

MA-530-98-1

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

Université Saad DAHLAB-Blida 1

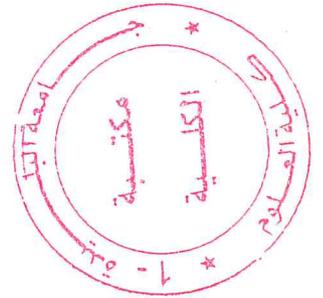


Faculté des Sciences  
Département de Physique

Centre de Recherche Nucléaire D'Alger  
(CRNA)

Mémoire de Master  
Présenté pour l'obtention du diplôme en :

Physique Nucléaire



# UTILISATION DU CODE NDF DATA FURNACE POUR LES ANALYSES PAR FAISCEAU D'ION

Présenté par :  
Salaheddine OUADAH  
Imed BENGOUFA

Mr. R. Khelifi  
Mr. A. Mouzali  
Mr. M. Chekirine  
Mr. B. Touchrift

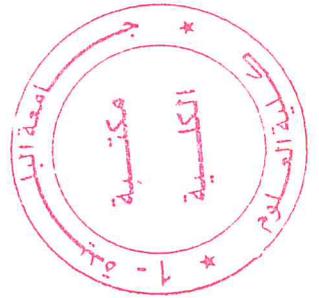
Professeur U. S. B.-Blida 1  
Maitre de conférences B U. S. D. Blida 1  
Maitre de conférences B U. S. D. Blida 1  
Chercheur confirmé CRNA

Président  
Examinateur  
Examinateur  
Encadreur

Blida 2018

MA-530-98-1

# Utilisation du code NDF DataFurnace pour les analyses par faisceaux d'ions



## *Remerciement*

*Nous tenons tout d'abord à remercier Dieu le tout puissant et miséricordieux, qui nous a donné la force et la patience d'accomplir ce Modeste travail.*

*Nous tenons à exprimer nos remerciements les plus vifs à notre encadreur Mr. **Brahim Touchrift**, Chercher confirmé au sein du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, qui a su nous guider et nous aider dans ce travail avec beaucoup de tact et de gentillesse et qui nous a permis de découvrir un domaine très intéressant. Qu'il trouve ici notre estime et notre profond respect.*

*Nos remerciements s'étendent également à Mme. **Houria Salah** Chercheur expert au sein du CRNA pour ses bonnes explications qui nous ont éclairé le chemin de la recherche et sa collaboration avec nous dans l'accomplissement de ce modeste travail.*

*Nous tenant à remercier sincèrement Mrs. **Nassim Souami, Houcine Hadoun et Sid Ali Bouguendoura**, qui se sont toujours montrés à l'écoute et très disponible tout au long de la réalisation de ce mémoire, ainsi pour l'inspiration, l'aide et le temps qu'ils ont bien voulu nous consacrer et sans qui ce mémoire n'aurait jamais vu le jour.*

*Nos vifs remerciements vont également aux membres du jury pour l'intérêt qu'ils ont porté à notre recherche en acceptant d'examiner notre travail et de l'enrichir par leurs propositions.*

*Enfin, Nous tenons à remercier toutes les personnes qui ont participé, à titre professionnel ou personnel à la réalisation de ce travail. Merci à tous et à toutes.*

*Je dédie ce mémoire à ma mère, mon père, mes frères et sœurs*

*Imed*



*A ma mère, mon père, mon frère et mes sœurs*

*Pour les enfants de la bande de gaza*

*Salaheddine*

## Résumé

Dans ce travail de mémoire, nous nous sommes intéressés à l'analyse de spectres IBA (ion Beam Analysis) au moyen du code IBA DataFurnace. Les techniques employées sont les techniques nucléaires induites par faisceaux d'ions IBA d'énergie de l'ordre du Mev. Nous avons donc abordé ce sujet par une étude bibliographique sur le code d'analyse utilisé dans ce travail mais aussi sur le dispositif expérimental utilisé dans les analyses par faisceaux d'ions et l'élaboration de cibles. Les techniques d'analyse IBA ont également fait l'objet d'une étude bibliographique assez détaillée. La deuxième partie a été consacrée à la préparation de deux séries de cibles en utilisant le dépôt physique en phase vapeur (PVD) et dépôt chimique en phase vapeur (CVD). Les observations par microscopie électronique à balayage ont mis en évidence la surface des cibles réalisées. La partie principale de ce travail est réalisée en ajustant des spectres en énergie simulés aux spectres mesurés, grâce au code IBA DataFurnace. Les spectres expérimentaux tirés à partir de précédentes études sont exploités dans ce travail.

