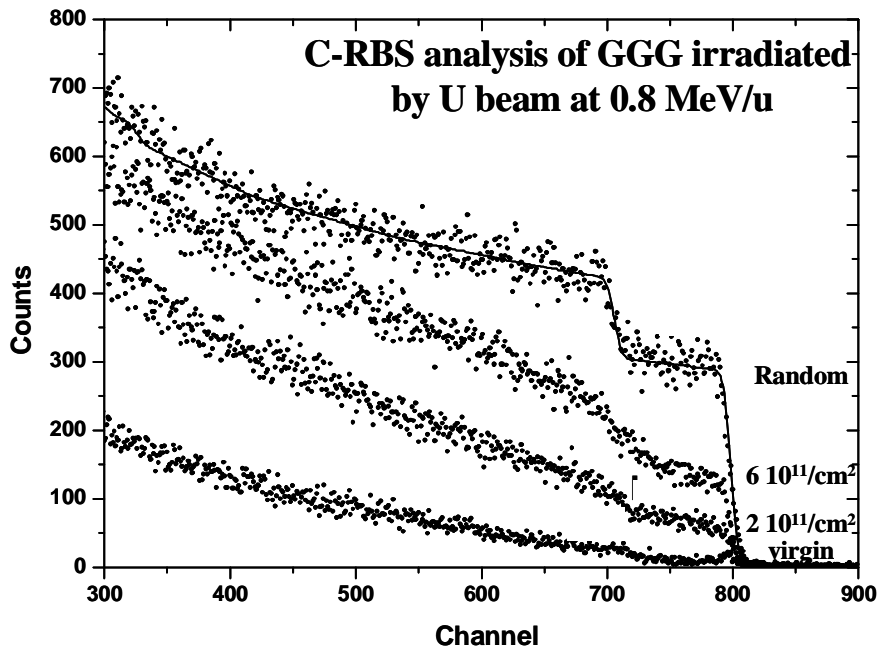


Figure II-16 : Spectres RBS, ^4He sur $Gd_3Ga_5O_{12}$ vierge et irradié, suivant la direction $\langle 111 \rangle$ et aléatoire.

Les échantillons ont été recouverts par une fine couche de carbone de 50 nm d'épaisseur pour éviter le chargement électrostatique des cibles au cours de l'analyse par *c-RBS*. Le modèle de la pointe thermique [Toul 98, Thei 78] a été appliqué, à ce matériau dont les paramètres thermodynamiques sont connus, pour calculer les rayons de trace. Les résultats montrent qu'il existe une bonne corrélation entre les rayons calculés et ceux obtenus expérimentalement.

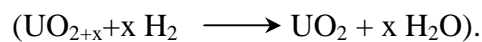
5-2: Le dioxyde d'uranium (UO₂).

Le dioxyde d'uranium est un oxyde lourd et toxique. Il présente une structure cubique à face centrée. Grâce à sa stabilité chimique et son point de fusion très élevé, il est utilisé comme carburant combustible dans les réacteurs nucléaires. Des oxydes comme (le *GGG*, et le *YIG*) ont fait l'objet d'études très intenses au *CIRIL* [*Meft 93*, *Meft 96*]. Le dioxyde d'uranium fait partie d'un grand programme initié depuis plusieurs années au *CIRIL* pour étudier les céramiques.

Ø Préparation des échantillons de dioxyde d'uranium:

L'état de surface des cibles frittées de cette céramique doit être homogène et identique pour les échantillons avant chaque expérience de pulvérisation. Avant l'irradiation, chaque pastille subit un traitement incluant polissage mécanique et recuit sous atmosphère contrôlée.

Le polissage s'obtient par abrasion mécanique de la surface et se déroule en plusieurs étapes, au cours desquelles la taille des particules abrasives utilisées diminue graduellement. La surface est tout d'abord érodée à l'aide d'un disque de papier sur lequel sont présentes les particules abrasives (1200 particules/inch). Ensuite, différents disques de tissu sont employés conjointement avec des suspensions de particules de diamant de diamètres différents. La taille des particules de diamant des suspensions utilisées successivement, décroît de 15 µm à 0.25 µm (15, 6, 3, 1, 0.25 µm). Suite à cette série de polissage, la surface polie subit un recuit qui permet d'éliminer les défauts structuraux créés au cours de l'étape de polissage et d'ajuster la stoechiométrie des pastilles. Les échantillons sont portés à une température de 1400°C pendant 4 heures. Les montées et descentes en température se font lentement (2°C/min) pour conserver une température homogène de l'échantillon. Durant les 27 heures de ce cycle thermique, un balayage gazeux d'un mélange *Ar/He* (rapport 90/10) permet d'éliminer l'excédent d'oxygène présent dans les frittées:



Cette réduction empêche la formation d'une phase plus oxydée telle que *U₃O₈*. La surface des cibles est contrôlée par la suite par la **M**icroscope à **F**orce **A**tomique (*AFM*) en mode contact. Les pastilles de *UO₂* utilisées pour nos expériences ont été préparées par Frédéric Garrido au Centre de Spectroscopie Nucléaire et de Spectroscopie de Masse (*CSNSM*, Orsay-Paris). Elles ont été également étudiées par F. Haranger [*Hara 03*].

5-3: Le fluorure de lithium (LiF).

Le fluorure de lithium est un isolant de grand gap (14 eV). Il présente une excellente transmittance dans la région visible et ultraviolet (*UV/VISIBLE*). Il est utilisé de façon remarquable pour ses propriétés optiques (fenêtres, prismes, lentilles...). Dans le domaine du nucléaire, il sert comme dissolvant de combustible nucléaire. Nous avons irradié ce matériau par les deux faisceaux du *GANIL*, pour comparer les résultats obtenus dans ces régimes séparés du pouvoir d'arrêt avec ceux obtenus récemment à Frankfurt [*Jalo 02*] par des faisceaux où les deux régimes du pouvoir d'arrêt coexistent. Pour cette étude, des échantillons cristallins et des échantillons en couches minces ont été préparés par évaporation thermique sous vide primaire.

II-6: Phénomènes physiques.

6-1 : Traces latentes dans le grenat de gadolinium.

Les endommagements induits sous forme de trace amorphe cylindrique seront caractérisés par la spectrométrie de rétrodiffusion Rutherford en mode de canalisation. Le modèle de la pointe thermique a été utilisé afin de comparer les rayons de traces calculés avec ceux mesurés, en fonction du pouvoir d'arrêt électronique.

6-2 : Emission d'ion secondaire.

Le développement de l'électronique rapide et des systèmes informatiques d'acquisition a beaucoup contribué à l'évolution de la technique de spectromètre par temps de vol, intensivement utilisée dans les dernières décades pour étudier l'émission d'ions secondaires [*SCH 96, Sche 97*]. Afin de réaliser une étude complète sur l'émission d'ions secondaires, nous avons utilisé deux dispositifs expérimentaux séparés, chacun basé sur la technique de la spectrométrie de masse par temps de vol, suivant l'étude que nous avons effectuée.

TOF-SIMS : Pour étudier les distributions en taille d'agrégats ioniques positifs émis d'une cible de dioxyde d'uranium bombardée par des ions multichargés de Néon (Ne^{+q}) d'Argon (Ar^{+q}) et de Xénon (Xe^{+q}) [Tab : II-1], nous avons utilisé un spectromètre de masse par temps de vol conçu au laboratoire (*CIRIL*), dont le détecteur est un assemblage des galettes à microcanaux et une plaque de cuivre comme une anode collectrice métallique (Fig. II-18) placée dans la chambre d'irradiation utilisée sur *LIMBE* (Fig. II-17). La chambre est pourvue des accessoires essentiels pour orienter et nettoyer les surfaces des cibles.

ØXY-TOF : Pour étudier les distributions angulaires des ions secondaires émis et les distributions en vitesses, nous avons utilisé une technique d'imagerie [*Jalo 02*], basée sur une combinaison de la technique de temps de vol et un détecteur de localisation à deux dimensions (*XY-TOF*) constitué des galettes à microcanaux et une anode à doubles linges à retard [*Sobo 88*], placé dans la chambre de canalisation, utilisée sur la ligne *SME* de physique atomique (Fig. II-18). Dans ces expériences nous avons irradié différentes cibles (*UO₂*, *LiF*) par les faisceaux de *LIMBE* et *SME*, [Tab. II-1] dans le but de compléter d'une part les études précédemment initiées « *TOF-SIMS* sur *LIMBE* » par la détermination des distributions angulaires et en vitesse des ions positifs pulvérisés, et d'autre part pour comparer les résultats obtenus dans ces régimes séparés du pouvoir d'arrêt avec ceux obtenus au *GANIL* à haute énergie [*Schl 01*] et à basse énergie [*Hara 03*], et avec ceux obtenus récemment à frankfurt [*Jalo 02*] par des faisceaux produits par l'accélérateur Van de Graaff, dans un domaine d'énergie intermédiaire où les deux régimes du pouvoir d'arrêt coexistent.

II-7: Expériences.

7-1 : Tof-SIMS.

1-a : La chambre d'irradiation.

La figure suivante (Fig.II-17) présente le schéma de la chambre ultravide que nous avons utilisée pour étudier la distribution en taille d'agrégats ioniques émis [*Caro 98*]. Cet arrangement expérimental comprend deux chambres secondaires de pompage différentiel qui permettent de maintenir une différence de pression entre le système ultravide et la ligne de faisceau, et une chambre principale centrale sur laquelle est installé le porte cible. Cette chambre ultravide est de forme hexagonale régulière. Chaque face de l'hexagone est un carré de 200 mm de coté. Elle comprend en outre un spectromètre de masse par temps de vol et un channeltron pour contrôler et détecter le faisceau pulsé.

1-b: principe.

Le principe de temps de vol est basé sur la mesure d'une différence de temps entre un signal de départ " *START*" et un signal d'arrivée " *STOP*". La figure (Fig.II-18) représente le schéma de principe pour des particules émises d'une surface plane solide sous impact d'ions primaires.

Ces particules ioniques désorbées avec une faible énergie, sont accélérés par une différence de potentiel V_T appliquée entre la cible et une grille extractrice de grande transmission (90%), placée à l'entrée du tube à une distance L_{ext} de la cible.

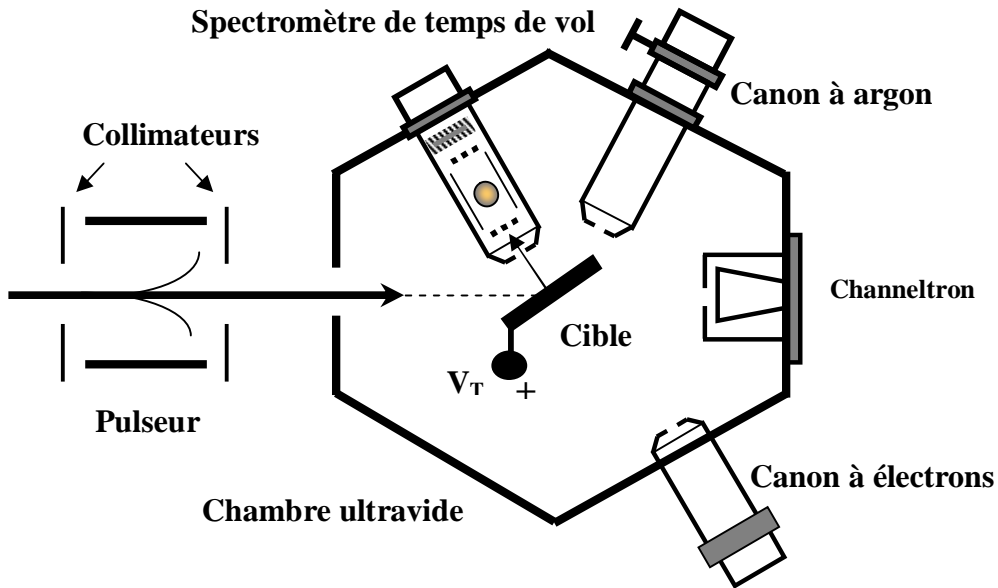


Figure II-17 : Chambre d'irradiation [Caro 98]

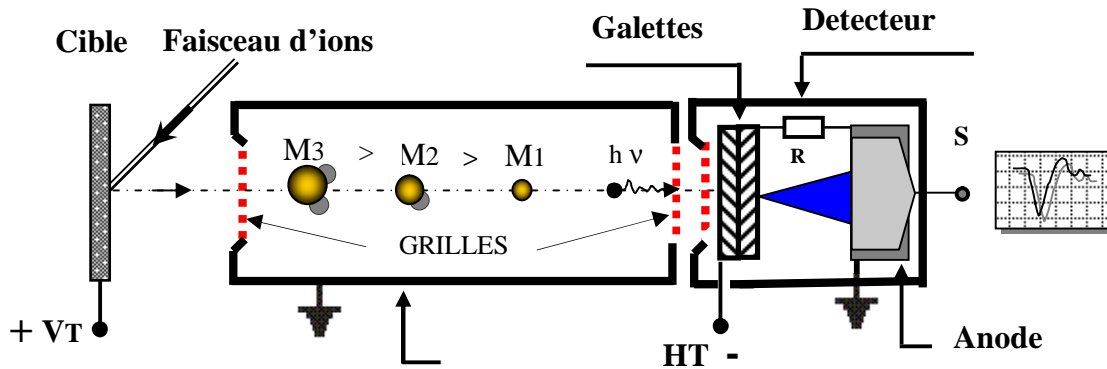


Figure II-18 : Spectromètre de temps de vol.

Les ions accélérés parcourent ensuite un espace sans champs à travers le tube de longueur L_i , avant de heurter un détecteur constitué de deux galettes de microcanaux. L'énergie d'accélération étant la même, les ions de masses différentes se séparent dans l'espace libre de champs et arrivent à des temps différents sur le détecteur. C'est la mesure entre l'instant de départ des ions de la

surface ‘’ moment de déclenchement ionique ‘‘, et leur instant d’arrivée sur le détecteur ‘’ moment de détection des ions secondaires émis’’ qui est appelée « temps de vol ».

1-c: Electronique de détection.

Le parcours des signaux à partir du pulser jusqu’au système d’acquisition à travers les détecteurs, passe essentiellement par les modules électroniques suivants:

- Ø Discriminateur à Fraction Constante (*CFD*).
- Ø Convertisseur Temps Numérique(*CTN*).
- Ø Interface Graphique (*TMSf*) et système d’acquisition.

et d’autres modules, comme les amplificateurs, gate and delay generator et le circuit *ET/OU* logique. Le schéma électronique utilisé dans cette expérience est représenté dans la figure suivante (Fig.II-19)

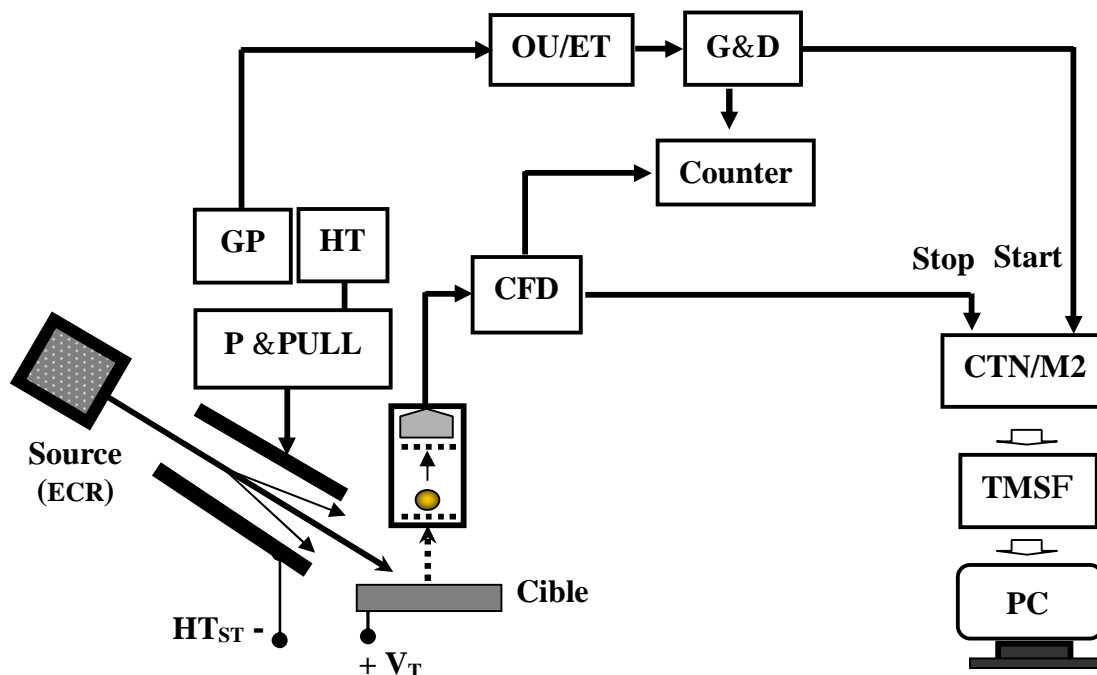


Figure II-19 : Schéma électronique

i: Le discriminateur à fraction constante (CFD).

Deux tâches sont assignées au discriminateur à fraction constante :

1. discriminer un signal de bruit.
2. déterminer l’instant d’arrivée du signal.

Pour la mise en forme des signaux, nous avons utilisé des discriminateurs à fractions constantes de type *ORTEC* (*Model 935*) à quatre étages. Chaque étage possède trois sorties indépendantes de *NIM* (Nuclear Instrument Module) rapide de $-0.8 \text{ V}/50 \Omega$, avec un temps de montée de 2 ns. La largeur en temps du signal est ajustable entre 8 ns et 100 ns. Chaque discriminateur reçoit des impulsions négatives provenant du détecteur. Le discriminateur détecte la présence des signaux avec une grande précision temporelle. Le seuil du discriminateur est réglé à une valeur optimale (entre la valeur minimale 17 mV, et 600 mV) afin de pouvoir éliminer le bruit créé par le faisceau sur le détecteur d'une part, et d'autre part pour que les impulsions des *MCP* générées par l'impact des ions secondaires de masses élevées puissent être détectées.

ii: Le convertisseur temps numérique (CTN).

Le convertisseur multistops que nous avons utilisé a été développé à l'institut de physique nucléaire (*IPN*) d'Orsay [**Fest 81**]. Le *CTN/M2* mesure une différence de temps entre un signal "start" et des signaux "stops". Il convertit cette mesure en binaire sur 19 bits.

Après un signal start, une durée d'analyse est déclenchée. Cette durée peut prendre une des valeurs suivantes (4, ... 32... 64...128...256 μs). Après cette période, le *CTN* peut analyser jusqu'à 255 différents stops. Il fournit à la sortie des données numériques proportionnelles à la différence de temps Δt mesurée. Des ions de masses différents émis simultanément, ont des temps de vol différents et donc sont facilement distingués par leur différences de temps. L'accumulation ces différences de temps Δt_i conduira à un spectre de temps de vol formé événement par événement.

iii: L'interface (TMSf) et le système d'acquisition.

Le *TMSf* est une interface entre le *CTN/M2* et le système d'acquisition. Le *CTN/M2* filtre les informations fournies par le convertisseur et met les données en format. Il réduit, si cela est nécessaire la résolution du *CTN* à 1, 2, 4, 8, 16, 32, 64 ns par canal. Les données sont ensuite transmises à un microprocesseur *MIPRE II*, à travers un registre d'entrée/sortie. Ce registre est placé dans le même châssis *CAMAC* que le microprocesseur. Les données lues et traitées par le microprocesseur sont adressées à une carte mémoire de capacité 1 Megaoctet incorporée dans un micro-ordinateur.

1-d: Manipulations.

Pour étudier la pulvérisation induite par des ions multichargés, les cibles de UO_2 sont bombardées par différents faisceaux pulsés d'ions multichargés (Ne^{q+} , Ar^{q+} , Xe^{q+}) sous une incidence oblique (60°), et à une énergie cinétique constante (81keV) sur la ligne *LIMBE*. Les cibles

sont disposées sur un porte cible polarisable placé dans la chambre ultravide ($\sim 10^{-9}$ mbar) et pourvu d'un système de rotation et de translation.

La pulvérisation n'est cependant pas isotrope mais s'effectue préférentiellement suivant la normale sur la surface des cibles [*Hara 03*] dirigée vers l'axe du tube de temps de vol, donnant ainsi accès à un taux de comptage plus élevé et donc une meilleure statistique.

Le signal start est déclenché au niveau du pulser, pour chaque front montant et front descendant du signal *TTL* périodiquement généré par un générateur de pulses pour commander le push and pull (double comptage) (Fig.II-3) grâce au module *ET/OU* logique. Il faut que le temps entre deux paquets d'ions projectiles soit plus important que le temps de vol des agrégats les plus lourds. Pour tenir compte de la distance entre le pulser et la cible (~ 13 m), ce signal doit retardé avec un temps correspondant au temps nécessaire pour que le projectile parcourt cette distance (~ 15 μ s). Ce signal sera transformé en un signal *NIM* par un Gate and Delay (*G & D*) generator (*ORTEC 416A*), avant d'être envoyé vers l'entrée start du *CTN*.

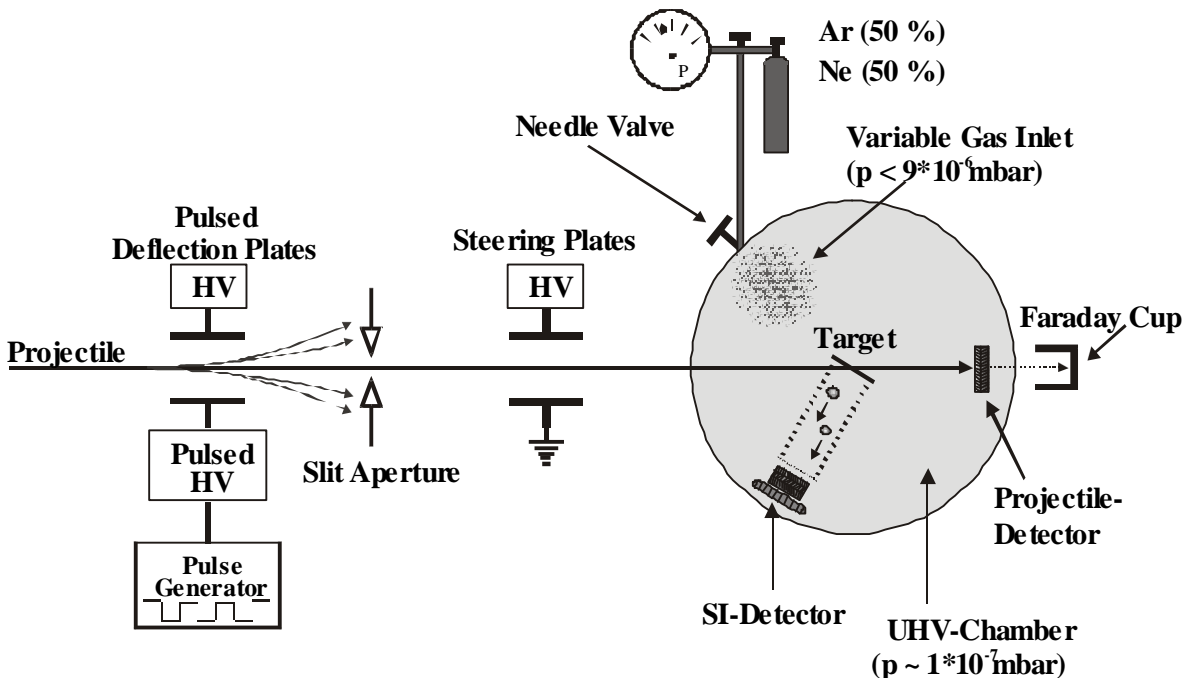
Les ions secondaires émis sont accélérés vers le détecteur de galettes à microcanaux par une tension positive pulsée variant entre 100 V et 1.35 kV (avec un temps de montée de 100 ns / kV) appliquée sur la cible. Cette tension est engendrée par un système de « push and pull » similaire à celui du pulser faisceau. En plus, le push and pull est commandé par le même signal *TTL* généré par le générateur de pulses. Une pulse de tension est envoyée sur la cible juste après chaque arrivée du paquet d'ions.