## Abstract

In this work of this thesis, we are interested in the analysis of IBA spectra (ion Beam Analysis) using the IBA DataFurnace code. The techniques used are nuclear techniques induced by ion beams IBA with energy of the order of Mev. We therefore approached this subject with a bibliographic study on the analysis code used in this work but also on the experimental setup used in ion beam analysis and target development. The second part was dedicated to the preparation of two sets of targets using PVD and CVD methods. The observations by scanning electron microscopy revealed the surface of the targets produced. The main part of this work is done by adjusting simulated Spectra measured energy spectra, with the IBA DataFurnace code. The experimental Spectra derived from previous studies are used in this work.

## Liste des figures

<b>Figure 01</b> Schéma de la rétrodiffusion de particules pour un angle $\theta$ dans un angle solide $d\Omega$ .....	16
<b>Figure 02</b> Spectres obtenus pour une cible comportant 3 types d'atomes cibles, légers, moyens et lourds, dans les cas d'une cible ultra mince, une cible mince et une cible épaisse .....	17
<b>Figure 03</b> Exemples de variation du coefficient $K$ de rétrodiffusion élastique avec la masse de l'atome cible, l'angle de diffusion et la masse de l'ion incident .....	19
<b>Figure 04</b> principes de l'émission de rayonnement X induite par un faisceau de protons .....	26
<b>Figure 05</b> Principe d'une installation d'analyse par faisceau d'ions.....	28
<b>Figure 06</b> Schéma descriptif de l'évaporateur à effet Joule du CRNA .....	31
<b>Figure 07</b> Dépôt d'aluminium d'épaisseur 256 Å sur un substrat de charbon .....	31
<b>Figure 08</b> Dépôt d'or d'épaisseur 9 Å sur une couche d'aluminium d'épaisseur 238 Å sur un substrat de charbon .....	32
<b>Figure 09</b> Dépôt d'aluminium sur une couche d'argent sur un dissolvant (KI) sur un substrat de verre .....	32
<b>Figure 10</b> Dépôt d'aluminium d'épaisseur 200 Å sur une couche d'argent d'épaisseur 2500 Å sur une couche de charbon .....	33
<b>Figure 11</b> Image obtenu par MEB de la surface d'aluminium déposé par évaporation sur une couche d'argent sur un substrat de silicium .....	37
<b>Figure 12</b> Image obtenu par MEB de la surface d'aluminium déposé par évaporation sur une couche d'argent sur un dissolvant (KI) sur un substrat de verre .....	37
<b>Figure 13</b> Image obtenu par MEB de la surface d'argent déposé par évaporation sur un substrat de silicium .....	38
<b>Figure 14</b> spectres obtenus pour deux géométries différentes avec la structure correspondante.....	42
<b>Figure 15</b> Structure de la cible utilisée pour la détermination du profil de concentration.....	43
<b>Figure 16</b> Spectre NRA (triangles) simulé (trait plein) pour une cible (polymère) utilisant réaction $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$ à $E_d=1200\text{ keV}$ .....	44

<b>Figure 17</b> Spectre ERDA simulé pour une cible Si/C-H utilisant la réaction ${}^4\text{He}(\text{He},\text{H}){}^4\text{He}$ à $E_{\alpha}=2500$ keV .....	<b>45</b>
<b>Figure 18</b> Spectre en énergie EBS (symbole) et simulé (tiret), obtenus pour des protons sur une cible d'Al de 20 nm déposée sur un substrat de C.....	<b>46</b>
<b>Figure 19</b> Fit NRP obtenu avec le code IBA DataFurnace pour une cible Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> utilisant la résonance à 429 keV de la réaction ${}^{15}\text{N}(p,\alpha){}^{12}\text{C}$ .....	<b>47</b>

## Liste des tableaux

<b>Table 01</b> Caractéristiques des techniques d'analyse par faisceau d'ions .....	<b>14</b>
<b>Table 02</b> Les caractéristiques principales du microscope .....	<b>35</b>
<b>Table 03</b> Conditions expérimentales utilisées .....	<b>43</b>