Le signal galettes, correspondant à une particule détectée, est envoyé vers l'entrée stop du *CTN* sensible qu'à des signaux *NIM* d'amplitudes négatives de 0.8 V. Le signal émis par les galettes, est un signal analogique négatif d'ordre de quelques dizaines de millivolts. Ce dernier doit donc converti en un signal *NIM* par un discriminateur à fraction constante (*CFD*) qui permet de fixer un seuil afin de ne pas détecter le bruit provenant du détecteur.

7-2: IMAGERIE.

2-a : Chambre d'irradiation.

La figure II-20, présente le schéma du système d'irradiation sur la ligne des ions multichargés de basses énergies. Un faisceau pulsé est envoyé sur la cible placée sur le détecteur dans la chambre ultravide. Des plaques de déviations verticales et horizontales sont placées pour guider le faisceau vers la cible. Un mélange de gaz rares (*Ne* et *Ar*) est introduit dans l'enceinte pour l'étalonnage en masse des spectres de temps de vol.

Figure II-20 : Chambre d'irradiation sur la ligne *LIMBE*.

2-b : Principe.

Le schéma de principe est représenté sur la figure II-21. La technique d'imagerie nous permettra à la fois d'enregistrer des spectres de temps de vol et de localiser le point d'impact de l'ion pulvérisé sur l'anode, nécessaires pour l'étude des distributions en masse et en impulsion des particules pulvérisées respectivement.

i- Le temps de vol des ions pulvérisés, correspond à l'intervalle du temps entre le moment où l'ion est pulvérisé et à l'instant où il est détecté par les galettes. Cela requiert deux signaux : un signal de départ appelé *START* et un signal d'arrivé appelé *STOP* (signal galette, *MCPSI*). Deux méthodes sont utilisées pour définir le start, selon que l'expérience se déroule sur *LIMBE* à basse énergie ou sur la *SME* à haute énergie.

Sur la ligne *LIMBE*, le faisceau d'ions projectiles est pulsé. Le pulser délivre un signal *TTL* (signal carré de 0 à 5 V) synchrone à chacune de ses pulsations. Il est utilisé comme start.

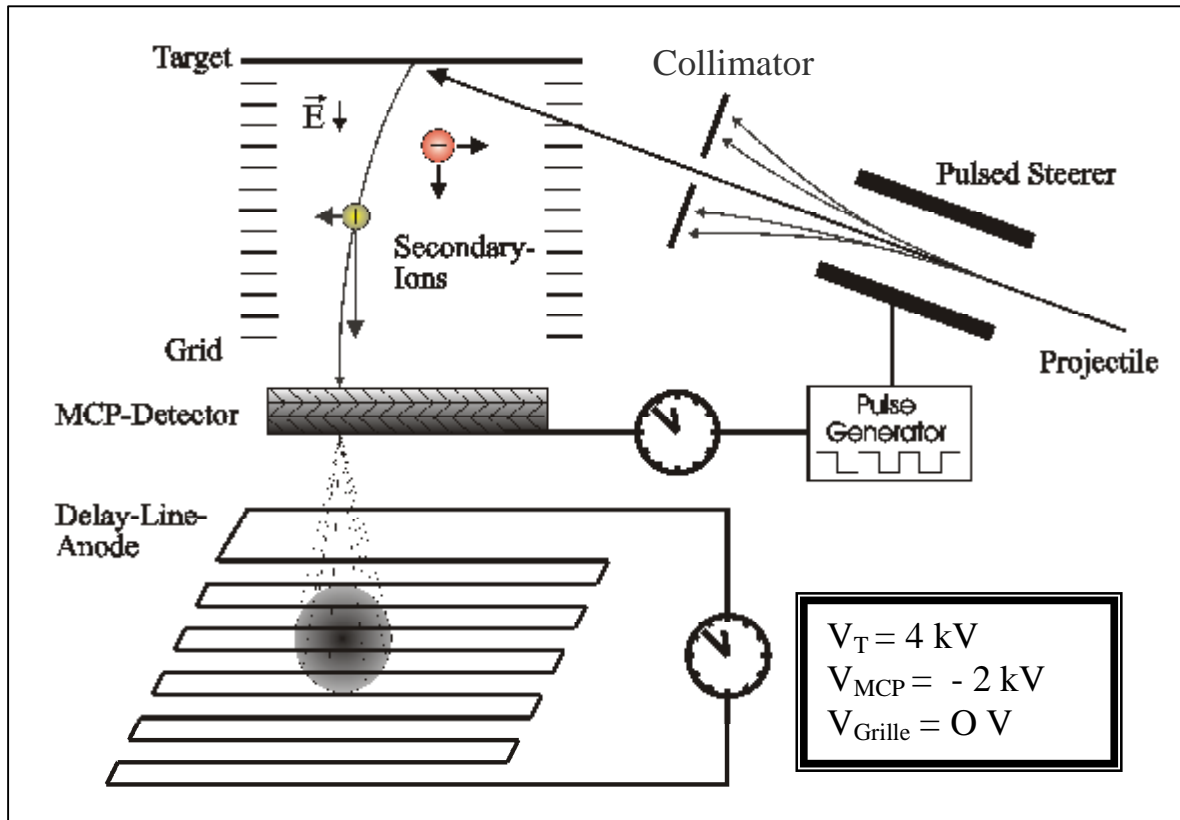


Figure II-21 : Schéma de principe de la technique d'imagerie.

Sur la *SME*, un détecteur de projectile est installé en amont de la chambre d'irradiation. Il est constitué d'une fine feuille d'aluminium pour ne pas modifier notablement l'état de charge du projectile, et d'un détecteur de galettes à microcanaux (Fig. II-21). Lorsque un ion projectile traverse cette feuille, il arrache des électrons qui sont ensuite attirés par la face avant du système des galettes polarisée positivement. Le signal récupéré sur la face arrière de ce système présente le start (MCPPROJ).

ii- Le nuage électronique récupéré sur l'anode provoque un signal qui se propage dans les deux directions des deux fils perpendiculaires. Les deux signaux récupérés sur chaque fil nous permettent de localiser l'endroit où les électrons ont été collectés et donc de localiser le point d'impact de l'ion sur les galettes. Huit signaux sont récupérés de l'anode : quatre signaux dits « références » provenant des fils « référence » non polarisés et quatre signaux dits « signaux » provenant des fils « signal » polarisés à 200 V . Ces signaux sont ensuite envoyés à travers des câbles de mêmes longueurs vers un amplificateur différentiel qui nous permettra de faire la soustraction entre les signaux « référence » et « signal » de chaque fil afin d'éliminer le bruit de fond.

Les 8 signaux récupérés de l'anode sont :

Signal : $X1sig$ et $X2sig$ pour le fil signal vertical
 $Y1sig$ et $Y2sig$ pour le fil signal horizontal

Référence : $X1ref$ et $X2ref$ pour le fil signal vertical
 $Y1ref$ et $Y2ref$ pour le fil signal horizontal

Ces signaux sont traités par l'amplificateur différentiel. Il n'en restera plus que quatre signaux à sa sortie :

$$X1 = X1sig - X1ref$$

$$X2 = X2sig - X2ref$$

$$Y1 = Y1sig - Y1ref$$

$$Y2 = Y2sig - Y2ref$$

Le boîtier amplifie ces signaux qui seront traités ensuite par l'électronique de détection.

A partir de la mesure du temps de vol entre le *START* (pulsation du faisceau sur *LIMBE* et le détecteur du faisceau sur la *SME*) et le *STOP* (signal des galettes) d'une part, et du point d'impact sur l'anode d'autre part, il est possible de remonter à l'impulsion (vitesse) initiale de l'ion secondaire émis ($\dot{P}_0 = m\dot{V}_0$). Cette technique a déjà été utilisée avec succès à l'institut de physique nucléaire de Frankfurt pour des collisions entre des ions produits par un Van der Graaf et une cible de *LiF* [*Schm 02, Jalo 02*].

2-c : Electronique de détection.

Nous avons bénéficié de la technologie nucléaire du Ganil. Ainsi, notre électronique de détection et d'acquisition est composée de modules aux formats *NIM*, *CAMAC* (**C**omputer **A**utomated **M**eurment **A**nd **C**ontrol) et *VME* (**V**ersa **M**odule **E**uropa). On peut regrouper l'électronique que nous avons employée en 3 groupes selon leurs fonctionnalités :

∅ les modules de traitement du signal analogique : comme des amplificateurs rapides pour amplifier les signaux issues du détecteur de localisation et des *CFD* pour mettre les signaux en forme et mesurer les temps qu'ils séparent.

∅ les modules de prises de décision (fonction trigger) : chaque détecteur a son bruit propre. Ainsi tous les signaux reçus ne sont pas créés par le passage d'un ion projectile. Il faut donc déterminer quand un bon événement s'est produit. Lors d'expériences de coïncidences, c'est la présence simultanée de certains signaux qui pourra certifier que l'évènement en cours est

intéressant et exploitable. Le trigger est l'ensemble de l'électronique dédié à la prise de décision. C'est l'ensemble des modules logiques (*ET*, *OU*), des générateurs des portes logiques ainsi que des retards à durée variable. Les triggers ont tous plus ou moins le même schéma de principe. Des signaux rapides indiquent les détecteurs touchés au cours d'un événement. Chaque configuration d'arrivée des signaux rapides préalablement répertoriée, débouchera sur une prise de décision. Si l'évènement est intéressant, toute l'acquisition est bloquée, et l'évènement est lu et enregistré. Sinon, on passe à l'évènement suivant sans sauvegarder les données.

Ø les modules de codage de l'information (transformation analogique-numérique) : le codeur a pour but de transformer un signal analogique en grandeur numérique. Cette grandeur peut être l'amplitude du signal, sa surface, son instant d'arrivée, etc. Un codeur a donc en entrée des signaux analogiques, et en sortie une valeur numérique. Cette valeur sera codée en nombre binaire et doit transiter par un BUS de données jusqu'à l'ordinateur où seront traités ces informations. Dans notre cas, deux types de codeurs sont employés :

Un *TDC* (*LeCroy 3377*) « **T**ime to **D**igital **C**onverter » est un convertisseur temps – digital de 32 voies qui a la possibilité d'enregistrer 16 hits « impulsion ou coups » par voie au cours d'un évènement sur une échelle de temps de 16.3 μ s avec un pas de codage de 0.5 ns. Il permet de mesurer les intervalles de temps séparant les impulsions *START* des impulsions *STOP*. Ces mesures sont alors disponibles sous un format binaire accessible via le bus *CAMAC*. Puisqu'au cours de nos expériences, des temps de vols sont mesurés et que les localisations sont déduites de mesures de temps de propagation. Le *TDC* est la pièce maîtresse du dispositif expérimental. Elle fonctionne dans notre expérience en mode «common stop » c'est-à-dire, l'arrivée d'un stop sur la voie « common hit » du *TDC* est prise comme référence temporelle ($t = 0$) et stoppe la mesure des signaux (antérieurs) sur les 32 voies « start »

2-d: Acquisition du Ganil.

L'acquisition *Ganil* est basée sur des stations *VMS* (ordinateurs hôtes). Au *CIRIL*, deux stations sont disponibles : *ganci0* pour l'acquisition et *ganci1* pour le dépouillement des données sur bande. Sur *ganci0*, le programme *P541* établit la configuration générale de l'acquisition pour l'expérience et définit les modules électroniques utilisés et leurs caractéristiques, mais aussi les spectres, les coefficients et les paramètres de contrôle. Ainsi, il est composé de plusieurs fichiers.

Les fichiers importants pour l'utilisation du *TDC* sont :

• *Module_P541.dat* : donnant sa position (branche, châssis *CAMAC*, station occupée sur ce châssis).

• *Parametres_P541.dat* : définissant les 6 voies du *TDC* (*X1, X2, Y1, Y2, MCPSI, MCPPROJ*).

• *Action_P541.dat* : Pour son mode de fonctionnement (common stop, lecture double mot, échelle de temps de 16 hits / voie).

Les fichiers des éléments de contrôle de l'acquisition sont :

• *Spectres_P541.dat* : définissant les différents spectres utilisés pour visualiser les données (*TOF,...*)

• *Calculs_P541.dat* : définissant les paramètres calculés (*TOF, X, Y, ...*)

• *Coefficients_P541.dat* : définissant les coefficients utilisés.

Pour contrôler l'acquisition, il existe trois fonctions de contrôle :

• *Acq_ctr_user_int_P541.dat* : permet l'identification complète des paramètres bruts, calculés et des coefficients. Il n'est appelé qu'une seule fois par le programme, au lancement de l'application.

• *Acq_ctr_user_P541.dat* : est appelé à chaque événement. Il permet l'incrémement des spectres et le calcul des paramètres calculés.

• *Acq_ctr_user_endrun_P541.dat* : est appelé une seule fois dans le programme d'acquisition après le dernier événement et permet la fin de l'acquisition.

Pendant l'acquisition des données, on visualise les spectres avec le logiciel *VISUGAN*. Cette visualisation en ligne permet de rester en interactif avec le dispositif expérimental, et de pouvoir contrôler le fonctionnement de ce dernier au cours de l'expérience. Les données sont stockées sur bandes magnétiques de type *DLT*. Ces bandes seront relues ultérieurement. Le logiciel *ROOT* est utilisé pour analyser les données stockées sur les bandes d'acquisitions. Pour cela, les fichiers de la bande sont convertis en ntuples (tableaux de forme matricielle à dimensions variables) à l'aide d'un programme intitulé : *DEPOU_ROOT* sur la station *ganci0*, puis en fichiers *ROOT*. *ROOT* permet de reconstituer les spectres visualisés pendant l'acquisition et de les analyser.

2-e : Manipulations.

Nous proposons d'appliquer cette technique à l'étude des collisions ions lourds multichargés produits sur les deux lignes du GaniL, avec des cibles de *UO₂* et de *LiF* [Tab .II-1].

Les ions secondaires positifs sont accélérés dans une zone d'extraction (~ 98 mm) par un champ électrique uniforme, obtenu par une polarisation positive sur le porte cible (4 kV) et une séquence d'électrodes équidistantes reliées entre elles par des résistances identiques de 1 M Ω . Après avoir traversé une grille de haute transmittance, les ions secondaires positifs sont accélérés de nouveau sur une distance de 6 mm, par une tension négative (~ -2 kV) appliquée sur le front d'un système de galettes à micro-canaux (post-accélération), couplées à une anode à double lignes à retard, permettant de déterminer la position d'impact de l'ion secondaire incident sur le détecteur. La trajectoire des ions secondaires dans le champ électrique entre le porte cible et le détecteur, est une fonction de la masse, de la charge et de la vitesse initiale de l'ion considéré

Les signaux récupérés « paramètres bruts » sont :

X1, X2, Y1, Y2, MCPSI, MCPPROJ.

Des mesures de temps sont effectuées à partir de ces signaux d'amplitudes variables. Afin d'avoir des mesures précises (indépendantes du temps de montée des signaux, les signaux sont discriminés et sont mis en forme « standard » en format *NIM* par des *CFD*.

Les signaux physiques sont atténués lors de leur propagation dans les câbles. Pour être certain qu'ils auront une amplitude supérieure au seuil des *CFD*, ils sont amplifiés (Fig. II-22). Les signaux de l'anode sont amplifiés par un amplificateur différentiel alors que les signaux permettant la mesure du temps de vol sont amplifiés par des amplificateurs rapides :

Ø Le *MCPPROJ* par un amplificateur *LeCroy 612AM*.

Ø Le *MCPSI* par un amplificateur *ESN electronic FTA 410*.

Tous les *CFD* sont réglés de manière à avoir une résolution de déclenchement de l'ordre de la nanoseconde. Et tous les signaux sortant des *CFD* sont convertis en format *ECL* puis envoyés sur le *TDC*.

La fenêtre de détection est d'environ 10 μ s. Pour ne pas avoir plusieurs signaux provenant du « détecteur projectile » sur la même fenêtre, on diminue l'intensité du faisceau afin d'avoir eu moins de 10^5 ions / s. Dans notre expérience, l'intensité était de 35 000 à 40 000 ions / s, le nombre d'ions pulvérisés étant lui de 300 / s (soit environ de 1% des signaux stars).

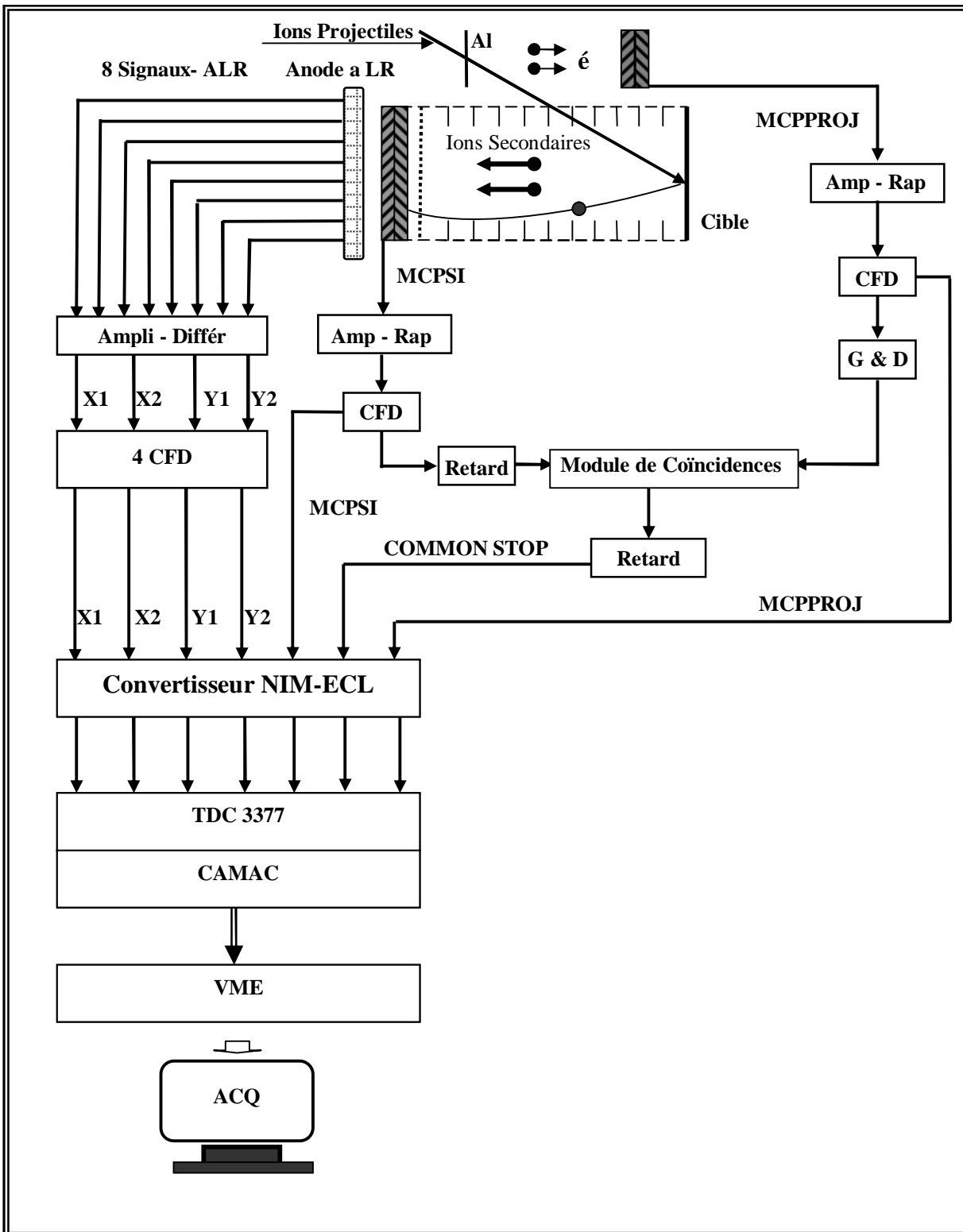


Figure. II-22 : Electronique de détection

Les tableaux II-1 résument l'ensemble des irradiations effectuées au cours de ce travail dont les résultats seront présentés au chapitre III.

Ø RBS-c et i-TS

Projectiles légers (Van de Graaff- Bruyères-le-Châtel)	
Ion	Energie (Mev/u.m.a)
^{32}S	1.5
^{52}Cr	10.6
^{52}Cr	6.2
^{52}Cr	4.5
^{63}Cu	0.8
^{52}Cr	1.8

Projectiles lourds (SME – Ganil)			
Ion	Energie (MeV/u.m.a)	Ion	Energie (MeV/u.m.a)
^{86}Kr	9.0	^{238}U	0.8
^{129}Xe	0.4	^{208}Pb	1.2
^{86}Kr	3.4	^{181}Ta	2.0
^{128}Te	1.3	^{208}Pb	4.0
^{128}Te	2.2	^{238}U	2.8
^{181}Ta	1.2	^{208}Pb	4.5

Ø TOF – SIMS

Ion projectile	Ligne de faisceau	Energie	Cible	Angle
Ne^{8+} Ar^{8+} Xe^{10+} Xe^{23+}	LIMBE	81 keV	UO_2	60°

Ø Imagerie

Ion projectile	Ligne de faisceau	Energie	Cible	Angle
Xe^{21+}	LIMBE	357 keV	UO_2 LiF en couches minces	60°
S^{15+}	SME	11.4 MeV/u	LiF cristallin UO_2	
Ni^{24+}		10.9 MeV/u	UO_2	
Ca^{17+}		9.1 MeV/u	UO_2 LiF cristallin	

Tableaux. II-1 : Ensemble des irradiations.

Bibliographie

- [*Ahn 82*] J. Ahn, Mat. Res. Bull 17 (1982) 127.
- [*Caro 98*] M. Caron et al, Nucl. Instrum. Meth. B 146, (1998)126.
- [*Chu 78*] X. Chu, J.W. Mayer, M.A. Nicolet, Backscattering Spectrometry, (Academic Press 1978).
- [*Cost 93*] J. M. Costantini, F. Ravel, F. Brisard, M. Caput, C. Cluzeau, Nucl. Instrum. Meth. B 80/81 (1993) 1249.
- [*Fest 81*] E. Festa and R. Sellem, Nucl. Instrum. and Meth. 188 (1981) 99.
- [*Gell 85*] Geller. R, Jacquot. B and Pontonnier. M, Review of Scientific Instruments, 56 (1985)1505.
- [*Hara 03*] F. Haranger, thèse, université de Caen (2003).
- [*Jalo 02*] T. Jalowy, R. Neugebauer, M. Hattass, J. Fiol, F. Afaneh, J. A. M. Pereira, V. Collado, E. F. da Silveira, H. Schmidt-Böcking and K. O. Groeneveld, Nucl. Instr. Meth. B193 (2002) 762-767.
- [*Jung 96*] M. Jung, thèse, université de Caen (1996).
- [*Maun 02*] L. Maunoury, R. Leroy, T. Been, G. Gaubert, L. Guillaume, D. Leclerc, A. Lepoutre, V. Mouton, J. Y. Pacquet, J. M. Ramillon, R. Vicquelin, the GANIL Ion Production Group, Rev. Sci. Instrum. 73, 561 (2000).
- [*Meft 93*] A. Meftah, F. Brisard, J.M. Costantini, M. Hage-Ali, J.P. Stoquert, F. Studer and M. Toulemonde, Phys. Rev. B 48 (1993)920.
- [*Meft 96*] A. Meftah, M. Djebara, J. P. Stoquert, F. Studer and M. Toulemonde, Nucl. Instr. Meth. B107 (1996)242.
- [*Ober 97*] J. Oberheide, P. Wilhelms and M. Zimmer, Meas. Sci. Technl. 8 (1997) 351-354.
- [*Sche 97*] T. Schenkel et al, Nucl. Instr. Meth. Phys. Sect. B 125, 153(1997).
- [*Schl 01*] S. Schlutig, thèse, Université de Caen (2001).
- [*Schm 02*] H. Schmidt-Böcking, R. Dörner, J. Ullrich, ” COLTRIMS: The bubble chamber technique for low energy fragmentation processes in atomic, molecular, and surface physique”, Europhysicsnews (special issue): Atomic and molecular physics: New challenges and new opportunities. 33/6 (2002) p. 210-211.
- [*Schn 96*] D. H. Schneider and M. A. Brière, Phys. Scr. 53, 228 (1996).
- [*Sobo 88*] S. E. Sobottka and M. B. Williams, IEEE. Trans. Nucl. Sci.35, 348(1988).