## Table des matières

Introduction générale.....	12
<b>Chapitre 1 Aperçu sur les techniques d'analyse par faisceaux d'ions .....</b>	<b>14</b>
1.1 Caractéristiques communes.....	15
1.2 Technique d'analyse par rétrodiffusion élastique RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry) .....	16
1.2.1 Principe .....	16
1.2.2 Concept physique de la méthode RBS .....	17
1.2.2.1 Le facteur cinématique K .....	18
1.2.2.2 La section efficace de diffusion ( $d\sigma/d\Omega$ ).....	19
1.2.2.3 Les pouvoirs d'arrêts ( $dE/dx$ ).....	20
1.2.2.4 Le straggling.....	20
1.2.3 Profils de concentration.....	21
1.3. Technique d'analyse par détection du noyau de recul ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis).....	21
1.3.1 Principe.....	21
1.3.2 Paramètres d'analyse .....	22
1.3.2.1 Facteurs influençant les paramètres d'analyse .....	22
1.3.2.2 Diffusions multiples .....	22
1.3.2.3 Effet straggling .....	23
1.3.3 Sensibilité de la technique .....	23
1.3.4 Calcul du profile de concentration.....	23
1.4 Technique d'analyse par réactions nucléaires (NRA).....	24
1.4.1 Introduction .....	24
1.4.2 Principe.....	24
1.5 Technique d'analyse PIXE.....	25
1.5.1 Introduction .....	25
1.5.2 Principe.....	26
<b>Chapitre 2 Instrumentation.....</b>	<b>27</b>
2.1 Accélérateur et voie de faisceau .....	28
2.1.1 Etalonnage de l'accélérateur .....	28
2.2 Elaboration des couches minces.....	29
2.2.1 Dépôt physique en phase vapeur PVD .....	29

2.2.1.1	Description de la technique d'évaporation (Evaporateur).....	29
2.2.1.2	Description de l'évaporateur du CRNA .....	30
2.2.2	Dépôt chimique en phase vapeur CVD .....	31
2.2.2.1	Description de la méthode CVD.....	31
2.2.3	Préparation du substrat .....	31
2.2.3.1	Polissage mécanique.....	32
2.2.3.2	Dégraissage chimique.....	32
2.3	Utilité d'un microscope électronique .....	32
2.3.1	Microscope électronique à balayage PHILIPS XL 30 ESEM FEG .....	34
2.3.3.1	Généralités.....	34
<b>Chapitre 3 Code de simulation IBA DataFurnace.....</b>		<b>39</b>
3.1	Codes de simulation (analyse IBA .....	40
3.2	Code IBA DataFurnace .....	40
3.2.1	Introduction .....	40
3.2.2	Fichiers input.....	40
3.2.2.1	Fichier «SPC».....	40
3.2.2.2	Fichier structure «STR» .....	41
3.2.2.3	Fichier géométrie «GEO».....	41
3.2.2.4	Fichier «PRF».....	42
3.3	Reproduction d'un exemple (recommandé) donné par l'élaborateur d'IBA DataFurnace .....	42
3.3.1	Introduction .....	42
3.3.2	Calibration d'une chaîne de détection .....	42
3.4	Utilisation du code IBA DataFurnace dans l'analyse d'un polymère .....	43
3.4.1	Introduction .....	43
3.4.2	Résultats .....	43
3.5	Utilisation du code IBA DataFurnace pour l'analyse d'un spectre ERDA .....	45
3.5.1	Introduction .....	45
3.5.2	Résultats .....	45
3.6	Application du code IBA DataFurnace pour l'analyse d'un spectre EBS.....	45

3.6.1	Introduction .....	45
3.6.2	Résultats .....	46
3.7	Application du code IBA DataFurnace au calcul du profil en profondeur des éléments légers .....	46
3.7.1	Introduction .....	46
3.7.2	Résultats .....	46
	Conclusion générale .....	48
	Bibliographie.....	49

## Liste des abréviations

CDTA : Centre de Développement des Technologies  
CRNA : Centre de Recherche Nucléaire d'Alger CVD :  
Dépôt Chimique en Phase Vapeur  
EBS : Spectrométrie de Rétrodiffusion Élastique  
ERDA : Technique d'Analyse par Détection du Noyau de Recul  
ESEM : Microscope Electronique à Balayage Environnemental  
FEG: Canon à Emission de Champ  
GISA : Simulation Interactive Graphique et Animation  
GSED : Détecteur d'Electrons Secondaires Gazeux  
IBA : Analyse par Faisceaux d'Ions  
MCERD : Monte Carlo Simulation for Elastic Recoil Detection  
MEB : Microscope Electronique à Balayage  
NDF : Nuno's DataFurnace  
NRA : Analyse par Réactions Nucléaires  
PIGE : Emmision Gamma Induite par Particules Chargées  
PIPS : Passivated Implanted Planar Silicon  
PIXE : Emission de Photons X Induite par Particules  
PVD : Dépôt Chimique en Phase Vapeur  
RBS : Spectroscopie de rétrodiffusion de Rutherford  
VDG : Accélérateur de Van De Graff