- [*Stoq 98*] J. P. Stoquert, F. Pêcheux, Y. Hervé, H. Marchal, R. Stuck, P. Siffert, Nucl. Instr. Meth. B 136 – 138 (1998) 1152.
- [*Thie 78*] K. Thiel, H. Külzer, W. Herr, Nucl. Tracks Detect. 2 (1978) 127.
- [*Toul 98*] M. Toulemonde, A. Meftah, J. M. Costantini, K. Schwartz, C. Trautmann, Nucl. Instr. Meth. B 146 (1998) 426.
- [*Wiza 79*] J. L. Wiza, Nucl. Inst And Meth. 162 (1979) 587.

CHAPITRE III

ANALYSE DES RESULTATS ET DISCUSSION

La première partie de ce chapitre présente les résultats des expériences réalisées pour étudier l'endommagement du grenat gadolinium galium $Gd_3Ga_5O_{12}$ induit par irradiation avec des ions lourds dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique. Le dommage a été quantifié par la rétrodiffusion Rutherford en canalisation. Les sections efficaces de création de défauts et les rayons de traces correspondants ont été déterminés. Le modèle de la pointe thermique inélastique a été utilisé pour calculer les rayons de traces en fonction de pouvoir d'arrêt électronique $(dE/dx)_e$ en utilisant, un seul paramètre libre de fit, λ la longueur de diffusion de l'énergie sur les électrons de la cible. Les résultats des calculs ont été confrontés aux résultats expérimentaux. La seconde partie de ce chapitre est consacrée à la pulvérisation du dioxyde d'uranium par irradiation. Les résultats des expériences de l'émission d'ions secondaires étudiés par la technique *TOF-SIMS* seront présentés.

III-1 : Caractérisation des traces latentes dans le $Gd_3Ga_5O_{12}$.

Nous allons examiner les résultats expérimentaux du dommage induit dans le $Gd_3Ga_5O_{12}$ irradié par une grande variété d'ions lourds projectiles dans un large domaine d'énergie et les résultats des fits par le modèle de la pointe thermique inélastique (*i-TS*), étendu à d'autres matériaux amorphisables, pour déterminer les rayons de traces en fonction du pouvoir d'arrêt électronique $(dE/dx)_e$.

1-1: Analyse des résultats expérimentaux

La spectrométrie de rétrodiffusion Rutherford en canalisation (*c-RBS*) a été employée pour quantifier le dommage induit dans les échantillons étudiés. Les sections efficaces d'amorphisation A et les rayons effectifs de la trace R_e en fonction du pouvoir d'arrêt électronique $(dE/dx)_e$ ont été déterminés. Les résultats de l'analyse sont résumés dans le tableau III-I. Les valeurs du pouvoir d'arrêt électronique $(dE/dx)_e$ ont été calculées par le code de calcul *SRIM*. La figure III-1 présente l'évolution de la section d'endommagement en fonction du pouvoir d'arrêt électronique $(dE/dx)_e$. Les lignes continues sont les résultats des fits linéaires des données expérimentales. L'extrapolation jusqu'à une section d'endommagement nulle permet de déduire le pouvoir d'arrêt seuil de création de trace, qui est de l'ordre de 7.2 ± 1.2 keV/nm pour le faisceau de moyenne énergie (~ 1.5 MeV/u) et de 9.3 ± 0.9 keV/nm pour le faisceau haute énergie (~ 6 MeV/u). Ces valeurs sont en accord avec le pouvoir d'arrêt seuil déduit à partir de l'étude concernant le gonflement induit dans le *GdG* par irradiation avec des ions lourds et rapides [Toul 98]. La section efficace ($A = 4.3 \pm 0.9 \cdot 10^{-13}$ cm⁻²) déduite par *c-RBS* pour le faisceau du cuivre [Tab. III-1] est pratiquement égale à celle déterminée par la microscopie électronique à transmission ($A = 4.2 \pm 0.6 \cdot 10^{-13}$ cm⁻²) [Cost 93] pour un pouvoir d'arrêt de 12.4 keV/nm et un faisceau de cuivre d'énergie 0.5 MeV/u.

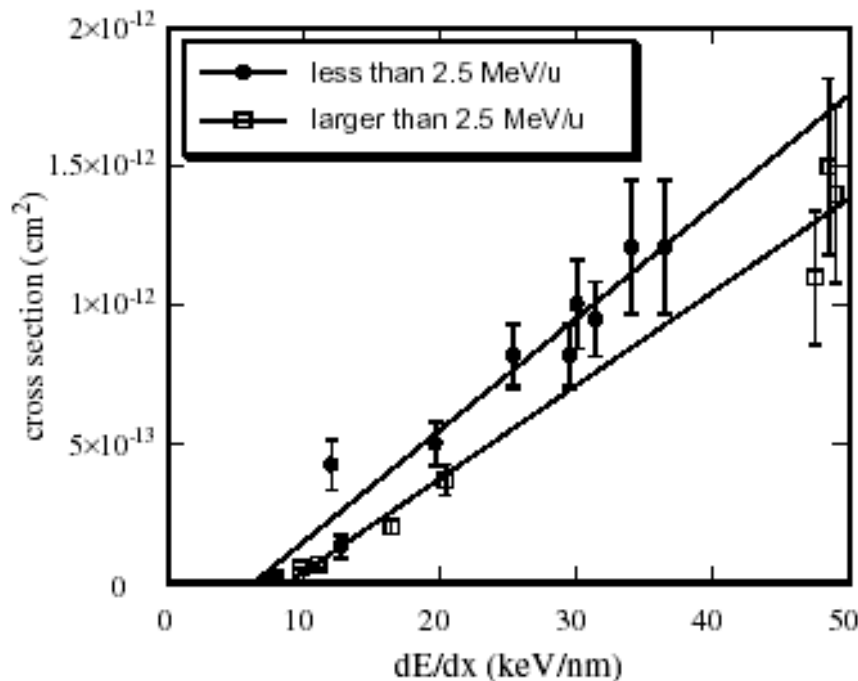


Figure III-1: La section d'endommagement, en fonction du pouvoir d'arrêt du $Gd_3Ga_5O_{12}$ pour deux différentes gammes d'énergie. Les traits en plein sont les résultats des fits linéaires.

Ion	Energie (MeV/a.m.u.)	(dE/dx) _e (keV/nm)	Section d'endommagement A(cm ²)	Rayon effectif R _e (nm)
³² S	1.5	7.6	(1.5±0.1)10 ⁻¹⁴	0.7±0.1
⁵² Cr	10.6	7.8	(1.4±0.1)10 ⁻¹⁴	0.7±0.1
⁵² Cr	6.2	9.7	(5.2±0.2)10 ⁻¹⁴	1.3±0.2
⁵² Cr	4.5	11.0	(6.4±1.1)10 ⁻¹⁴	1.4±0.2
⁶³ Cu	0.8	12.0	(4.3±0.9)10 ⁻¹³	3.5±0.3
⁵² Cr	1.8	12.7	(1.3±0.3)10 ⁻¹³	2.1±0.2
⁸⁶ Kr	9.0	16.4	(2.0±0.3)10 ⁻¹³	2.5±0.2
¹²⁹ Xe	0.4	19.6	(5.0±1.0)10 ⁻¹³	4.0±1.3
⁸⁶ Kr	3.4	20.4	(3.7±0.7)10 ⁻¹³	3.4±0.4
¹²⁸ Te	1.3	25.3	(8.1±1.4)10 ⁻¹³	5.1±0.5
¹²⁸ Te	2.2	29.5	(8.1±1.4)10 ⁻¹³	5.1±0.5
¹⁸¹ Ta	1.2	30.0	(1.0±0.2)10 ⁻¹²	5.7±0.6
²³⁸ U	0.8	31.4	(9.5±1.7)10 ⁻¹³	5.5±0.5
²⁰⁸ Pb	1.2	34.0	(1.2±0.3)10 ⁻¹²	6.2±0.8
¹⁸¹ Ta	2.0	36.5	(1.2±0.3)10 ⁻¹²	6.2±0.8
²⁰⁸ Pb	4.0	47.5	(1.1±0.3)10 ⁻¹²	5.9±0.9
²³⁸ U	2.8	48.5	(1.5±0.4)10 ⁻¹²	6.9±1.0
²⁰⁸ Pb	4.5	49	(1.4±0.4)10 ⁻¹²	6.6±1.0

Tableau III-1 : Résultats d'irradiations effectuées sur le $Gd_3Ga_5O_{12}$.

1-2 : Application du modèle de la pointe thermique inélastique.

Dans ce modèle, l'énergie perdue par la relaxation de l'ion lourd est supposée répartie entre les électrons par l'interaction électron-électron en un temps de l'ordre de 10^{-15} s, puis transférée aux atomes de la cible via le couplage électron-phonon entre 10^{-11} et 10^{-13} s. Le dépôt d'énergie est tellement important qu'une région cylindrique, le long du parcours de l'ion incident peut fondre. Cette fusion étant suivie d'une trempe ultra-rapide, une configuration de type liquide (amorphe) peut être gelée. L'élévation de la température va dépendre des coefficients de diffusion de l'énergie sur les électrons et du temps d'interaction électrons phonons. Plus la valeur de ces paramètres est grande, plus l'énergie sera dissipée dans un volume étendu, limitant ainsi l'élévation de température. Le temps de relaxation de l'interaction électrons-phonons étant petit, l'énergie des électrons excités est supposée être transmise rapidement au réseau cristallin, provoquant un dégagement de chaleur. En raison du petit volume du cylindre, le taux de refroidissement peut atteindre 10^{14} °K s⁻¹, la matière fondue peut donc se refroidir en 10^{-11} s et devenir solide de nouveau.

Nous avons appliqué le modèle de la pointe thermique pour décrire qualitativement le rayon de trace amorphe induit dans le grenat de gadolinium $Gd_3Ga_5O_{12}$ par des ions lourds rapides. Le calcul a été étendu à d'autres matériaux amorphisables : Supraconducteur ($YBa_2Cu_3O_{7-d}$), isolant ($LiNbO_3$) et semi-conducteur (GeS). Dans le système d'équations différentielles couplées [Rel. I-22] et [Rel. I-23], l'énergie initiale spatiale est donnée par la distribution de Waligorski et collaborateurs [**Wali 86**], et dépend de l'énergie du faisceau.

Dans ce calcul, on suppose que :

$$B(r,t) = CD(r)a e^{-ar} \quad [\text{Rel. III-1}]$$

Tel que $a = 1/t$, t est le temps de dépôt d'énergie, supposé égal à 10^{-15} s [**Toul 96**], temps nécessaire pour la relaxation des électrons δ [**Gerv 93**], et la constante C est choisie de telle sorte que :

$$\int_{t=0}^{\infty} \int_{r=0}^{r=r_m} B(r,t) 2\pi r dr dt = \frac{dE}{dx} \quad [\text{Rel. III-2}]$$

r_m représente le parcours maximum des électrons projeté perpendiculairement sur la trajectoire de l'ion projectile [**Gerv 93**]. La variation de t par un facteur de 5 n'influe pas les résultats [**Toul 96**]. Les recombinaisons radiatives électron-trou sont négligeables [**Toul 98**].

Dans le cas des isolants, les paramètres C_e , K_e et g ne sont pas connus. En s'appuyant sur les hypothèses de Baranov et collaborateurs [Bara 88] : Le comportement des électrons chauds de la bande de conduction d'un isolant est le même que dans un métal, dans ce cas la diffusivité électronique D_e des électrons excités est constante et égale à $2 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ et $C_e \sim I \text{ J cm}^{-3}\text{K}^{-1}$. La conductivité thermique des électrons K_e est déduite à partir du produit de la diffusivité thermique par la chaleur spécifique ($K_e = D_e C_e$). La constante de couplage électron-phonon g est reliée, au temps moyen d'interaction électron-phonon t_a par la relation $t_a = C_e/g$ et à l la longueur moyenne de diffusion d'énergie déposée, par la relation $l^2 = D_e t_a$. Comme g est inconnu, il est supposé indépendant de la température et $l^2 = 2/g$. La longueur moyenne de diffusion de l'énergie l est l'unique paramètre libre du modèle dans ce calcul, qui est directement lié au couplage électron-phonon. La valeur de l est obtenue en ajustant les rayons de traces calculés aux valeurs expérimentales.

2-a : application du modèle pour le $Gd_3Ga_5O_{12}$.

La solution numérique des deux équations couplées a été obtenue, en tenant compte de la dépendance de la température des paramètres thermodynamiques du réseau ainsi que du changement de phase solide-liquide. Les paramètres thermodynamiques macroscopiques de $Gd_3Ga_5O_{12}$ sont donnés dans le Tableau III-2.

Matériau	$Gd_3Ga_5O_{12}$	$YBa_2Cu_3O_{7-d}$	$LiNbO_3$	GeS	
Conductivité thermique (Watt/K cm)	0.03	0.04	0.05	0.02	
Chaleur spécifique (J/g K)	0.55	0.43	0.72	0.42	
Température de fusion (K)	2024	1293	1450	903	
Chaleur latente de fusion (J/g)	456	380			
Température d'évaporation (K)		2200			
Chaleur latente d'évaporation (J/g)		4000			
Masse Volumique (g/cm^3)	Solide	7.08	6.7	4.63	6.2
	Liquide	6.8	6.5	4.4	6.5

Tableau III-2: Paramètres thermodynamiques de différents matériaux.

Pour chaque valeur expérimentale du rayon de trace, c'est-à-dire pour une énergie et un $(dE/dx)_e$ donnés, une valeur de I est obtenue en ajustant le rayon du cylindre fondu au rayon déterminé expérimentalement. Une valeur moyenne de $I = 4.6 \pm 0.3$ nm a été déterminée. La figure III-2 montre l'évolution du rayon de trace en fonction du pouvoir d'arrêt électronique $(dE/dx)_e$ pour une valeur de $I = 4.6$ nm et deux énergies (~ 1 MeV/u et ~ 6 MeV/u). Ceci montre bien que les valeurs évaluées du rayon du cylindre fondu suivent bien l'évolution de R_e .

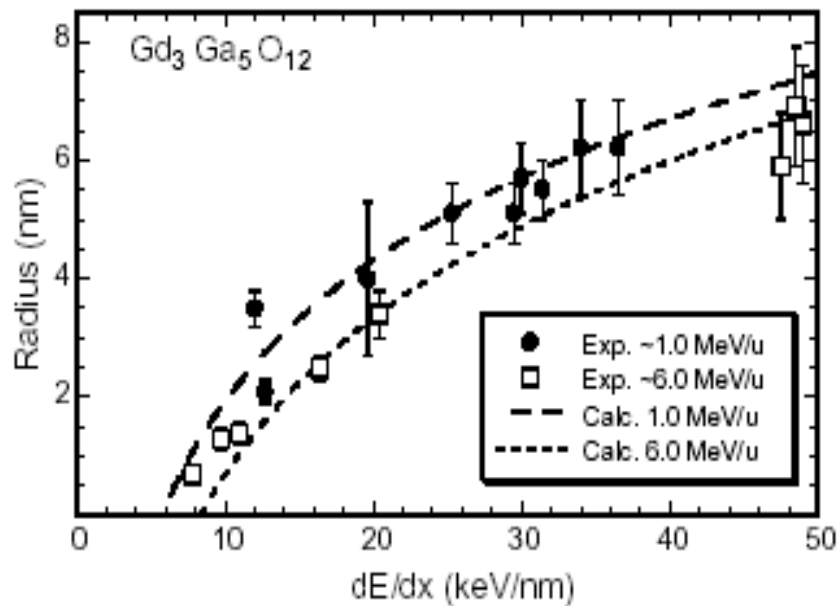


Figure III-2: Le rayon de trace effectif en fonction du $(dE/dx)_e$ pour le GGG.

2-b : Extension du modèle à d'autres matériaux : évolution de la constante du couplage électron-phonon.

L'application du modèle à certains matériaux s'avère difficile en raison de l'indisponibilité de leurs paramètres thermodynamiques contrairement à certains matériaux déjà étudiés [Toul 96, Meft 97], comme par exemple le supraconducteur $YBa_2Cu_3O_{7-d}$ à température critique T_c élevée, dont les paramètres thermodynamiques sont connus [Tab. III-2] et le $LiNbO_3$ pour ses propriétés optiques [Bent 04]. Prenant en compte les rayons de la trace latente observée par la microscopie électronique dans le domaine d'énergie compris entre 2 et 15 MeV/uma, l'application du modèle de la pointe thermique pour le $(YBa_2Cu_3O_{7-d})$ qui est considéré comme un cas extrême des oxydes permet d'extraire une valeur de I égale à 12.8 ± 1.5 nm. La figure III-3, montre les variations du rayon effectif R_e en fonction du $(dE/dx)_e$ pour ce matériau, les courbes en pointillés donnent

l'évolution des rayons calculés pour différentes conditions d'irradiations. Malgré, l'approximation grossière dans ce calcul, développé uniquement pour les isolants, nous avons déduit un facteur de couplage électron-phonon g de l'ordre de $(1.2 \pm 0.2) \cdot 10^{12} \text{ WK}^{-1} \text{ cm}^{-3}$.

Le fit des résultats expérimentaux avec une valeur de $g = (1.5 \pm 0.3) \cdot 10^{12} \text{ WK}^{-1} \text{ cm}^{-3}$ par le modèle de la pointe thermique inélastique développé pour les métaux, [Wang 94, Dufo 93] permet également d'obtenir des résultats en accord avec les précédents. Cependant, récemment dans le cadre du modèle de la pointe thermique inélastique, Goncharov et al. [Gonc 01], ont déduit à partir des données expérimentales et en affinant l'énergie initiale déposée, une valeur de couplage g égale à $(2.4 \pm 0.9) \cdot 10^{12} \text{ WK}^{-1} \text{ cm}^{-3}$. L'accord relatif entre l'ensemble de ces calculs, permet la détermination de la valeur de l pour ce matériau supraconducteur.

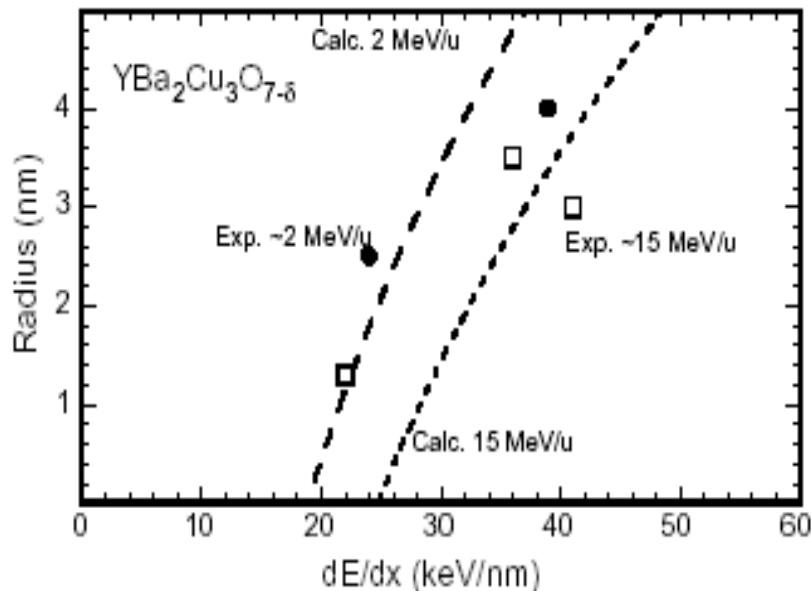


Figure III-3: Rayon effectif de la trace en fonction du $(dE/dx)_e$ pour le $YBa_2Cu_3O_{7-d}$ ($\lambda = 12.8 \text{ nm}$). Les courbes en pointillés donnent l'évolution des rayons calculés pour différentes conditions d'irradiations.

Le même calcul a été effectué pour $LiNbO_3$. Une valeur de l de $4.3 \pm 0.3 \text{ nm}$ a été extraite en adaptant seulement le rayon de trace résultant de l'irradiations effectuée avec l'énergie du faisceau autour de 10 MeV/u , (Fig. III-4) [Canu 96]. Considérant tous ces paramètres, nous avons calculé l'évolution du rayon de trace observé après une irradiation par un faisceau d'agrégat à basse vitesse (Fig. III-4) [Bona 98, Canu 97]. Cependant, le bon accord entre ce calcul par le modèle de la pointe thermique avec seulement un seul paramètre libre et les données expérimentales des irradiations avec des faisceaux de haute et de faible énergies, montrent l'importance d'employer explicitement la distribution d'énergie initiale sur les électrons en fonction de l'énergie du faisceau

[Meft 94, Toul 96] au lieu d'appliquer un facteur sur l'énergie déposée [Szen 95]. De plus, l'importance de ces calculs peut être exprimée d'une autre façon : Par exemple, pour un pouvoir d'arrêt de 30 keV / nm, allant du régime de faibles vitesses (~ 0.1 MeV/u) jusqu'au régime de haute vitesse (~ 10 MeV/u), le rayon de trace (Fig. III-5) diminue uniquement par un facteur de l'ordre de 1.5, tandis que, la densité initiale d'énergie déposée sur les électrons diminue par un facteur 2. Par conséquent, la grande différence de la densité d'énergie déposée par la diffusion sur les électrons, dont la diffusion dans le réseau a été préalablement quantifiée par l'interaction électron-phonon. L'effet de vitesse [Meft 93] et son extrapolation vers les faibles vitesses [Toul 04] montre que la création d'endommagement par l'excitation électronique peut apparaître avec des faisceaux de faible énergie comme observée par Bentini et al. [Bent 04].

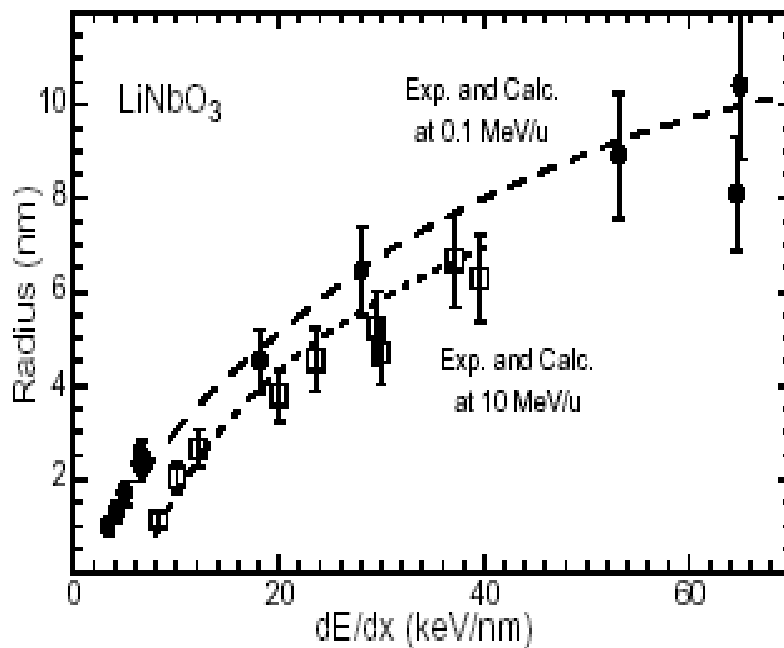


Figure III-4 : Rayon effectif de la trace en fonction du $(dE/dx)_e$ pour le $LiNbO_3$. ($I = 4.3$ nm, $L_F = 700$ J/g).

Le modèle a été également appliqué pour le GeS dont l'énergie du gap est de 1.7eVet dont de nombreux rayons de traces ont été mesurés expérimentalement [Vett 98] à une énergie spécifique de 11 MeV/u. L'énergie nécessaire pour la fusion du matériau n'est pas déterminée car sa chaleur latente de fusion (L_F) n'est pas disponible Comme pour le cas du grenat magnétique ($Y_3Fe_5O_{12}$) [Toul 98], la longueur moyenne de diffusion de l'énergie, I et la chaleur latente de fusion sont considérés comme deux paramètres libres, le meilleur fit est donné sur la figure III-5, avec $I = 7 \pm 1$ nm et $L_F = 800 \pm 300$ J/g. D'ailleurs les différents résultats, présentés dans la figure III-5 montre le

rôle de la chaleur latente de fusion dans la détermination l'unique paire des paramètres I et L_F . Il a été proposé précédemment une telle interprétation pour $Y_3Fe_5O_{12}$, puisque le meilleur ajustement des rayons de traces par le modèle de la pointe thermique inélastique est obtenu seulement quand la chaleur latente de fusion [Toul 98] est prise en compte [Meft 97].

La longueur moyenne de diffusion I pour les différents matériaux, et les énergies de gap correspondantes sont présentées dans le Tableau III-3. Il est clair que I diminue rapidement dans le cas de faibles valeurs de l'énergie de gap, et une diminution lente dans le cas des hautes valeurs. Cette évolution apparaît en accord avec les prédictions de Haglung et Kelly [Hagl 93], qui ont suggéré que tous les semi-conducteurs sont relativement des bons matériaux résistants contre l'excitation électronique élevée.

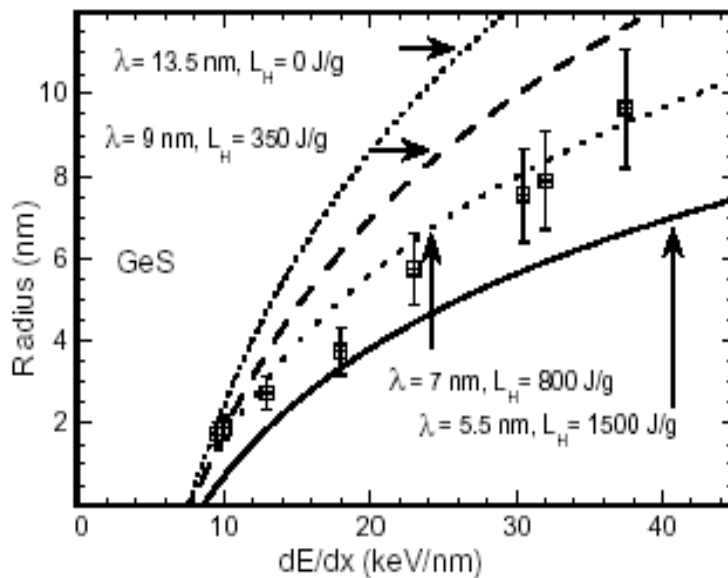


Figure III-5 : Rayon effectif de la trace en fonction du $(dE/dx)_e$ pour le GeS (Différents paires de I et L_F pour une énergie de faisceau = 11 MeV/u).

Selon les constatations faites dans la référence [Toul 04], nous avons calculé l'évolution de la valeur seuil du pouvoir d'arrêt électronique de création de défauts en fonction de l'énergie du projectile pour différents matériaux (Fig. III-6). Le seuil expérimental déduit dans ce travail pour le $Gd_3Ga_5O_{12}$ et les résultats des travaux publiés précédemment pour le $YBa_2Cu_3O_{7-d}$ [Toul 94, Civa 91 et Marw 93], et $LiNbO_3$ [Bona 98, Canu 97], sont reportés sur la figure III-6.

Material	E_g (eV)	l (nm)	Reference
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	0.0	12.8 ± 1.5	Présent travail, déduit du modèle i-TS
$\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$	1.0	8.2 ± 1.3	[24]
GeS	1.7	7.0 ± 1.0	Présent travail, déduit du modèle i-TS
$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	2.8	5.0 ± 0.3	[32]
LiNbO_3	4.0	4.3 ± 0.3	Présent travail, déduit du modèle i-TS
$\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$	4.5	4.6 ± 0.3	Présent travail, déduit du modèle i-TS
$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$	6.3	4.6 ± 0.3	[12]
SiO_2	12.0	4.0 ± 0.3	[24]

Tableau III-3: L'énergie de gap, les longueurs moyennes de diffusion pour divers matériaux.

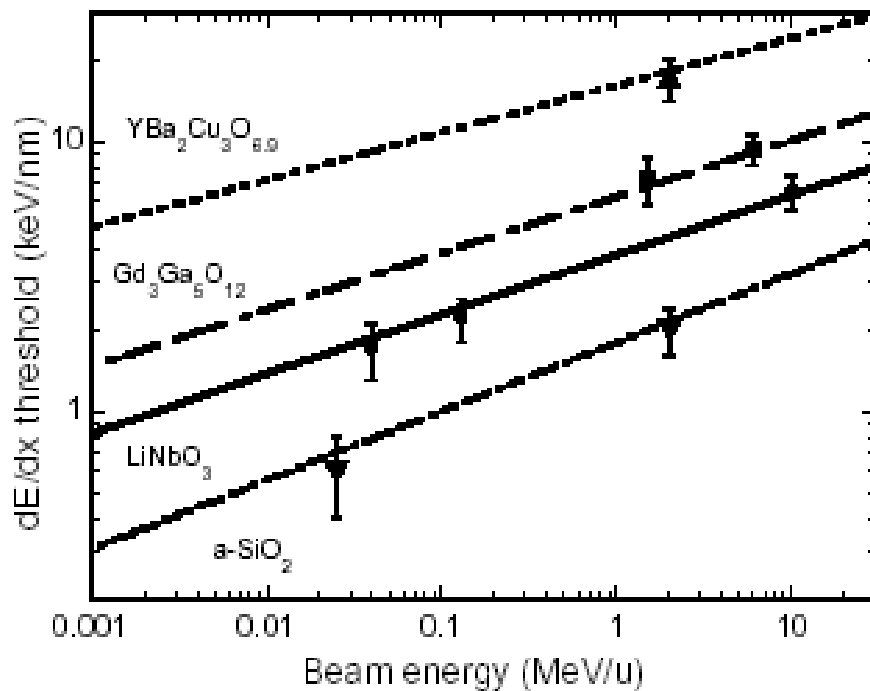


Figure III-6: L'évolution du seuil de création d'endommagement en fonction de l'énergie du faisceau pour divers matériaux.

Très récemment, Bentini et al. [**Bent 04**], ont montré que le seuil du pouvoir d'arrêt pour la création de défauts dans le LiNbO_3 est de 2.2 keV/nm pour un faisceau de *Fluor* d'énergie de 0.13

MeV/uma (c'est-à-dire une énergie totale de 2.5 MeV). Cette valeur du seuil correspond exactement à nos prédictions (fig. III-6). Ceci conforte l'extrapolation du modèle de la pointe thermique inélastique vers des faibles énergies [Toul 04], dans lequel la densité d'énergie initiale déposée sur les électrons, est faible. Une telle prédiction ne peut être obtenue, en utilisant seulement un développement analytique pur du modèle de la pointe thermique [Szen 98].

Nous avons tracé (Fig. III-7) l'évolution du pouvoir d'arrêt de xénon et l'évolution du seuil de création de dommage dans le $LiNbO_3$ en fonction de l'énergie du faisceau. L'endommagement par l'excitation électronique a lieu pour le Xe à faible énergie de 0.01 MeV/uma (soit une énergie totale de 1.3 MeV) où le pouvoir d'arrêt nucléaire est beaucoup plus important que le pouvoir d'arrêt électronique

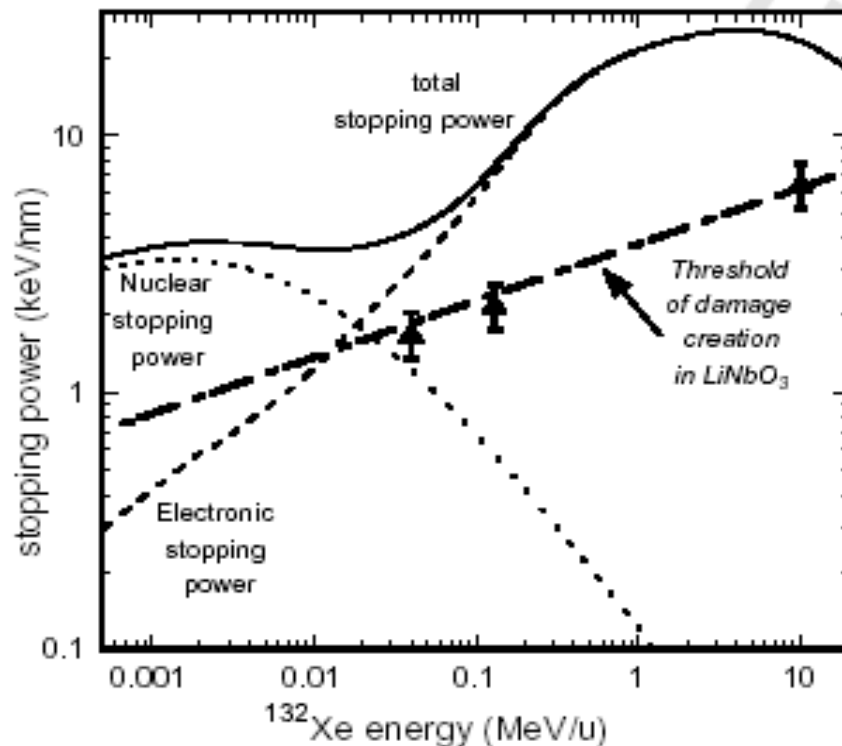


Figure III-7 : Evolution du seuil de création de défauts en fonction de l'énergie du faisceau incident Xe dans le $LiNbO_3$ et comparaison avec les pouvoirs d'arrêts nucléaire et électronique.

Une valeur de λ égale à 3 nm a été extraite [Toul 00, Dufo 99] pour un autre matériau important pour les dispositifs électroniques, le quartz $\alpha-SiO_2$. Nous avons calculé et tracé les variations du seuil de création d'endommagement dans ce matériau (Fig. III-8). Deux seuils déterminés dans des conditions expérimentales spécifiques [Beny 92, Van 01] sont en accord avec

les résultats de la simulation. L'évolution du seuil est comparée au pouvoir d'arrêt du Xe dans le $a-SiO_2$ (fig. III-8). A partir de cette figure, plusieurs observations et questions s'imposent.

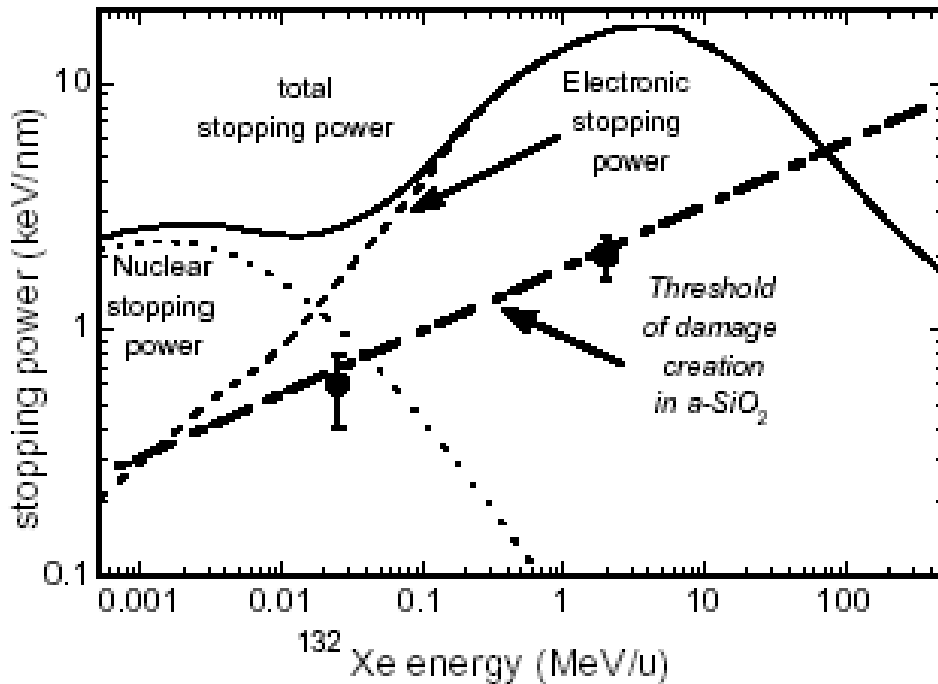


Figure III-8: L'évolution du seuil de création d'endommagement en fonction de l'énergie du faisceau incident du Xe sur $a-SiO_2$, et de le comparé avec le pouvoir d'arrêt.

Premièrement, l'endommagement électronique apparaît avec le faisceau de Xe à une énergie totale très basse (~ 0.13 MeV), tout à fait en accord avec le fait que ce seuil étant difficile à extrapoler à **partir l'apparition des colloïdes** suite à l'irradiation du $a-SiO_2$ par des ions Xénon [Van 03]. Deuxièmement, la déformation de ces colloïdes apparaît suivant l'évolution du pouvoir d'arrêt électronique, bien que le pouvoir d'arrêt nucléaire soit à peu près d'un ordre de grandeur plus grand. Ainsi, une question en relation avec l'extrapolation du modèle de la pointe thermique inélastique vers les faibles énergies est posée également pour $a-SiO_2$ quartz [Toul 01]: pourquoi une accumulation de l'effet des deux processus des pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire n'a pas été observée?

En résumé, la détermination de la trace amorphe a été faite par la technique de rétrodiffusion de Rutherford en canalisation. La section efficace d'amorphisation A est déduite de la loi de Poisson, et par conséquent les rayons effectifs de traces correspondantes sont déterminés. Le seuil du pouvoir d'arrêt électronique d'amorphisation a été déterminé pour les faibles et les hautes énergies. Le modèle de la pointe thermique inélastique, est utilisé pour calculer les rayons de traces

en fonction de $(dE/dx)_e$. Utilisant λ la longueur moyenne de diffusion, comme unique paramètre libre obtenu en ajustant les rayons de traces calculées aux valeurs expérimentales, la combinaison des différents résultats pour les matériaux étudiés combinés à d'autres publiés auparavant, montre que la longueur moyenne de diffusion diminue lorsque l'énergie de la bande interdite augmente.

III-2 : Emission d'ion secondaire.

Dans ce paragraphe, nous allons présenter d'abord les résultats de simulation par *SRIM*, puis les méthodes d'analyses et les résultats des expériences de l'émission d'ion secondaire sous forme d'agrégats.

2-1 : Simulation par SRIM.

1-a : La perte d'énergie.

Il existe aujourd'hui plusieurs codes de calcul de type Monte Carlo dédiés à la simulation du transport des ions dans la matière. Le programme *SRIM* version 2003 [Zieg 85] permet de simuler la trajectoire d'un ion dans un solide, les déplacements atomiques résultant de son ralentissement, son parcours, sa perte d'énergie et ainsi les atomes de recul. Les estimations obtenues par *SRIM* sont usuellement employées comme référence de comparaison pour les résultats expérimentaux.

Nous avons effectué des calculs des pouvoirs d'arrêt des différentes cibles pour chaque ion projectile à l'aide du programme *SRIM*. Les résultats de calculs sont présentés dans les tableaux suivants [Tab. III-4] et [Tab. III-5], pour les faisceaux de *LIMBE* et la *SME* respectivement.

Ø Avec les faisceaux de *LIMBE* :

Cible	Projectiles	Energie potentielle	Energie Cinétique	$(dE/dx)_n$ (eV /Å)	$(dE/dx)_e$ (eV /Å)
<i>UO₂</i>	<i>Ne⁸⁺</i>	0.9 keV	81 keV	21.51	27.14
	<i>Ar⁸⁺</i>	0.6 keV		70.58	34.23
	<i>Xe²³⁺</i>	6.5 keV		330.4	28.52

Tableau III-4 : Résultats de calcul par *SRIM* pour les expériences effectuées sur *LIMBE* avec les faisceaux de la *SME* :

Cibles	Projectiles	Energie Cinétique	$(dE/dx)_e$ (eV /Å)	$(dE/dx)_n$ (eV /Å)
<i>LiF</i>	<i>S</i> ¹⁵⁺	11.4 MeV / u	61	0.029
	<i>Ca</i> ¹⁷⁺	9.1 MeV / u	102	0.053
<i>UO₂</i>	<i>S</i> ¹⁵⁺	11.4 MeV / u	449	0.243
	<i>Ni</i> ²⁴⁺	10.9 MeV / u	1200	0.751
	<i>Ca</i> ¹⁷⁺	9.1 MeV / u	730	0.482

Tableau III-5 : Résultats de calcul par *SRIM* pour les expériences effectuées sur la *SME*.

On observe clairement que dans le cas des faisceaux de *LIMBE* « basse énergie », le dépôt d'énergie se fait principalement sur les noyaux de la cible, notamment pour les projectiles lourds. Au contraire avec les faisceaux de la *SME* « la haute énergie », le dépôt d'énergie se fait principalement sur les électrons de la cible, et l'énergie déposée sur les noyaux est négligeable.

1-b : Contribution des agrégats dans l'émission d'ions secondaires.

Il est possible de calculer le nombre d'atomes d'uranium éjecté par événement (par impact d'ion projectile) avec la simulation numérique par *SRIM* [Zieg 85], afin de déterminer la probabilité faible et d'avoir des méga-événements. Nous avons effectué des calculs pour le cas de *Xe* à 81 keV. La distribution (Fig. III-9) présente un maximum à 2 atomes d'uranium par projectile, par un lissage, une diminution rapide jusqu'à $n = 15$ d'atomes d'uranium éjectés. Dans 65 % des événements, la taille d'agrégats d'uranium émis est compris entre $n = 0$ et $n = 5$, ~ 20 % dont n varie entre 6 et 10 et a peu près 10 %. La taille d'agrégats varie entre 11 et 15 atomes d'uranium par événement. Une variation aléatoire des événements avec émission de plus de 35 atomes d'uranium a été observée. Nous pouvons calculer la contribution d'évènement avec n atomes d'uranium éjectés dans le rendement total de pulvérisation par la multiplication de la probabilité d'émission de n atomes d'*U* par projectile $P(n)$, par le nombre d'atome d'*U* éjecté, n . Le résultat correspond au « grand événement » avec $n > 15$ atomes éjectés, présente un pourcentage de ~15% du rendement total de pulvérisation. Notons que le calcul *SRIM*, ne tient pas compte des effets spécifiques liés à l'énergie potentielle de projectile, seules les cascades de collisions seront prises en considération. En outre, on ne peut pas calculer directement les distributions en taille d'agrégats $Y(n)$.

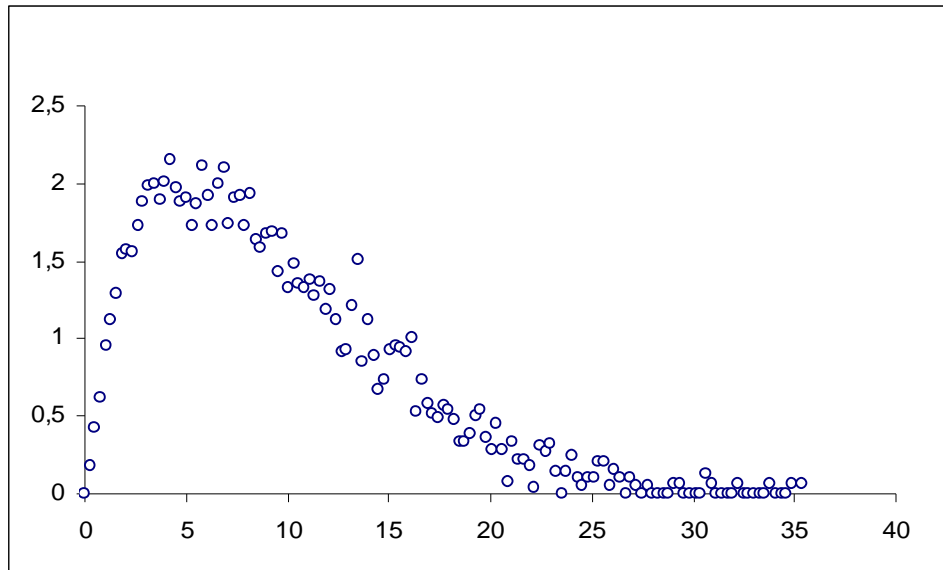


Figure III-9 : La contribution relative en %, des "agrégats" d'U de chaque taille en fonction du rendement total. Ici, le rendement total donné par le calcul SRIM est normalisé par rapport au rendement mesuré lors des expériences.

2-2 : Méthodes d'analyses.

Dans nos expériences, l'étude de l'émission d'ions secondaires est basée premièrement dans les expériences *TOF-SIMS* sur :

- Ø L'identification des masses des ions secondaires positifs émis sous formes d'agrégats et en conséquence leurs tailles n .

- Ø La mesure des rendements de l'émission ionique

- Ø et la détermination des valeurs de l'exposant d , facteur caractéristique du rendement de l'émission ionique en fonction de la taille d'agrégats, selon les modèles collectifs.

2-a : Identification des ions émis.

Le temps de vol est la différence de temps entre l'instant d'émission des ions de la surface de la cible et le moment d'arrivée sur le détecteur. Les ions secondaires sont accélérés soit par une tension positive d'extraction (V_T) appliquée sur la cible, dont la valeur est relativement faible devant la tension d'extraction des ions primaires, pour ne pas dévier le faisceau, soit par une tension positive pulsée (V_{TP}) relativement élevée, afin d'améliorer la résolution en masse des ions émis.

La superposition des mesures de différents temps de vol des ions émis conduit à un histogramme de temps de vol ou un spectre de masse par temps de vol. Un spectre typique de masse

par temps de vol obtenu auprès de *LIMBE*, avec un projectile de Xe^{23+} à 81 keV et une tension pulsée sur la cible de 1.35 keV, est représenté sur la figure III-10. Nous observons clairement des pics correspondant aux émissions d'agrégats $(UO_x)^+_n$ jusqu'à une taille de $n = 7$.