# Introduction générale

Les logiciels d'analyse de données issues des analyses par faisceaux d'ions sont des programmes informatiques conçus pour extraire des informations sur l'échantillon à partir des spectres énergétiques. L'information désirée inclut l'identification des éléments de l'échantillon, leurs concentrations, densités et les épaisseurs des couches. Au mieux, un spectre énergétique peut être converti en profil de concentration de tous les éléments contenus dans l'échantillon.<sup>1</sup> (Barradas, 2015).

De nombreux codes de simulation ont été développés pour traiter quantitativement les spectres IBA (Ion Beam Analysis)<sup>2</sup> (Mayer, 2011), notamment RUMP, SENRAS, GISA, RBX et SIMNRA. Le traitement est effectué en 3 étapes : a) supposer une certaine structure ; b) calculer le spectre correspondant à la structure attribuée ; c) comparer avec le spectre collecté. Cette procédure est répétée jusqu'à l'obtention d'ajustement raisonnable. Cette approche est fastidieuse et a un certain nombre d'inconvénients majeurs.<sup>3</sup> (Boudreault, 2002).

Le présent travail concerne spécifiquement l'utilisation du code DataFurnace pour les analyses par faisceaux d'ions. Les différentes techniques IBA se distinguent par les différents types d'interactions qui se produisent lorsqu'un faisceau d'ions frappe une cible solide. Lorsqu'un ion incident est rétrodiffusé par un noyau atomique cible, beaucoup d'information peuvent être obtenues telles que la composition et la concentration des éléments contenus dans la cible.

---

<sup>1</sup> BARRADAS, N.P et RAUHALA, E. 2009. Data analysis software for ion beam analysis: Joint ICTP/IAEA Workshop on Advanced Simulation and Modeling for Ion Beam Analysis.

<sup>2</sup> MAYER, M et al. Computer simulation of ion beam analysis: Possibilities and limitations, Nuclear instruments and methods in physics research B: Beam Interactions with Materials and Atoms, n° 24 (2011) 3006 - 3013.

<sup>3</sup> BOUDREAUULT, G. Accurate ion beam analysis. Thèse de doctorat : Génie électronique et électrique. Université de Surrey, 2002

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à l'analyse des échantillons cibles métalliques sous forme de multicouches minces déposées sur des substrats de silicium et de graphite, élaborés par évaporation thermique. Nous avons utilisés le Microscope électronique à balayage pour obtenir des informations sur la morphologie et la composition élémentaire de ces échantillons cibles. Nous donnons un aperçu sur le travail mené au niveau du CRNA dans le chapitre 2.

Nous avons bénéficié d'un outil puissant pour le traitement des données ; il s'agit du code DataFurnace. Il a été développé à Surrey/ Ion Beam Center. Nous présentons une vue d'ensemble sur l'utilisation de DataFurnace dans le chapitre 3.

# Chapitre 1

## Aperçu sur les techniques d'analyse par faisceaux d'ions (Ion Beam Analysis-IBA)

## 1.1 Caractéristiques communes

L'analyse par faisceaux d'ions (IBA) définit l'ensemble des méthodes fondées sur l'interaction d'un faisceau de particules chargées énergétiques (de l'ordre du MeV, en général) avec les constituants nucléaires et atomiques du milieu solide concerné.

Cette analyse permet d'obtenir des informations sur le matériau bombardé telles que :

- Composition élémentaire....
- Détermination de la concentration....
- Détermination de l'épaisseur et du gradient de concentration....

Les quatre méthodes les plus couramment utilisées sont :

- La RBS (Rutherford Backscattering Spectroscopy)
- La NRA (Nuclear Reaction Analysis)
- La PIGE (Particle Induced  $\gamma$ -ray Emission)
- La PIXE (Particle Induced X-ray Emission)

Les particules les plus couramment utilisées dans le domaine du MeV sont P, d, et  $\alpha$ .