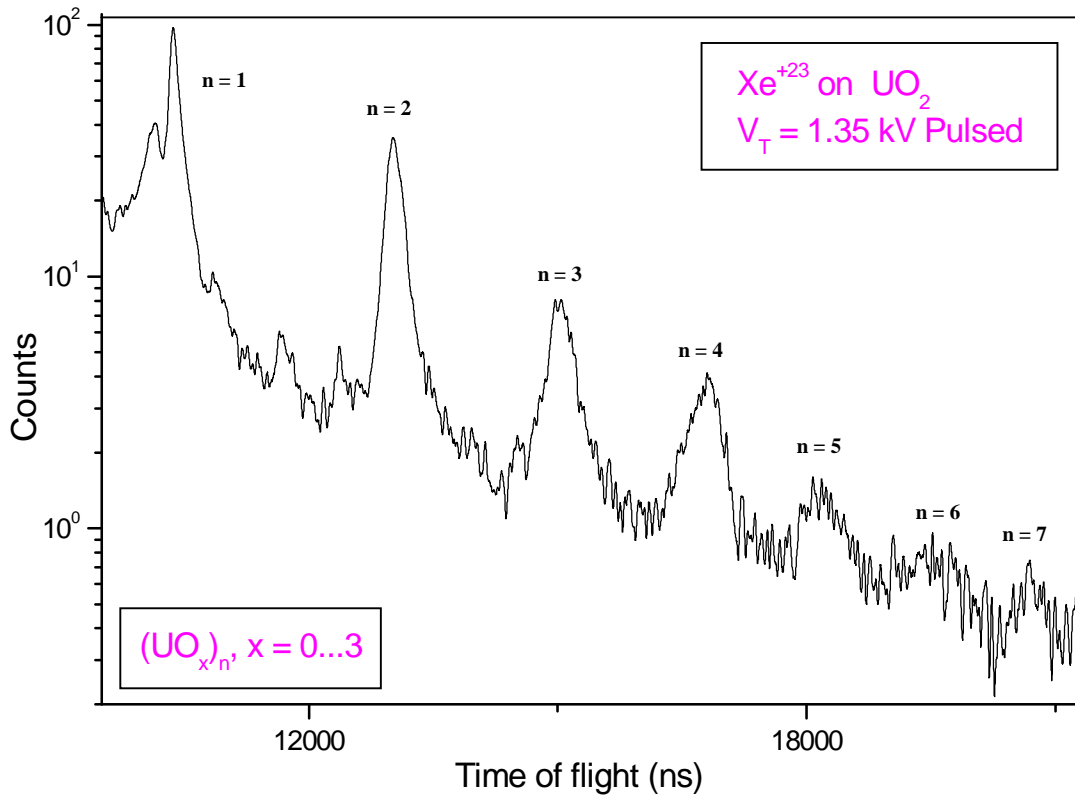


Figure III-10: Spectre de masse par temps de vol (Xe^{23+}/UO_2 , $V_T = 1.35$ kV).

Un ion secondaire de masse m désorbé de la surface plane du solide avec une charge q et une vitesse \vec{V} , parcourt l'espace d'extraction L_{ext} (~ 30 mm) pendant un temps T_{ext} et l'espace libre L_l pendant un temps T_l (~ 120 mm) (Fig. III-11). Le temps de vol total mesuré entre un start et un stop sera donc:

$$T_{vol} = T_{stop} - T_{start} = T_{ext} + T_l \quad [\text{Rel: III-3}]$$

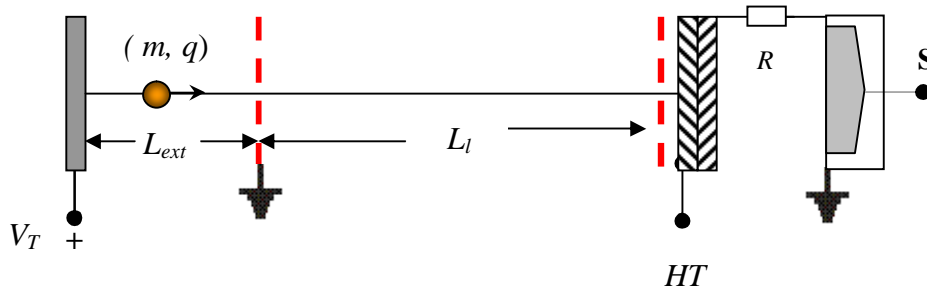


Figure III-11: Schéma du spectromètre de temps de vol pour déduire la relation temps-masse

Dans une première approximation; on suppose que l'émission d'ion se fait avec une vitesse initiale négligeable devant la vitesse acquise par accélération, et que l'émission est perpendiculaire à la surface de la cible. Dans la zone d'extraction, l'ion est soumis à un mouvement rectiligne uniformément accéléré. D'après le principe fondamental de la dynamique on en déduit le temps d'accélération:

$$T_{ext} = L_{ext} \sqrt{\frac{2}{U} \left(\frac{m}{q} \right)} \quad [\text{Rel: III-4}]$$

Où U est la tension d'extraction appliquée sur la cible.

L'ion parcourt la distance libre de champ L_l avec une vitesse constante V acquise en fin d'accélération (mouvement rectiligne uniforme), le temps de vol dans cette zone est donné par:

$$T_l = L_l \sqrt{\frac{1}{2U} \left(\frac{m}{q} \right)} \quad [\text{Rel: III-5}]$$

Le temps de vol total sera donc:

$$T_{vol} = T_{ext} + T_l = (2L_{ext} + T_l) \sqrt{\frac{m}{2qU}} \quad [\text{Rel: III-6}]$$

En réalité, les ions secondaires sont émis avec une vitesse initiale \vec{V}_0 correspondant à une énergie cinétique E_0 , et un angle d'émission α par rapport à la normale de la surface. La composante axiale de la vitesse a pour expression:

$$V_{ax} = V_0 \cos \alpha = \sqrt{\frac{2E_0}{m}} \cos \alpha \quad [\text{Rel: III-7}]$$

En tenant compte de cette vitesse initiale, l'expression de temps de vol prendra la forme [Rel: III-8]:

$$T_{vol} = \sqrt{\frac{2m}{qU}} \left[\left[\frac{(qU + E_0 \cos^2 a)^{1/2} - (E_0 \cos^2 a)^{1/2}}{qU} \right] L_{ext} + \frac{L_l \sqrt{qU}}{2(qU + E_0 \cos^2 a)^{1/2}} \right]$$

Pour une émission normale ($a = 0$), de la relation précédente, on obtient [Rel: III-9]:

$$T_{vol} = \frac{m L_{ext}}{qU} \left[\sqrt{\frac{2qU}{m}} \left(1 + \frac{mV_0^2}{2qU} \right)^{1/2} - V_0 \right] + L_l \left[\frac{2qU}{m} \left(1 + \frac{mV_0^2}{2qU} \right)^{1/2} \right]^{-1/2}$$

Généralement, l'énergie des ions secondaires est de quelques électronvolts. Elle est négligeable devant l'énergie cinétique acquise; par la tension d'extraction sur la cible ($mV_0^2 \ll 2qU$). D'après l'approximation ($(1+x)^n \cong 1+nx$, si $x \ll 1$), on obtient la relation temps de vol-masse suivante [Rel: III-10]:

$$T_{vol} = \sqrt{\left(\frac{m}{2qU}\right)^3} \left[L_{ext} - \frac{L_l}{2} \right] V_0^2 - \frac{m L_{ext}}{qU} V_0 - \sqrt{\frac{m}{qU}} \left[\sqrt{2} L_{ext} + \frac{L_l}{\sqrt{2}} \right]$$

La mesure de temps de vol nous permettra de remonter à la masse de l'ion et de la vitesse initiale la plus probable.

L'identification des ions émis est faite en déterminant la masse des ions à partir du spectre. En effet, le centroïde de chaque pic de temps de vol mesure le temps de vol de l'ion émis T_{mes} et tient compte du retard lié à la détection et à l'analyse de l'information par l'électronique T_{rtd} , nous pouvons écrire :

$$T_{mes} = T_{vol} + T_{rtd} \quad [\text{Rel : III-11}]$$

De la relation [Rel : III-6], on obtient :

$$T_{vol} = (2L_{ext} + L_l) \sqrt{\frac{m}{2qU}} + T_{rtd} \quad [\text{Rel : III-12}]$$

D'une manière générale, la relation temps de vol-masse s'écrit de la façon suivante :

$$T_{mes} = a\sqrt{\frac{m}{q}} + b \quad [\text{Rel : III-13}]$$

a et b sont des constantes à déterminer par étalonnage interne. L'étalonnage est réalisé à l'aide du pic photon présent dans la majorité des spectres et des pics correspondant à des masses légères toujours présentes sur le spectre et facilement reconnaissables comme le pic proton H^+ , le pic de H_2^+ et les pics correspondant aux hydrocarbures ($C_xH_y^+$) dus à la contamination des surfaces. A cause de la grande vitesse du photon, dans la calibration des spectres en masse on prend comme zéro le temps de vol correspond à ce dernier (Fig. III-12). La largeur du pic photon définit la distribution temporelle de notre faisceau.

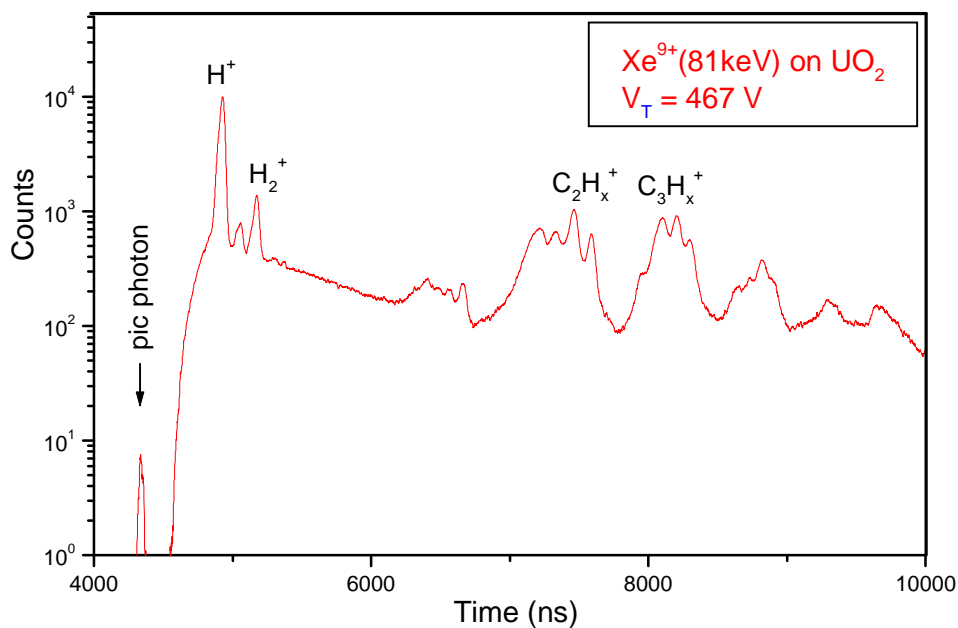


Figure III-12: Zone agrandie des pics photons et atomes légers.

La figure III-13 présente un spectre de temps de vol calibré en masse d'une cible de UO_2 bombardée par un faisceau de Xe^{9+}

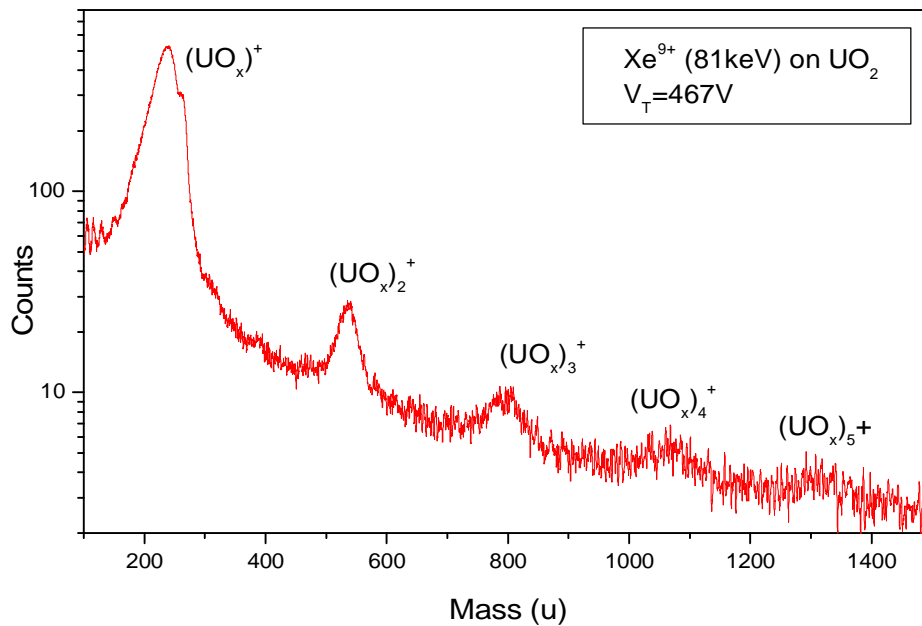


Figure III-13 : Spectre Calibré en masse ($\text{Xe}^{9+}/\text{UO}_2$, $V_T = 467 \text{ V}$).

2-b : Calcul des rendements ioniques relatifs.

Le paramètre le plus utilisé pour quantifier l'émission ionique lors d'une interaction ion-matière, est le rendement ionique de pulvérisation défini comme étant le nombre d'ions éjectés de la matière par le nombre de projectiles incidents. On peut déterminer le nombre de projectiles incidents à partir du nombre de paquets d'ions (starts) envoyés sur la cible, par contre le nombre d'ions secondaires détectés sur les galettes présente uniquement une fraction du nombre total des ions émis, à cause de l'efficacité de détection du *notre* spectromètre (*la géométrie du détecteur* : deux zones de vol, *la tension d'extraction sur la cible* : relativement faible et *l'efficacité des galettes* : la limitation d'appliquer une tension d'accélération très élevée et l'efficacité géométrique). En plus, le rendement de détection des galettes diminue lorsque la masse des ions secondaires augmente pour la même tension d'extraction et la même tension de post-accélération. Pour tenir compte des ions secondaires non détectés dans le calcul des rendements, il faut introduire un facteur correctif de normalisation (F_c) lié à la détection.

Pour cela, nous nous sommes référés à des données expérimentales bibliographiques dues à des conditions expérimentales semblables aux conditions de nos expériences [Gilm 00, Stau 02]. La figure suivante, est déduite à partir des données du papier de Gilmore et al. [Gilm 00].

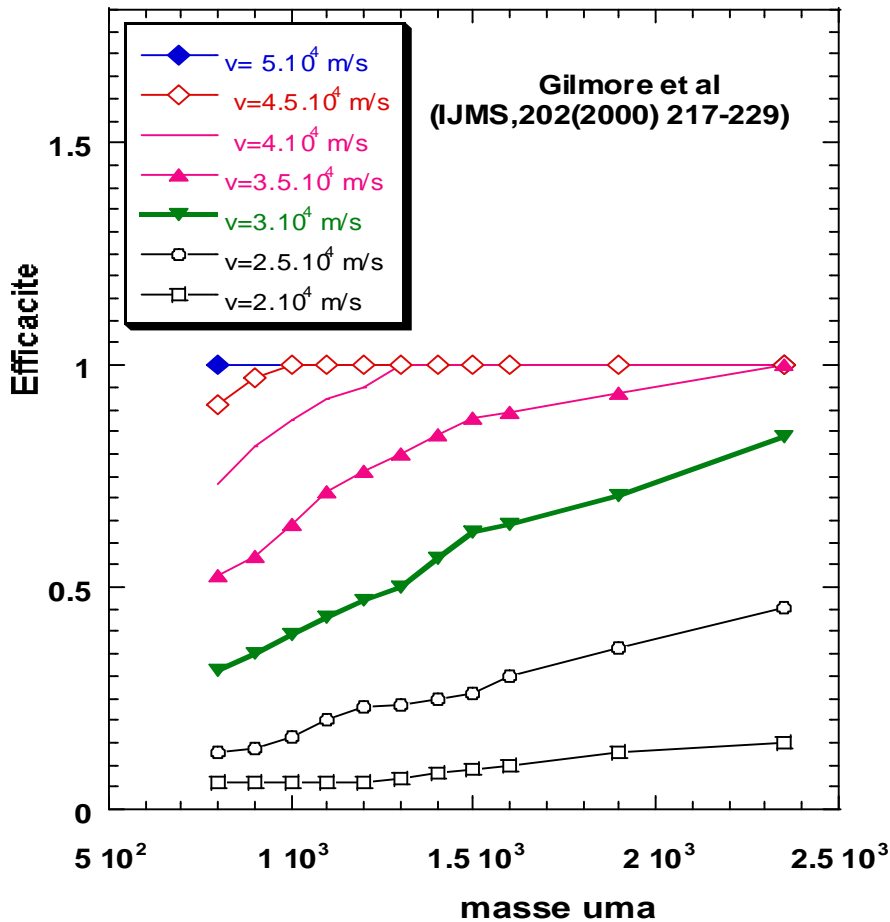


Figure III-14: Efficacité de détection en fonction de la masse, pour différentes valeurs de vitesses d'impact sur les galettes [Gilm 00].

Selon les masses détectées dans nos expériences et les vitesses correspondantes dues aux différentes polarisations de la cible et des galettes, et à partir des données précédentes (fig. III-14), nous introduisons un facteur correctif F_c [Rel : 14-III] dans le calcul des rendements. Le rendement ionique sera donc donné par la relation suivante.

$$Y = F_c \cdot (\text{surface du pic} / \text{nombre d'ions primaires}) \quad [\text{Rel : III-14}]$$

Suivant les polarisations utilisées (tension d'extraction sur la cible dans le cas du Xe^{23+} / UO_2 est de 1.35 kV, tension de post-accélération sur les galettes de 2.4 kV), on détermine pour ce cas, des vitesses comprises entre 5.2×10^4 et 1.96×10^4 m/s pour des masses correspondantes aux

molécules $(UO_x)_1$ et $(UO_x)_7$ respectivement. Les valeurs du facteur correctif F_c , varient entre 1 et 6.5 respectivement.

2-c : Résultats et discussions.

Les spectres, corrigés et non corrigés, sont montrés sur la figure III-15. La résolution en masse de notre spectromètre, ne permet pas de séparer la contribution individuelle de U , UO , UO_2 et UO_3 dans les pics des agrégats ioniques $(UO_x)_n$ pour $n > 1$.

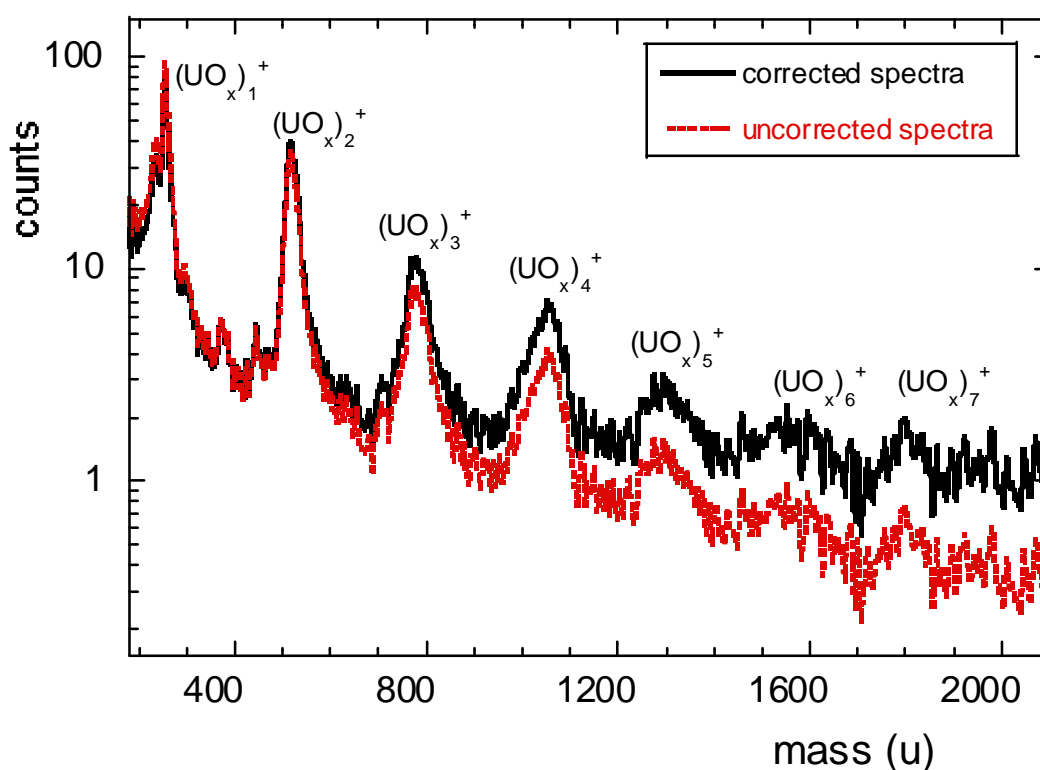


Figure III-15 : Spectres de masse par temps de vol corrigé et non corrigé (Xe^{23+}/UO_2 , $V_{TP} = 1.35$ kV, 60° par rapport à la normale).

Cependant, dans ce qui suit, nous allons discuter les rendements intégrés $Y(n, x=0\dots3)$. Les rendements présentés sur les figures (III-16, III-17) sont obtenus par intégration des surfaces des pics correspondants dans les spectres de masses.

c-1 : Effet de l'efficacité de détection sur les rendements.

La figure III-16 montre l'effet de correction de l'efficacité de détection sur la distribution du rendement ionique en fonction de la taille d'agrégats $Y(n)$.

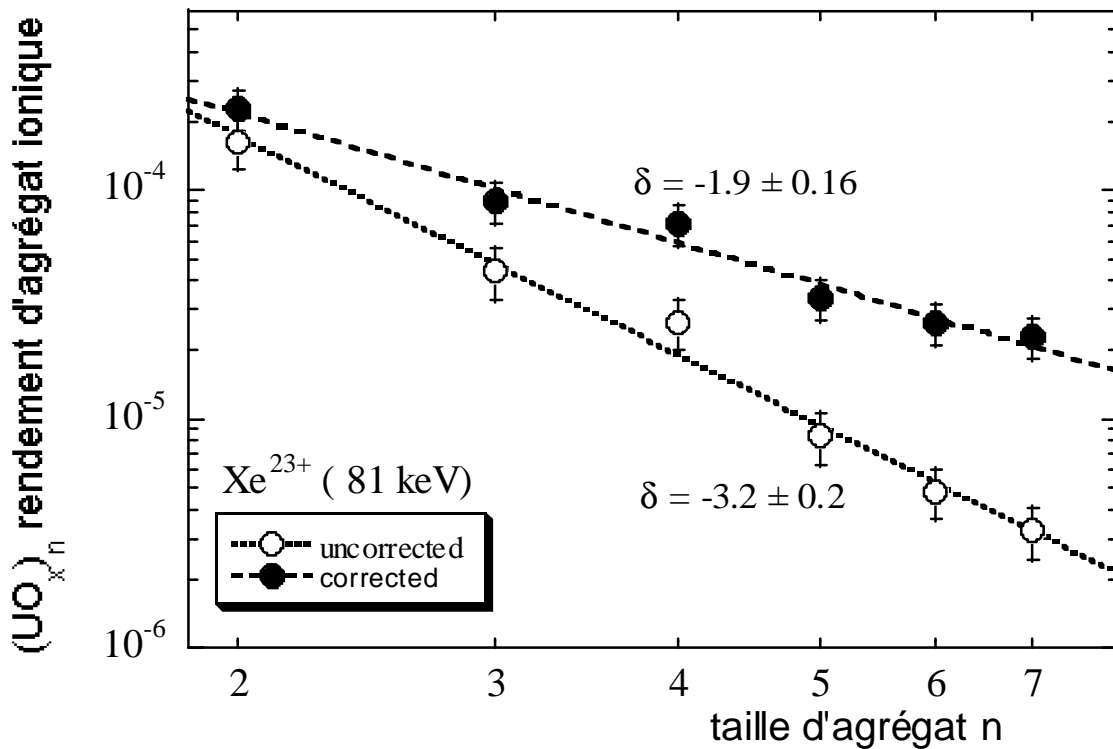


Figure III-16 : Distribution du rendement ionique corrigé et non corrigé en fonction de la taille d'agrégat (Xe^{23+}/UO_2 , $V_T = 1.35$ kV, 60° par rapport à la normale).

Les lignes en pointillé correspondant au fit des données par une loi en puissance, montrent bien que les rendements ioniques $Y(n)$, soient corrigés ou non, suivent bien une loi en puissance $Y(n) \sim n^d$ pour $n > 1$. Le rapport des rendements corrigés sur les rendements non corrigés est à peu près de 6.5 pour le cas le plus mauvais ($n = 7$). Et par conséquent, l'exposant d est sous estimé dans le cas de l'efficacité de détection non corrigée ($d = -3.2$). La valeur de d pour les données corrigées dans notre exemple de Xe^{23+} de 81 keV sur le UO_2 est de -1.9 . L'importance de la dépendance de taille d'agrégat avec l'efficacité de correction est parfaitement discutée par Staudt et Wucher [Stau 02]. En effet, nous pouvons comparer la figure III-16 avec la figure 11 de la référence [Stau 02], dans laquelle la valeur de d varie de $d = -3.9$ à $d = -2.1$ pour l'émission d'agrégats d'indium par bombardement avec des ions de Xe^+ d'énergie 15 keV.

c-2 : Distributions en tailles d'agrégats.

Les distributions en taille d'agrégats sont tirées des spectres de temps de vol. Il est très intéressant de comparer les résultats obtenus dans le régime du pouvoir d'arrêt nucléaire avec ceux obtenus dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique. La pulvérisation du dioxyde d'uranium a été étudiée au *GANIL* avec des ions multichargés à haute énergie de Kr^{32+} (11 MeV/u, $E_{cin} = 900$ MeV) dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique [*Schl 01*]. Les distributions des rendements ioniques des ions secondaires positifs et négatifs émis ; suivent en fonction de la taille d'agrégat (n) une loi en puissance ($Y \sim n^d$) avec un exposant $d = -2$ (Fig. III-17). Cette valeur prédite par le modèle de l'onde de choc [*Bite 87*] est basée sur le fait que l'énergie transférée aux molécules de la cible près de la surface par la propagation d'une pulse de pression ou une onde de choc, provoque l'émission des gros agrégats.

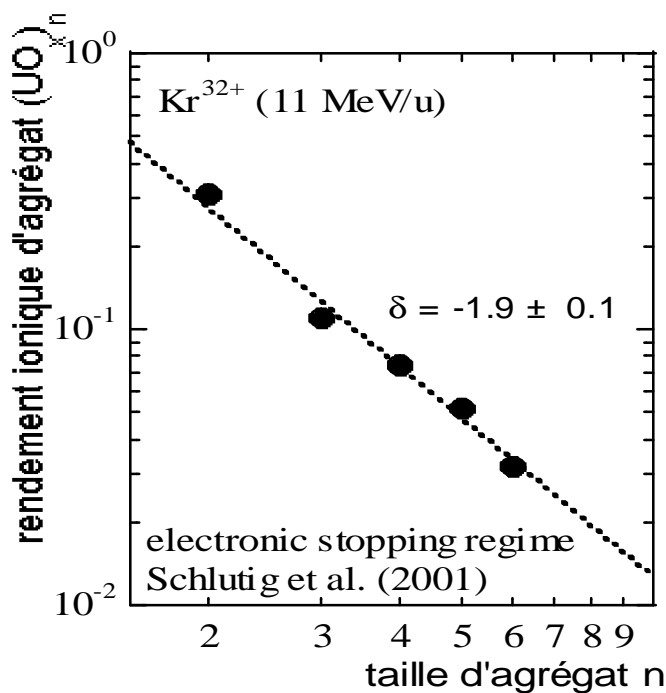


Figure. III-17: Rendement ionique des agrégats à haute énergie [*Schl 01*].

Notons également qu'une telle valeur de l'exposant d a été observée à une énergie moyenne (Fig. III-18) pour d'autres cibles et d'autres projectiles (Ne^+ , Ar^+ , Kr^+ , Au^+) et à une énergie cinétique comprise entre 400 keV et 500 keV [Rehn 01], où de gros agrégats métalliques de l'or ($n \geq 500$) sont éjectés.

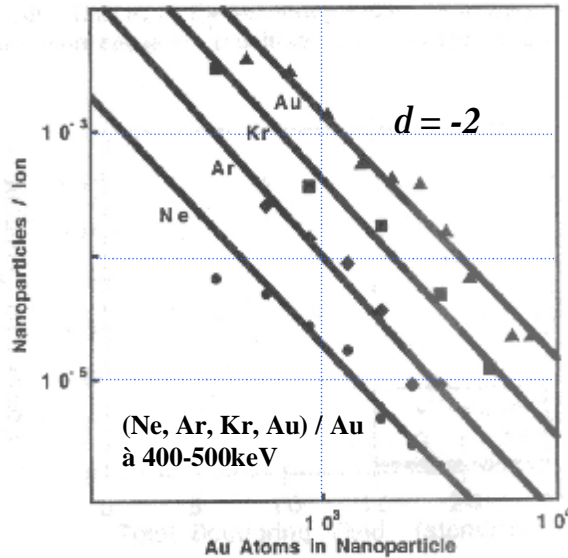


Figure. III-18:
Rendement ionique des agrégats
métalliques [Rehn 01].

Les résultats obtenus par Hamza et collaborateurs [Hamz 99], à basse énergie (83 keV) et avec un projectile très chargé (Th^{75+}), sont présentés sur la figure III-19. Les rendements ioniques dans ce régime où l'énergie potentielle du projectile devient prépondérante, suivent également une loi en puissance avec un exposant $d \sim -3$, valeur proche de celle prédite par les modèles collectifs, l'onde de choc ($d = -2$) [Bite 87] et le modèle hydrodynamique ($d = -7/3$) [Urba 88].

Nous pouvons aisément comparer ces résultats avec ceux que nous avons obtenus récemment avec des projectiles multichargés de Xe^{+q} ($q = 10$ et 23) (Fig. III-20) et avec des ions de Néon et d'Argon ($q = 8$) (Fig. III-20) à une énergie cinétique de 81 keV de même ordre de grandeur que dans le travail de Hamza et al [Hamz 99].

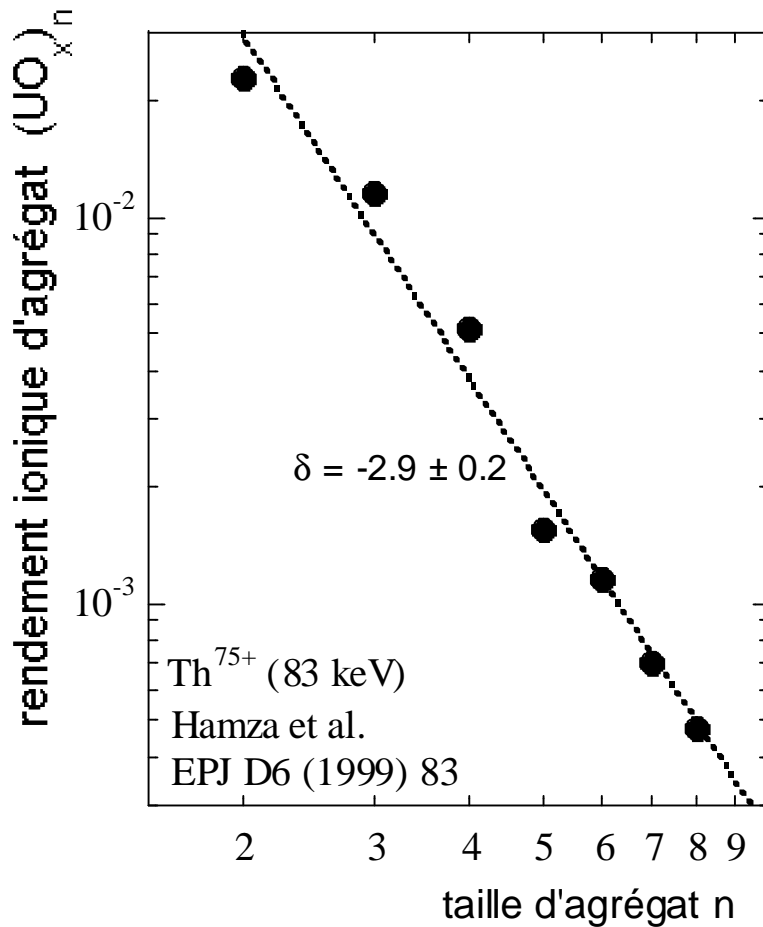


Figure III-19 : Rendement ionique des agrégats à basse énergie [*Hamz 99*].

On observe clairement que les données suivent bien également une loi en puissance ($Y \sim n^d$) dont les valeurs de l'exposant d sont comprises entre -3 et -1.5 pour $n > 1$, valeurs proches de celles prédites par les modèles collectifs, notamment le modèle hydrodynamique applicable pour la pulvérisation, soit par des projectiles mono ou multichargés. Dans ce modèle « d'équilibre », la surface subit une transition de phase liquide-gaz brutale. Si la transition de phase aura lieu proche du point critique, les fluctuations sont tellement violentes conduisant à l'émission d'agrégats.

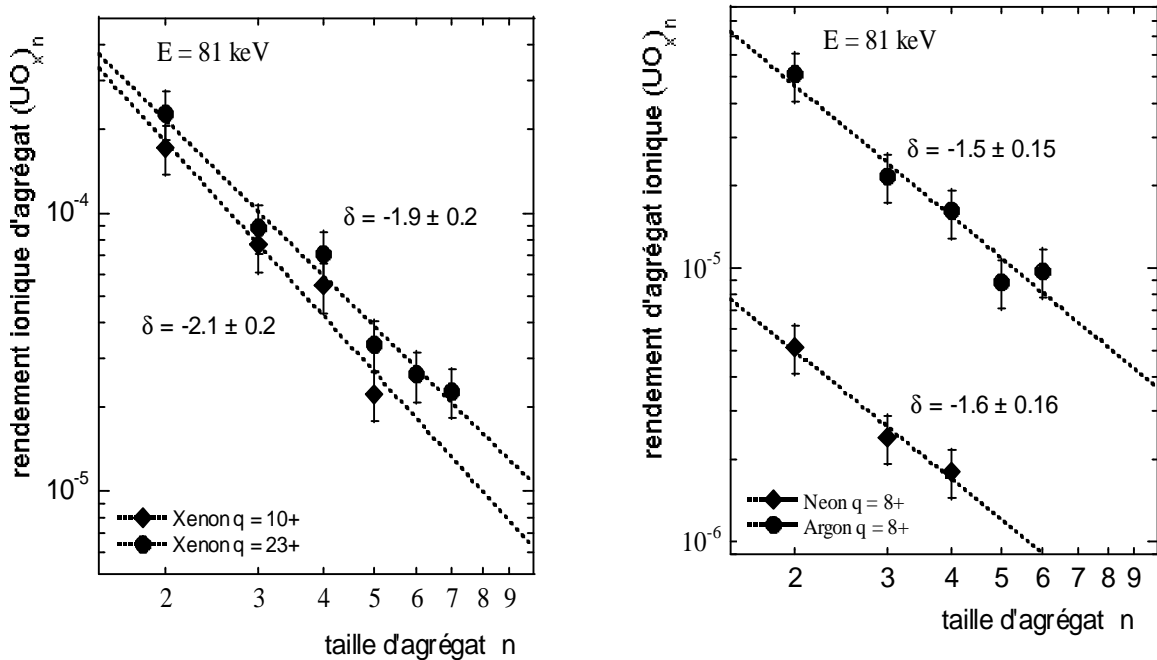


Figure III-20 : Rendement ionique des agrégats à basse énergie (Xe^{q+} , Ar^{+8} , Ne^{+8} / UO_2 , $q = 10, 23$).

Ces résultats en contradiction avec les prédictions des modèles statistiques [Wuch 96, Hamz 99, Rehn 01 et Stau 02], sont fondés sur une recombinaison statistique près de la surface après l'émission des particules individuelles. Ces modèles suggèrent une variation exponentielle des rendements ioniques en fonction de la taille d'agrégats $Y \sim \exp(-an)$.

En effet les modèles collectifs, comme le modèle du flux gazeux [Wuch 96], le modèle hydrodynamique [Urba 88] et le modèle de l'onde de choc [Beti 87], prédisent chacun une variation en puissance ($Y \sim n^d$) avec un exposant $d \leq -2$. Ces modèles collectifs sont uniquement applicables que dans le cas des taux de pulvérisation élevés (gros agrégats, $n \geq 100$) [Wuch 96, Hamz 99, Rehn 01 et Stau 02], où un grand nombre d'atomes est mis en mouvement par le dépôt d'énergie du projectile. Donc il est surprenant de trouver une distribution en puissance avec des valeurs élevées de l'exposant d dans ce cas de faible taux de pulvérisation (4 particules par ion incident) et de petits agrégats ($n \leq 7$) (Fig. III-20).

Il est aussi remarquable, que des distributions en tailles d'agrégats similaires (loi en puissance avec un exposant proche des valeurs prédites par les modèles collectifs) sont observées

dans deux différents régimes de vitesse (haute et basse) où les mécanismes physiques de pulvérisation sont différents.

Notons, que nous avons exclu les monomères ($n = 1$) dans les figures (Fig. III-20), et dans les discussions des exposants δ , car nous avons remarqué que les fits de la loi en puissance donnent une bonne corrélation significative uniquement pour $n \geq 2$. Cette intéressante anomalie est observée également dans les travaux de Hamza et al. [**Hamz 99**], dans le cas de bombardement de UO_2 avec des ions fortement chargés (Fig. III-19).

c-3 : Corrélation avec le rendement total de pulvérisation.

Hamza et al. [**Hamz 99**], ont étudié l'émission d'ions secondaires d'une cible de dioxyde d'uranium suite à une irradiation par des ions lents hautement chargés comme le (Th^{75+}) (Fig. III-19). Ils ont suggéré une corrélation entre la distribution en taille d'agrégat et le rendement total de pulvérisation et ont observé une augmentation de l'exposant de $d = -4$ à $d = -2.6$ lorsque le rendement total de pulvérisation varie de $Y_{tot} \sim 15$ à $Y_{tot} \sim 90$.

Nous avons également étudié le rendement total de pulvérisation avec des ions multichargés de xénon, toujours à énergie cinétique constante (81 keV) par la technique du collecteur [**Hara 03**]. Les rendements totaux de pulvérisation pour une incidence normale en fonction de l'énergie potentielle sont présentés sur la figure III-21. On observe une légère augmentation des rendements en fonction de l'énergie potentielle (la charge) du projectile alors que généralement les effets pour un rendement de pulvérisation de $Y_{tot} \sim 4.2$ sont liés au pouvoir d'arrêt nucléaire.

L'effet de l'état de charge, sur le rendement de la pulvérisation potentielle (due à l'énergie potentielle), ajoute approximativement un atome d'uranium par projectile pour une énergie potentielle de $E_{pot} \sim 9$ keV.

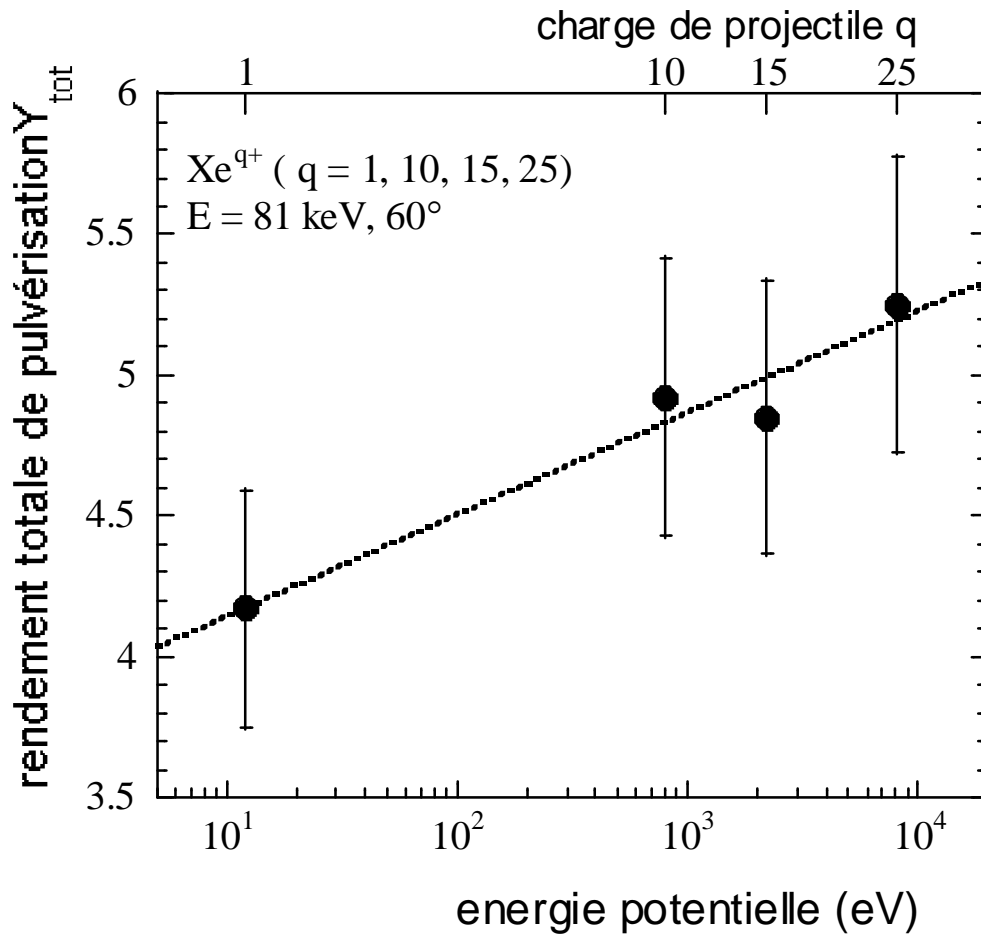


Figure III-21 : Variation du rendement total en fonction de l'énergie potentielle.

Si on présente les valeurs de l'exposant d en fonction de la charge de l'ion projectile (Fig. III-22), on n'observera pas une claire dépendance avec la charge. L'exposant d est presque constant, et prend des valeurs proches de celles prédites par les modèles collectifs. Par contre, on observe une dépendance de d avec la nature de projectile (Ne , Ar , Xe), c'est-à-dire avec la masse.

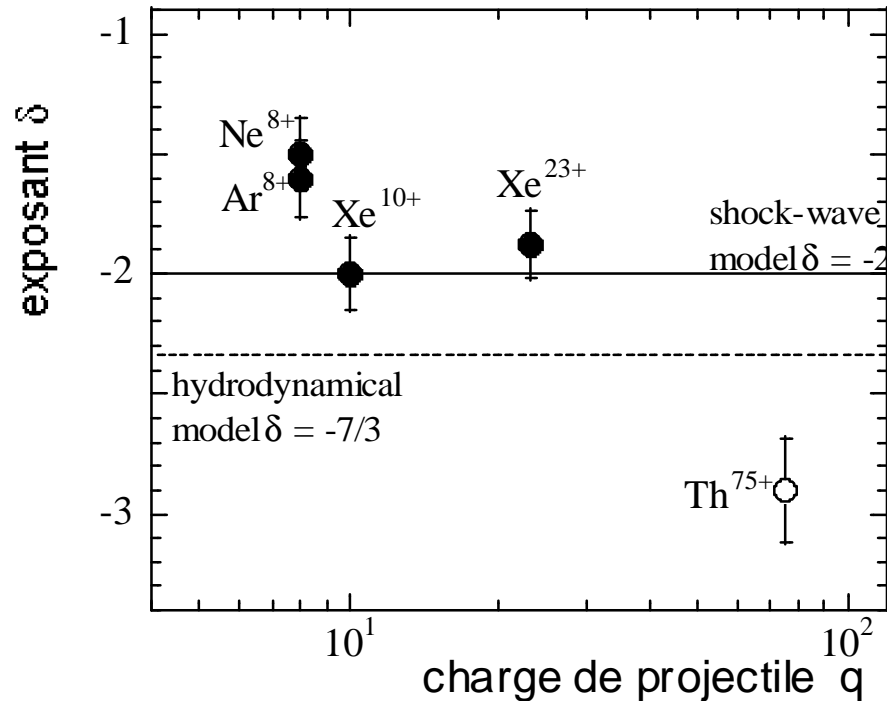


Figure III-22 : Variation de l'exposant en fonction de la charge de projectile.

La figure III-23, présente les variations de l'exposant avec le rendement total de pulvérisation. Notons, que pour le Néon et l'argon, les rendements sont estimés par un calcul du code *SRIM*, puis ajustés avec les données mesurées et calculées du Xénon. Nos résultats (Fig. III-23) sont surprenants et en contradiction avec ceux obtenus par Hamza et al. [*Hamz 99*] dans le cas du Th^{75+} à 83 keV. Les résultats de ces derniers n'ont pas été obtenus à une énergie cinétique et une masse constantes et peuvent conduire ainsi à des effets différents liés à des paramètres différents. Il est aussi possible que de tels effets spécifiques auront lieu avec des projectiles lourds fortement chargés (comme le Th^{75+}) pouvant être liés à la fragmentation des agrégats excités [*Betz 94*, *Wuch 96*, *Hamz 99* et [*Rehn 01*]]. La fragmentation des agrégats pendant le vol dans le spectromètre, peut conduire à une faible valeur de l'exposant d .

Il est concevable, que la densité élevée de l'énergie déposée, conduit à l'éjection des agrégats excités a durée de vie limitée.

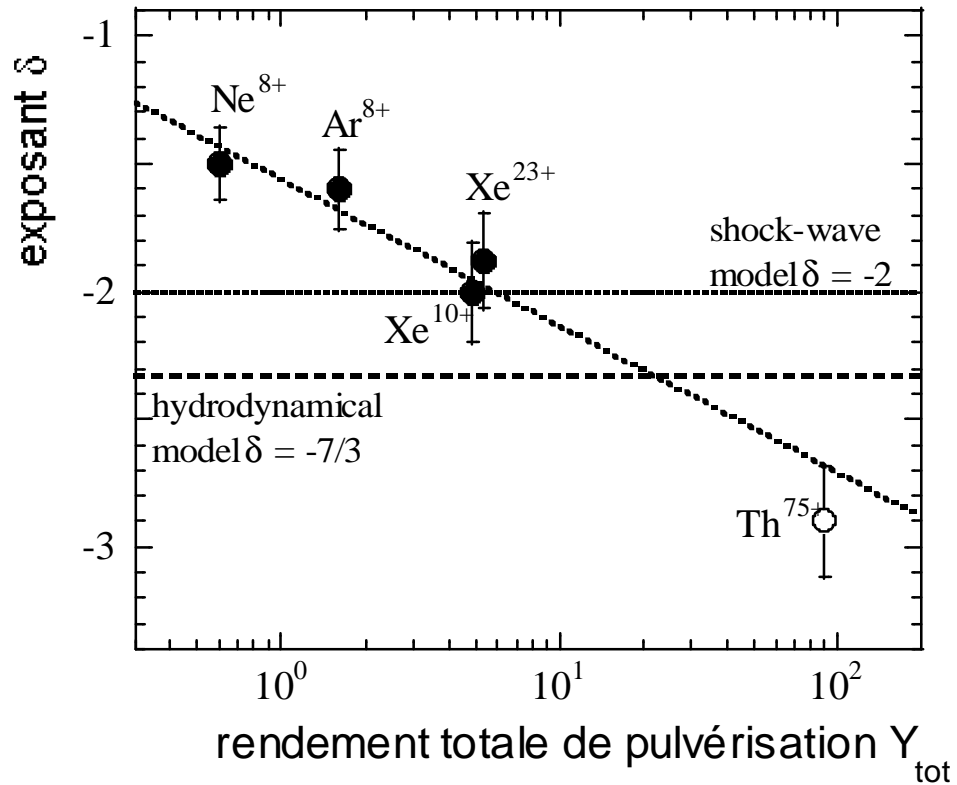


Figure III-23: variation de l'exposant δ en fonction du rendement total de pulvérisation.

Il est aussi difficile, de comprendre, pourquoi des valeurs élevées de d ($d \sim -2$) ont été observées dans le cas de faibles taux de pulvérisation ($Y_{tot} < 5$). Les modèles collectifs de pulvérisation sont seulement valables que dans le cas où un nombre très élevé d'atomes de la cible est mis en mouvement par le dépôt d'énergie, entraînant l'éjection d'un nombre important de particules et par conséquent un taux de pulvérisation élevé. Ces résultats peuvent être liés au caractère statistique de dépôt d'énergie. La plupart de collisions ioniques mènent seulement à une faible densité d'énergie déposée. De temps en temps, il peut y avoir des événements violents conduisant à l'éjection de plusieurs particules. Dans ce cas précis, les processus physiques peuvent être décrits par les modèles collectifs.

En effet, il est clair que dans la littérature, un tel comportement statistique avec des méga-événements ne contribue pas d'une manière proportionnelle dans le taux de pulvérisation total

moyen [Shap 99]. Cette description peut également être en accord avec l'hypothèse selon laquelle les collisions des ions lents multichargés ne mènent pas toutes à la formation des traces à la surface de la cible [Gebe 03].

c-4 : Contribution de l'émission ionique dans la pulvérisation.

Un autre résultat intéressant concerne la contribution des particules chargées émises dans le rendement total de pulvérisation. En effet la majorité des particules éjectées de la cible sont neutres, et uniquement une petite partie (probabilités d'ionisation de l'ordre de 10^{-2} à 10^{-4}) est émise sous forme d'ions secondaires [Betz 94, Sche 99]. Les rendements mesurés des ions secondaires positifs d'atomes d'uranium Y_{SI} (fig. III-20), augmente fortement avec la masse du projectile :

$Y_{SI} = (3 \pm 1) \times 10^{-5}$ pour le Ne^{8+} , $Y_{SI} = (4 \pm 0.9) \times 10^{-4}$ pour l' Ar^{8+} , $Y_{SI} = (1.2 \pm 0.5) \times 10^{-3}$ pour le Xe^{10+} et $Y_{SI} = (1.9 \pm 0.7) \times 10^{-3}$ pour le Xe^{23+} respectivement. Les rendements sont obtenus par la sommation des rendements partiels déduits par intégration des surfaces des pics des spectres de masses pour chaque n , et on multiplie par le nombre d'atome d'uranium n . Ainsi, il y a un effet de charge comme dans le cas du rendement total de pulvérisation (Fig. III-21). Si on compare les rendements ioniques mesurés par rapport aux rendements totaux de pulvérisation de $Y_{tot} = 5$ (Fig. III-21), la contribution des ions secondaires est approximativement de l'ordre de $3 \cdot 10^{-4}$ pour le dioxyde d'uranium bombardé par des projectiles lents et multichargés de xénon. Ceci, est plus d'un ordre de grandeur moins que la fraction des ions secondaires contenant de l'uranium observé par Schenkel et al. [Sche 99] pour des ions lents, de charge inférieure à $q = 30$ dans laquelle la contribution des ions secondaires est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-3}$. Dans le cas du pouvoir d'arrêt électronique, Schlutig et al. [Schl 01] ont trouvé une valeur de 10^{-2} pour la contribution des ions secondaires dans le rendement total de pulvérisation pour des ions de Kr^{32+} d'énergie 11 MeV/uma.

Finalement, on note que la contribution d'uranium émis sous forme d'agrégats $(UO_x)_n$ pour $n \geq 2$ par rapport au monomère ionique ($n = 1$) apparaît importante. Le rendement ionique d'agrégats d'uranium (la somme des rendements partiels pour $n \geq 2$) est à peu près de 75 % du rendement ionique total (la somme des rendements partiels pour $n \geq 1$) pour le xénon et de l'ordre de 80 % pour le néon et l'argon. Le rapport des agrégats ioniques émis par rapport au monomère varie donc entre 3 et 4.5 dépendant du projectile. Ceci est une allusion supplémentaire pour soutenir notre spéculation des événements violents « méga-events » qui auront lieu de temps en temps (chaque n ème impact avec $n \gg 1$).

Tels évènements, liés à l'éjection de plusieurs particules et peut être favorisent l'émission des agrégats en comparaison avec les évènements correspond à un taux de pulvérisation très faible ou nul [Zieg 85].

En résumé, nous avons étudié par la technique du *TOF-SIMS*, les distributions des rendements ioniques, des ions secondaires positifs émis sous forme d'agrégats, suite à un bombardement d'une cible de UO_2 par des ions multichargés de basse énergie (Xe^{q+} , Ar^{+8} , Ne^{+8} / UO_2 , $q = 10, 23$, à énergie cinétique fixe de 81 keV). La distribution en taille d'agrégats des rendements ioniques, obéit à une loi en puissance $Y \sim n^d$ avec un exposant d variant entre -1.5 et -2.9. Ceci est en accord avec les prédictions des modèles collectifs. Nous avons également étudié la corrélation de l'exposant d avec le rendement total de pulvérisation Y_{tot} et montré une diminution de d avec le rendement total, résultat surprenant. Il est étonnant de trouver une valeur de d autour de -2 dans ce cas de faible taux de pulvérisation. Ces résultats, avec une contribution significative des agrégats dans l'émission ionique totale, sont des allusions importantes du caractère statistique du processus de dépôt d'énergie. La plupart de collisions ioniques sont liées aux quantités relativement faibles d'énergie déposée. Mais de temps en temps, des évènements violents contribuent d'une manière disproportionnelle dans les rendements de pulvérisation moyens.

III-3 : Résultats préliminaires de l'expérience de l'imagerie.

Nous allons au cours de ce paragraphe présenter les méthodes d'analyses des données de l'expérience de l'imagerie et les résultats préliminaires obtenus. Pour cela, nous avons exploité les spectres bruts sauvegardés sur l'acquisition du *Ganil* et visualisés par le logiciel *VISUGAN*.

3-1: Identification des ions émis.

1-a : Etude des lignes de gaz.

Nous avons introduit deux gaz (Ne et Ar) dans la chambre d'irradiation, à l'aide d'une microvanne, tout en préservant le vide à une valeur inférieure au seuil d'utilisation des galettes ($\sim 6.10^{-6}$ mbar). Les atomes de gaz se trouvant sur la trajectoire de l'ion du faisceau, ont une certaine probabilité d'être ionisés. Ces ions de gaz, ensuite accélérés par le champs électrique vers le détecteur, constituent ce que nous appellerons « les lignes de gaz » (Fig. III-24). Les ions ainsi créés ont une vitesse initiale « vitesse d'agitation thermique » négligeable [Jalo 02]. Ainsi, un atome de gaz dans le plan OXZ , de coordonnées $(Xp, 0, Zp)$, est ionisé à l'instant t_s , avant l'arrivée du projectile au point d'impact $(0, 0, 0)$ sur la cible.

La valeur de t_s :

$$t_s = \frac{X_p}{V_p \cdot \sin q_p} \quad [\text{Rel : III-15}]$$

Avec q l'angle d'incidence du projectile et V_p sa vitesse.

Pour les faisceaux de la SME (~ 10 Mev/u), V_p est très élevée, et le temps t_s est négligeable ($t_s < 1$ ns). Cet ion traverse un espace de champ uniforme \vec{e}_1 pendant une durée t_1 puis traverse un deuxième espace de champ uniforme \vec{e}_2 pendant une durée t_2 . Il est ensuite détecté par un système des galettes à microcanaux. Son temps de vol est donc :

$$TOF = t_1 + t_2 \quad [\text{Rel : III-16}]$$

En utilisant les lois de la dynamique, les valeurs de t_1 et t_2 sont :

$$t_1 = \frac{2(d_1 - Z_p)}{v_1} \quad [\text{Rel : III-17}]$$

$$t_2 = \frac{2d_2}{v_2 - v_1} \quad [\text{Rel : III-18}]$$

V_1 et V_2 les vitesses de l'ion au niveau de la grille et à l'entrée des galettes ont pour valeurs :

$$v_1 = \sqrt{\frac{2qU_1(d_1 - z_p)}{m d_1}} \quad [\text{Rel : III-19}]$$

$$v_2 = \sqrt{\frac{2qU_2}{m} + v_1^2} \quad [\text{Rel : III-20}]$$

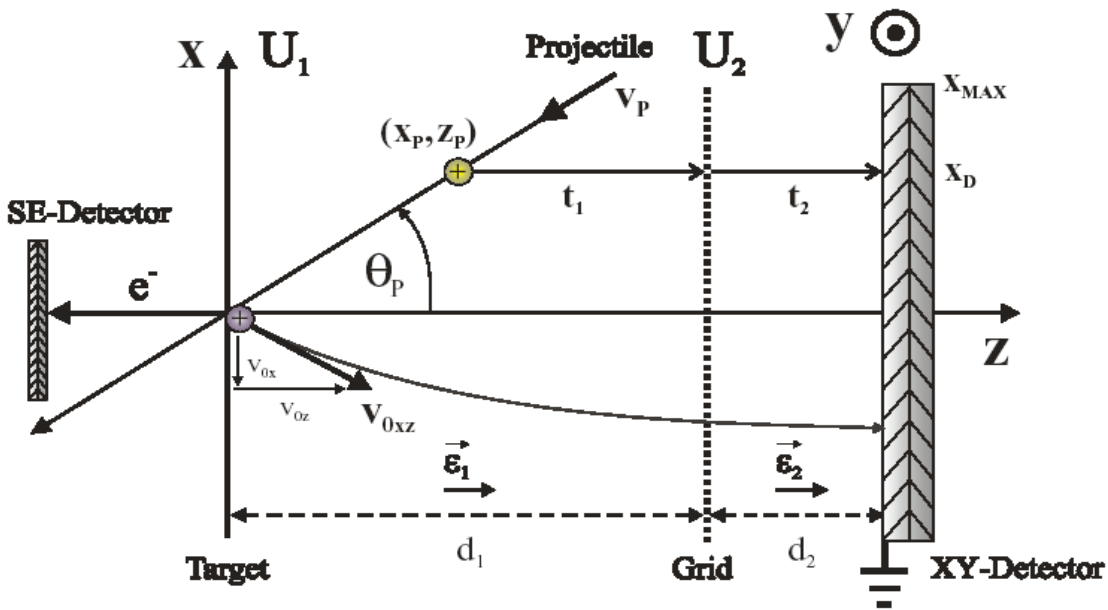


Figure III-24 : Ionisation du gaz résiduel par le faisceau de projectiles.

Certains atomes de gaz sont ionisés au niveau de la surface ($Z_p = 0$). Ces ions collectés par les galettes permettent la calibration en temps et en masse du spectre de temps de vol. Les temps de vol des ions résiduels ne sont pas mesurables directement sur les spectres des *TOF*. L'utilisation des spectres de position *TOF* (*X-TOF*, *Y-TOF*) permet ces mesures. Ces mesures correspondent aux intersections des lignes de gaz avec le centre du détecteur (vitesse nulle de pulvérisation) (figures III-25 et III-2).

1-b : Calibration en temps et en masse des spectres.

Le spectre en temps de vol défini en canaux doit être calibré en temps. Chaque canal correspond environ à 5 ns. Pour réaliser cette calibration, nous avons utilisé le pic photon dont le temps de vol supposé nul et pris comme origine du spectre et une ligne de gaz (He^+ ou Ne^+ par exemple). Pour l'étalonnage en masse des spectres en temps de vol, nous avons utilisé le *TOF* du pic photon (masse nulle et *TOF* nul) et les temps de vol correspondent aux gaz résiduels (deux

lignes de gaz, le néon et l'argon). Le passage du spectre en temps de vol à celui en masse se fait par la relation [Rel : III-13].

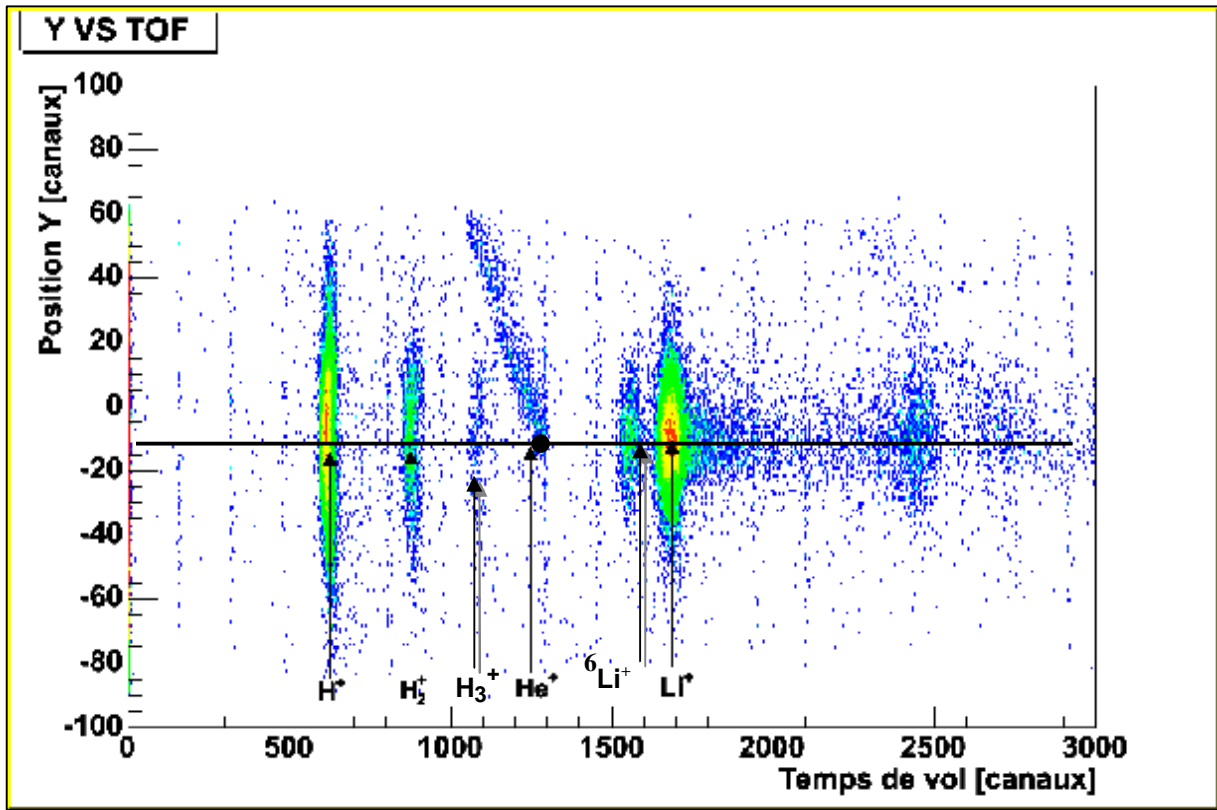


Figure III-25 : Spectre Y en fonction du TOF (S^{15+}/LiF cristallin, $11MeV/u$), régime de haute vitesse.

Pour la cible du LiF cristallin, et dans les deux régimes du pouvoir d'arrêt, nous pouvons identifier des pics symétriques de l' H^+ , Li^+ et des hydrocarbures. En outre, la distribution spatiale de l'hydrogène et du lithium est plus large que celle des hydrocarbures (Fig.III-26).

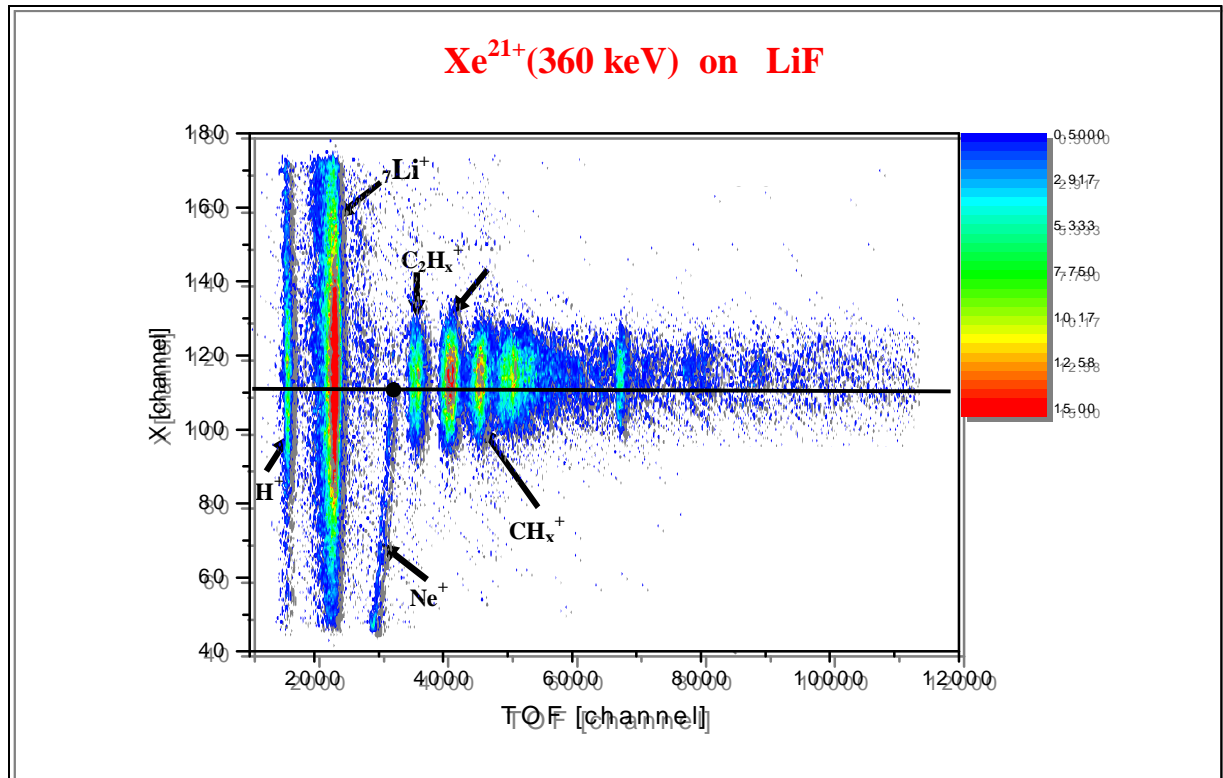


Figure III-26: Spectre X en fonction du TOF (Xe^{21+} / LiF cristallin, $360\ keV$), régime de faibles vitesses.

Nous pouvons également identifier des pics symétriques de l' H^+ , des hydrocarbures, lignes de gaz et d'uranium pour la cible de UO_2 (Fig. III-27).

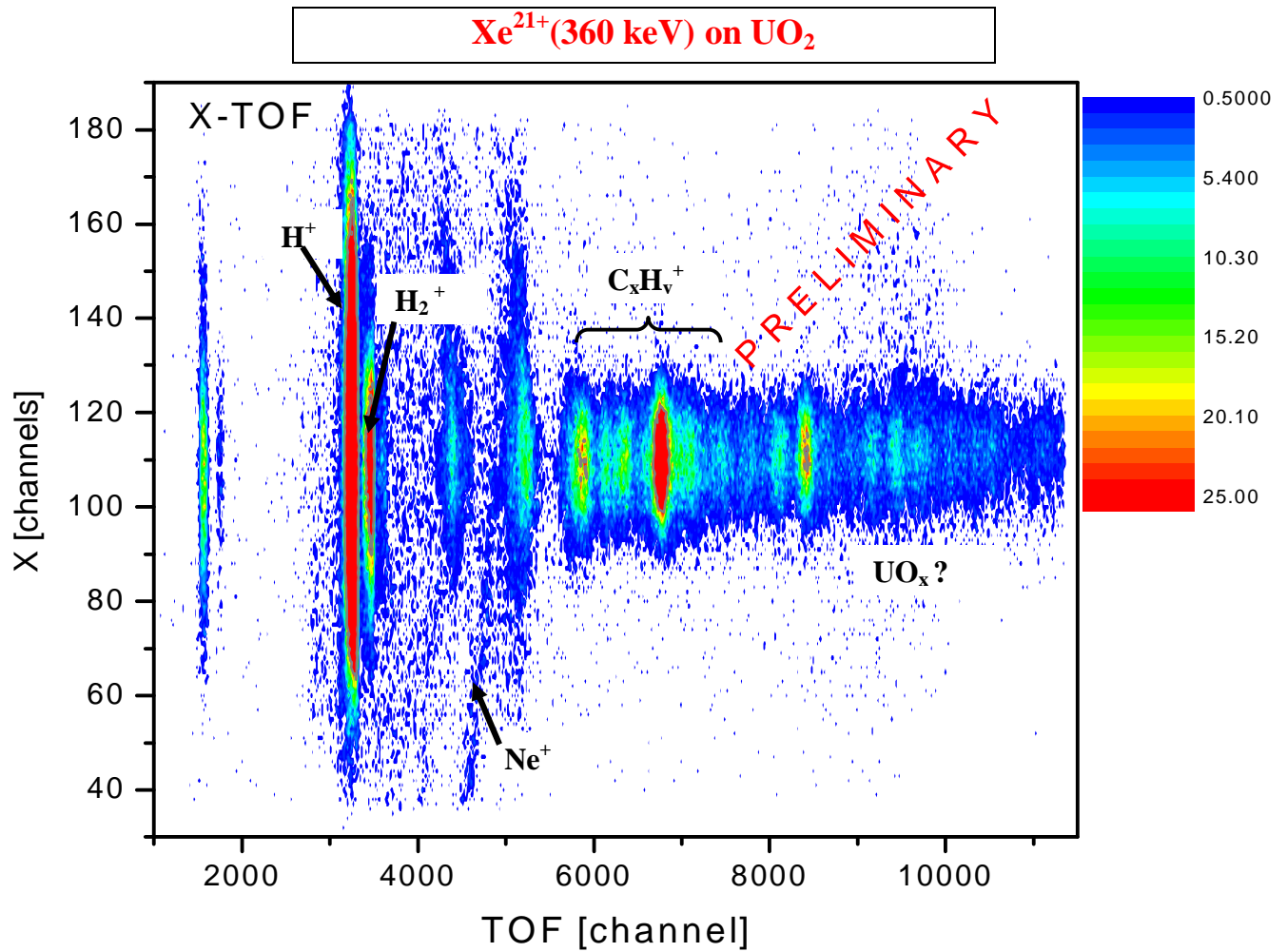


Figure. III-27 : Spectre X en fonction du TOF ($Xe^{21+} / UO_2, 360 keV$).

En résumé, pour la cible du LiF cristallin, et dans les deux régimes du pouvoir d'arrêt, nous pouvons identifier des pics symétriques de l' H^+ , Li^+ et des hydrocarbures. En outre, la distribution spatiale de l'hydrogène et de lithium est plus large que celle des hydrocarbures.. Pour la cible de UO_2 nous pouvons identifier des pics symétriques de l' H^+ , des hydrocarbures, lignes de gaz et d'uranium.

Bibliographie

- [**Bara 88**] : I. A. Baranov, YU. V. Martynenko, S.O. Tsepelevich and YU. N. Yavlinskii. Sov. Phys. Usp. 31 (1988) 1015.
- [**Beny 92**] : A. Benyagoub, S. Löffler, M. Rammensee, S. Klaumünzer, G. Saemann-Ischenko, Nucl. Instr. Meth. 65 (1992) 228.
- [**Bent 04**] : G.G. Bentini, M. Bianconi, L. Corraera, M. Chiarini, P. Mazzoldi, C. Sada, N. Argiolas, M. Bazzan, R. Guzzi, J.Appl. Phys. 96 (2004) 242.
- [**Betz 94**] : G. Betz, K. Wien, Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 140,1 (1994).
- [**Bite 87**] : I.S. Bitensky, E.S. Parilis, Nucl. Instrum. Meth. B 21, 26 (1987).
- [**Bona 98**] : N. Bonardi, Ph.D., thesis, University C. Bernard Lyon, France (1998).
- [**Canu 97**] : B. Canut, S.M.M. Ramos, N. Bonardi, J. Chaumont, H. Bernas, E. Cottureau, Nucl. Instr. and Meth. B 122 (1997) 335.
- [**Canu 96**] : B. Canut, S.M.M. Ramos, N. Bonardi, J. Chaumont, H. Bernas, E. Cottureau, Nucl. Instr. Meth. B 122 (1997) 335.
- [**Civa 91**] : L. Civale, A.D. Marwick, T.K. Worthington, M.A. Kirk, J.R. Thompson, L. Krusin-Elbaum, Y. Sun, J.R. Clem, F. Holtzberg, Phys. Rev. Lett. 67 (1991) 648.
- [**Cost 93**] : J.M. Costantini, F. Ravel, F. Brisard, M. Caput, C. Cluzeau, Nucl. Instr. Meth. B 80/81 (1993) 1249.
- [**Dufo 93**] : C. Dufour, A. Audouard, F. Beuneu, J. Dural, J.P. Girard, A. Hairie, M. Levalois, E. Paumier, M. Toulemonde, J. Phys. : Condens. Matter 5 (1993) 4573.
- [**Dufo 99**] : Ch. Dufour, Z.G. Wang, E. Paumier, M. Toulemonde, Bull. Mater. Sci. 22 (1999) 671.
- [**Gebe 03**] : I.C. Gebeshuber, S. Cernusca, F. Aumayr, Hp. Winter, Nucl. Instrum. Meth. B 205, 751 (2003)
- [**Gerv 93**] : B. Gervais, Ph.D., thesis, University of Caen, France (1993).
- [**Gilm 00**] : I. S. Gilmore, M. P. Seah, Int. Mass. Spectrom. 202, 217 (2000).
- [**Hagl 93**] : R. F. Haglund , R. Kelly, Mat. Fys. Medd. 43 (1993) 527.
- [**Hamz 99**] : A. V. Hamza, T. Schenkel, A. V. Barnes, Eur. Phys. J. D 6 (1999) 83.
- [**Kati 87**] : V.V. Katin, Yu V. Martinenko, Yu N. Yavlinskii, Sov. Techn. Phys. Lett. 13(1987) 276.
- [**Gonc 01**] : I.N. Goncharov, B.F. Kostenko, V.P. Philinova, Phys. Lett. A288 (2001) 111.
- [**Marw 93**] : A.D. Marwick, L. Civale, L. Krusin-Elbaum, R. Wheeler, J.R. Thompson, T.K. Worthington, M.A. Kirk, Y.R. Sun, H.R. Kerchner, F. Holtzberg, Nucl. Instr. Meth. B 80/81 (1993) 1143.
- [**Meft 94**] : A. Meftah, F. Brisard, J.M. Costantini, E. Dooryhee, M.Hage-Ali, M. Hervieu, J.P.

- Stoquert, F. Studer, M. Toulemonde, Phys. Rev. B 49 (1994) 12457.
- [**Meft 97**]: A. Meftah, J.M. Costantini, M. Djebara, N. Khakfaoui, J.P. Stoquert, F. Studer, M. Toulemonde, Nucl. Instr. and Meth. B 122 (1997) 470.
- [**Rehn 01**] : L.E. Rehn, R.C. Birtcher, S.E. Donnelly, P.M. Baldo, L. Funk, Phys. Rev. Lett. 87, 207601 (2001)
- [**Sche 99**] : T. Schenkel, A.V. Hamza, A.V. Barnes, D.H. Schneider, Progr. Surf. Sci. 61, 23 (1999),
- [**Schl 01**] : S. Schlutig, thèse, Université de Caen (2001).
- [**Shap 99**]: M.H. Shapiro, T.A. Tombrello, Nucl. Instrum. Meth. B 152, 221 (1999)
- [**Stau 02**] : C. Staudt, A. Wucher, Phys. Rev. B 66, 075419 (2002).
- [**Stoq 98**] : J. P. Stoquert, F. Pêcheux, Y. Hervé, H. Marchal, R. Stuck, P. Siffert, Nucl. Instr. Meth. B 136 – 138 (1998) 1152.
- [**Szen 95**]: G. Szenes, Phys. Rev. B 52 (1995) 6154
- [**Thév77**] : P. Thévenard, G. Guiraud, C. H. S. Dupuy, B. Delaunary. Rad. Eff. 32 (1977)83.
- [**Toul 98**] : M. Toulemonde, A. Meftah, J. M. Costantini, K. Schwartz, C. Trautmann, Nucl. Instr. and Meth. B 146 (1998) 426.
- [**Toul 96**] : M. Toulemonde, J. M. Costantini, C. Dufour, A. Meftah, E. Paumier, F. Studer, Nucl. Instr. Meth. B 116 (1996) 37.
- [**Toul 94**] : M. Toulemonde, S. Bouffard, F. Studer, Nucl. Instr. Meth B 91 (1994) 108.
- [**Toul 04**]: M. Toulemonde, C. Trautmann, E. Balanzat, K. Hjort, A. Weidinger, Nucl. Instr. Meth. B 216 (2004)1.
- [**Toul 00**]: M. Toulemonde, Ch. Dufour, A. Meftah, E. Paumier, Nucl. Instr. Meth. B 166/167 (2000) 903.
- [**Toul 01**]: M. Toulemonde, S. M. M. Ramos, H. Bernas, C. Clerc, B. Canut, J. Chaumont, C. Trautmann Nucl. Instr. Meth. B 178 (2001) 331.
- [**Urba 88**]: H.M. Urbassek, Nucl. Instrum. Meth. B 31, 541 (1988)
- [**Van 01**]: T. van Dillen, E. Snoeks, W. Fukarek, C. M. van Kats, V. P. Velikov, A. Von Bladereen, and A. Polman, Nucl. Instr. Meth. B 175-177 (2001) 350.
- [**Van 03**]: T. van Dillen, A. Polman, C. M. van Kats, A. von Bladereen, Appl. Phys. Lett. 83 (2003) 4315.
- [**Vett 98**] : J. Vetter, R. Scholz, D. Dobrev, L. Nistor, Nucl. Instr. Meth. B 141 (1998) 747.
- [**Wali 86**] : M.P.R. Waligorski, R.N. Hamm, R. Katz, Nucl. Tracks Radiat. Meas. 11(1986) 3.
- [**Wang 94**] : Z.G. Wang, Ch. Dufour, E. Paumier, M. Toulemonde, J. Phys. Condens. Matter 6(1994)6733 ; J. Phys. Condens. Matter 7 (1995) 2525.
- [**Wuch 96**] : Wucher, M. Wahl, Nucl. Instrum. Meth. B 115, 581(1996)

[*Zieg 85*] : J. F. Ziegler, J. P. Biersack, U. Littmark. <http://www.srim.org>, based on The Stopping and Range of Ions in Solids, Pergamon Press, new York, 1985 (new edition in 2003).

CONCLUSION

L'endommagement de matériaux induit par irradiation avec des ions lourds se traduit par la création de traces latentes dans le volume et l'éjection d'atomes à la surface. L'étude de la pulvérisation et donc des effets observés à la surface peut nous aider à mieux comprendre les mécanismes initiaux de création de la trace.

La première partie de cette étude présente les résultats de l'endommagement du grenat gadolinium galium $Gd_3Ga_5O_{12}$ induit par irradiation avec des ions lourds dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique. Le dommage a été quantifié par la rétrodiffusion Rutherford en canalisation. Les sections efficaces de création de défauts et les rayons de traces correspondants ont été déterminés. Ce travail a permis de montrer que le seuil d'endommagement pour ce matériau est de l'ordre de 7.2 ± 1.2 keV/nm pour les basses énergies (~ 1.5 MeV/uma) et 9.3 ± 0.9 keV/nm pour les hautes énergies (~ 6 MeV/uma). Les calculs du modèle de la pointe thermique inélastique ont permis de calculer les rayons de traces en fonction de pouvoir d'arrêt électronique $(dE/dx)_e$ en utilisant, un seul paramètre libre de fit, λ la longueur de diffusion de l'énergie sur les électrons de la cible. Les calculs ont été étendus à d'autres matériaux $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, GeS et $LiNbO_3$ et une valeur de λ a été déduite pour chacun d'eux. Les résultats montrent que λ diminue lorsque l'énergie de la bande interdite augmente. Cette corrélation montre l'importance des effets thermiques et du couplage électron-phonon dans l'amorphisation des matériaux induits par des ions lourds rapides.

La seconde partie de ce travail a été axée sur la pulvérisation du dioxyde d'uranium par irradiation. Pour cela, nous avons étudié par la technique *TOF-SIMS*, les distributions des rendements ioniques des ions secondaires positifs émis sous forme d'agrégats, suite à un bombardement d'une cible de UO_2 par des ions multichargés de basse énergie. La distribution en taille d'agrégats des rendements ioniques, obéit à une loi en puissance $Y \sim n^d$ avec un exposant d variant entre ~ 1.5 et ~ 2.9 en accord avec les prédictions des modèles collectifs.

Nous n'observons pas une claire dépendance de l'exposant avec la charge, mais on observe une dépendance avec la masse. Ce travail montre de façon spectaculaire une diminution de d avec le rendement total de pulvérisation Y_{tot} et une valeur de d proche de 2 dans le cas des faibles taux de pulvérisation.

La contribution d'uranium émis sous forme d'agrégats $(UO_x)_n$ pour $n \geq 2$ par rapport au monomère ionique ($n = 1$) est apparaît important. Le rendement ionique d'agrégats d'uranium (la somme des rendements partiels pour $n \geq 2$) est à peu près de 75 % du rendement ionique total (la somme des rendements partiels pour $n \geq 1$) pour le xénon et de l'ordre de 80 % pour le néon et l'argon.

Afin de séparer les effets de différents pouvoirs d'arrêts sur le processus de pulvérisation, nous avons employé la technique d'imagerie (*TOF-XY*) dans deux différents régimes de vitesses différents : à hautes vitesses où le pouvoir d'arrêt électronique est dominant, et à basses vitesses où la perte d'énergie par collisions nucléaire est plus importante. Cette technique a permis l'étude de la distribution en vitesse et en angle des ions secondaires émis dans le cas du LiF et du UO_2 . Pour la cible du LiF cristallin, nous avons pu identifier des pics symétriques de H^+ , Li^+ et des hydrocarbures, pour les deux régimes du pouvoir d'arrêt. En outre, la distribution spatiale de l'hydrogène et de lithium est plus large que celle des hydrocarbures. Cependant, dans le régime de faibles vitesses, nous avons observé une structure attribuée aux ions de carbone éjectés par des collisions binaires, indication du régime du pouvoir d'arrêt nucléaire. Nous avons également identifié des pics symétriques de H^+ , des hydrocarbures, des lignes de gaz et d'uranium pour la cible de dioxyde d'uranium.

En perspective, il serait intéressant d'étudier les points suivants :

1. **Effet dominant de l'énergie potentielle** : Il est intéressant de refaire des expériences avec des projectiles lourds hautement chargés, de très faible énergie cinétique, afin de séparer l'effet de l'énergie potentielle de celle de l'énergie cinétique et de mieux comprendre le dépôt de l'énergie potentielle par le projectile sur les constituants du matériau cible.
2. **Détection des neutres** : Pour l'étude des rendements des neutres émis par une cible d'halogénure d'alcalin, nous avons utilisé une technique de post ionisation par laser, dont le dispositif est presque identique à celui de TOF-SIMS. Seule une plaque extractrice polarisable à ouverture devant la cible a été rajoutée afin de repousser les ions positifs émis par la cible et d'accélérer les atomes ionisés par un laser pulsé Nd-yag quintuplé en fréquence (213 nm, 5.82 eV) vers l'entrée du TOF. Cette énergie de 5.82 eV est suffisante pour ioniser tous les alcalins en un photon. Il est donc possible d'étudier les neutres alcalins pulvérisés à partir d'un halogénure d'alcalin (LiF, NaCl, RbCl, CsI,...). Ces matériaux présentent aussi l'avantage d'avoir un fort rendement de pulvérisation. L'effet du laser a été observé, avec une cible de

chlorure de rubidium RbCl, pour les premiers essais. L'étude qualitative et quantitative de la post-ionisation et une meilleure détection des atomes ionisés par le laser nécessitent donc de nouvelles expériences avec un contrôle précis de tous les paramètres.

3. **Utilisation de surfaces contrôlées en incidence rasante :** Dans de nombreuses expériences, des absorbas (hydrocarbures) sont détectés. L'utilisation des surfaces contrôlées non polluées est indispensable pour l'étude de la désorption des particules de la surface d'un solide. Les expériences en incidence rasante sont aussi intéressantes pour voir l'effet progressif de la charge sur les rendements et les distributions angulaires où la notion de l'atome creux intervient intensivement.

ملخص

قذف المادة بأيونات طاقوية ثقيلة ، يحدث تقوبا مسامية بسطحها و حجمها، تسمى بالآثار الكمونية، وهي آثار مجهرية لا متبلورة، و يؤدي كذلك إلى إنبعاث (رش) جسيمات شاردية أو متعادلة، سطحية أو حجمية. دراسة هذه العيوب المجهرية و خصائص الجسيمات المرشوشة، يساعد على فهم ديناميكية إيداع و انتقال طاقة الأيونات المقذوفة إلى مكونات المادة.

عند الطاقات العالية ($\sim MeV$) يكون تباطؤ المقذوفات داخل المادة ناتج عن التفاعل غير المرن مع إلكتروناتها، فننكلم عن مفهوم الصد الإلكتروني. بينما عند الطاقات المنخفضة ($\sim keV$) تتباطأ المقذوفات بسبب التفاعل المرن مع أنوية المادة، فننكلم عندها عن مفهوم الرش النووي. في حالة المقذوفات عالية التردد ($q \gg 1$) تظهر ظواهر أخرى للرش مرتبطة بالشحنة أو الطاقة الكامنة للمقذوفات، فننكلم حينئذ عن ظاهرة الرش الكموني.

درست العيوب الناتجة عن قذف مادة (GGG) بأيونات طاقوية مختلفة، بتقنية الإنبعاث الخلفي لراذرفورد نمط القناة ($RBS-c$). يستنتج المقطع الفعال اللامتبلور A إنطلاقا من قانون بواسون، و بالتالي أنصاف أقطار الآثار الكمونية الأسطوانية الشكل. كذلك وجدت عتبة قدرة الصد الإلكتروني عند مختلف الطاقات.

أستعمل نموذج الرأس الحرارية غير المرنة من أجل حساب أنصاف أقطار الآثار بدلالة الطاقة الإلكتروني المنقلة إلى إلكترونات المادة (dE/dx). بأخذ الطول المتوسط لإنبعاث الطاقة I كوسيط حر وحيد، تستنتج قيمة هذا الوسيط من خلال ضبط أنصاف أقطار الآثار المحسوبة بالمقاسة.

بتركيب النتائج الخاصة بالمواد ($LiNbO_3, Gd_3Ga_5O_{12}, YBa_2Cu_3O_{7-d}, a-SiO_2$) يتبين أن الطول المتوسط الحر لإنبعاث الطاقة يتناقص بارتفاع طاقة حزمة المنع.

درس الإنبعاث الأيوني الناشئ عن قذف عينات من ثاني أكسيد اليورانيوم UO_2 بالمقذوفات ($q = 10, 23, Ne^{8+}, Ar^{8+}, Xe^{q+}$) ذات طاقة حركية ثابتة ($81 keV$)، وذلك بتقنية مطيافية الأيونات الثانوية و زمن الطيران. واتضح أن نسبة كبيرة من الأيونات الثانوية الموجبة الشحنة ترش على هيئة عناقيد (75%). و وجد أن توزيع الربح الأيوني بدلالة حجم العناقيد الأيونية (n) يخضع لقانون أسي ($Y \sim n^d$) حيث قيمة الأس d تتراوح ما بين 1.5 - و 2.9 . هذه القيمة موافقة لتنبؤات الأنماذج الجمعية (نموذج بيتسكي و إربساك $d \sim -2$). و درسنا كذلك علاقة هذا الأس بالربح الكلي للرش، و كانت المفاجئة، أن الأس يتناقص مع إرتفاع الربح الكلي، و المفاجئة الثانية هي كون هذا الأس يأخذ قيمة قريبة من -2 في هذه الحالة حيث الربح الكلي ضعيف جدا ($Y_T \sim 5$). هذا التباين ناتج عن الطبيعة الإحصائية لميكانيزمات إنتقال الطاقة، فربما من حين لآخر تكون حوادث عنيفة تساهم بطريقة متباينة في الربح الإنبعاثي المتوسط.

من أجل فصل التأثيرات المختلفة لقدرة الصد الإلكتروني و النووية على آلية الرش الأيوني، أستعملنا تقنية تصوير في مجالين مختلفين للسرعة. عند السرعات العالية حيث يكون الصد الإلكتروني غالبا و عند السرعات المنخفضة حيث يكون الصد النووي مهيمنا. تقنية التصوير هذه تسمح لنا في نفس الوقت بقياس زمن طيران الجسيمات المرشوشة و إحداثياتها عند سقوطها على المهبط، مما يسمح باستنتاج سرعاتها و زوايا إنبعاثها. نقدم النتائج الأولية لهذه القياسات الخاصة بالعينتين LiF و UO_2 إذ يمكن تحديد أوتاد مكافئة ل H^+ و الهيدروكاربونات المرشوشة من السطح و خطوط غازات المعايرة في كلا العينتين، إضافة لمكونات كل عينة Li^+ بالنسبة لعينة LiF و $(UO_x)^+$ في عينة UO_2 .

ABSTRACT

Damage has been studied in the $Gd_3Ga_5O_{12}$ irradiated by swift heavy ions. Latent tracks radii have been determined experimentally over a wide range of electronic stopping power by *c-RBS*. The electronic stopping power threshold of damage creation which has been deduced. The experimental results were successfully described by the inelastic thermal spike model assuming a unique value of l , the mean diffusion length of the deposited energy on the electrons. The inelastic thermal spike model was then extended to other amorphizable materials, $YBa_2Cu_3O_{7-d}$, GeS and $LiNbO_3$ and λ values have been extracted for each of them. The results indicate that λ decreases when the band gap energy increases or in other words, the higher the band gap energy, the stronger the electron-phonon coupling. This correlation shows the importance of the thermal effect and the electron-phonon coupling in the experimental observations of amorphizable materials irradiated by swift heavy ions. Moreover for two specific materials we have been able to deduce the latent heat of fusion (GeS and $LiNbO_3$). By extrapolation we have determined what will be the evolution of the threshold damage creation versus beam energy for different materials, conducting that even for vitreous silica the damage by electronic stopping power excitation arises at very low beam energy (~ 0.001 MeV/u) could be powerful.

With Time of Flight-Secondary Ion Mass Spectroscopy technique, we measured the cluster-size distribution of positively charge secondary ions from sputtering of uranium dioxide UO_2 by neon and argon ions ($q = 8$) and xenon ions of deferent charge states ($q = 10, 23$) at fixed kinetic energy (81 keV). The size-distribution of the cluster ion yields Y can be described by a power law $Y \sim n^d$ with d values between -1.5 and -2.9. This is in agreement with the predictions of collective models. We also studied the correlation of the exponent d with the total Sputtering yield Y_{tot} . As a surprising result, a decrease was observed. It at first glance astonishes that d values around -2 are observed in the case of low sputter yields. These findings together with the observed significant contribution of cluster ion emission to the total ion yield are an important hint for the statistical character of the energy deposition process. Most ion impacts only lead to relatively small density of deposited energy, but from time to time, violent “mega-events” which contribute disproportionately to the average, mean total sputter yields can occur.

In order to separate the effect of different stopping power on the sputtering processes, we applied the *TOF-XY* imaging technique to ion surface collisions at two different velocity regimes: at

high velocity (S^{15+} , 11 MeV/u, $21 V_B$), where the electronic energy loss is dominant, and at low velocity (Xe^{21+} , $0.1 V_B$) where the nuclear stopping is most important. This technique allows to study the momentum distribution of emitted secondary ions (velocity and angle). We obtained the first results with UO_2 and LiF crystalline targets. The emission patterns are different at high and low velocity regimes, where the signature of binary collisions is seen. Also from the mass spectrum we can identify symmetric peaks corresponding to the emitted secondary ions and gas lines which are used for mass and time calibration.

TITRE :**Etude de la pulvérisation induite par des ions multichargés**

Des monocristaux de $Gd_3Ga_5O_{12}$ ont été irradiés avec des ions lourds dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique. L'endommagement est étudié par la rétrodiffusion Rutherford en canalisation. Les sections efficaces de création de défauts et des rayons de trace (définis comme zone amorphe) correspondants ont été déterminés. Cette étude montre que le seuil d'endommagement pour ce matériau est de l'ordre de 7.2 ± 1.2 keV/nm pour les basses énergies (~ 1.5 MeV/uma) et 9.3 ± 0.9 keV/nm pour les hautes énergies (~ 6 MeV/uma). Le modèle de la pointe thermique inélastique est appliqué pour calculer les rayons de traces en fonction de pouvoir d'arrêt électronique $(dE/dx)_e$ en utilisant, un seul paramètre libre de fit, l la longueur de diffusion de l'énergie sur les électrons de la cible. Les résultats obtenus combinés avec d'autres publiés et relatifs à divers matériaux montrent que l diminue lorsque l'énergie de gap augmente.

Pour mieux comprendre les mécanismes initiaux de formation de traces, nous nous sommes intéressés à la pulvérisation du dioxyde d'uranium et du fluorure de lithium par irradiation. Pour cela, nous avons étudié par la technique *TOF-SIMS*, les distributions des rendements ioniques des ions secondaires positifs émis sous forme d'agrégats, suite à un bombardement d'une cible de UO_2 par des ions multichargés de basse énergie. La distribution en taille d'agrégats des rendements ioniques, obéit à une loi en puissance $Y \sim n^d$ avec un exposant d variant entre ~ 1.5 et ~ 2.9 en accord avec les prédictions des modèles collectifs. Ce travail montre de façon spectaculaire une diminution de d avec le rendement total de pulvérisation Y_{tot} et une valeur de d proche de 2 dans le cas des faibles taux de pulvérisation. Cette technique d'imagerie (*TOF-XY*) a permis également l'étude de la distribution en vitesse et en angle des ions secondaires émis dans le cas du LiF et du UO_2 .

Mots-clefs :

Irradiation, ions lourds multichargés, endommagement, pouvoir d'arrêt, traces latentes, pulvérisation, agrégats, pointe thermique, modèles collectifs.