Le ralentissement de la particule incidente dans le solide est un paramètre commun à toutes ces méthodes. Il renseigne sur la relation énergie-profondeur. Il est défini par la perte d'énergie qui est due aux interactions Coulombiennes inélastiques avec les électrons du milieu ralentisseur. Le tableau 1 récapitule les spécificités de chaque analyse.

Méthode	Eléments consternées	Profondeur analysée	Résolution en profondeur (nm)	Sensibilité ( $\mu\text{g/g}$ )	Sélectivité	Domaine d'application
Emission X induite par particule (PIXE)	$Z \geq 11$	0.1 à quelque $\mu\text{m}$	500 à 1000	5 à 100 (sur cible épaisse)	Excellente	Analyse multiélémentaire très sensible pour $Z > 11$ Etalonnage réactif
Rétrodiffusion élastique de la particule incidente (RBS)	$Z \geq 5$	0.001 à 10 $\mu\text{m}$	10 à 50	100 à 1000	Bonne pour $Z < 30$ , isotopique	Elément lourd dans une matrice légère Profil de concentration Calibration des autres méthodes Etalonnage absolu
Diffusion élastique de l'atome cible (ERDA)	Atome cible plus léger que la particule	0.1 à 0.5 $\mu\text{m}$ (en réflexion), 1 à 10 $\mu\text{m}$ (en transmission)	20 à 50	10 à 100	Excellente, isotopique	Dosage d'hydrogène avec $4\text{He}$ Profil de concentration Etalonnage absolu
Observation directe de la réaction nucléaire (NRA)	$Z < 15$	Quelque $\mu\text{m}$	5 à 100	1 à 1000	Très bonne, isotopique	Dosage des éléments légers Profil de concentration Etalonnage absolu ou relative
Emission $\gamma$ induite par particules (PIGE)	$3 < Z < 30$	10 à 50 $\mu\text{m}$	500 à 1000	100 à 1000	Très bonne, isotopique	Analyse multiélémentaire souvent associée au PIXE pour le dosage complémentaire des éléments légers

Table 01. Caractéristiques des techniques d'analyse par faisceaux d'ions.

## 1.2 Technique d'analyse par rétrodiffusion élastique RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry)

La technique d'analyse par rétrodiffusion élastique est l'une des plus anciennes techniques d'analyse de surface (Rubin 1959). Elle permet d'analyser les éléments de numéro atomique moyen ou élevé sur un substrat plus léger. Elle est cependant très peu sensible pour les éléments légers contenus dans une matrice plus lourde.

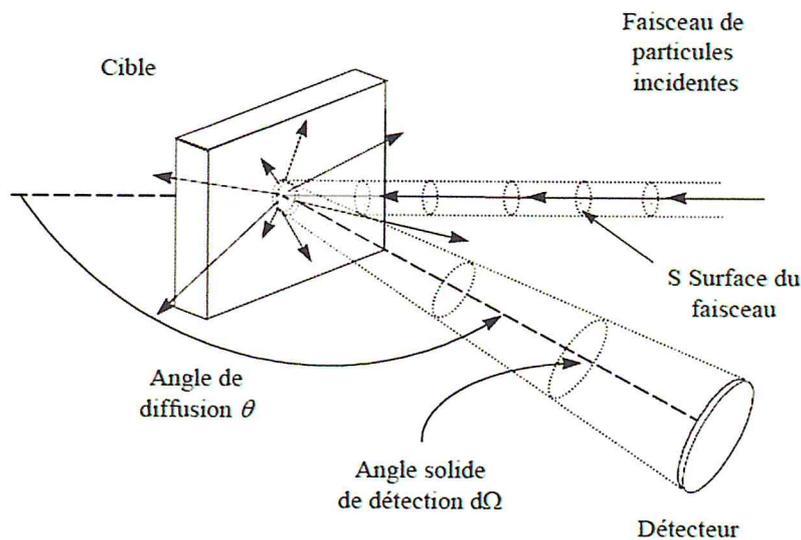
### 1.2.1 Principe

La technique d'analyse par rétrodiffusion élastique Rutherford est basée sur l'interaction Coulombienne entre une particule incidente (le plus souvent des  $\alpha$  d'énergie comprise entre 1.5 MeV et 2.5 MeV) et les noyaux des atomes de la cible solide (voir le schéma de la figure 1). Soit  $M_1$  la masse de particules incidentes d'énergie  $E_0$  arrivant sous un angle  $\theta$  sur une cible contenant un élément de masse  $M_2$ . Après collision, les particules rétrodiffusées sont détectées avec une énergie  $E_1$  à un angle  $\theta$  tel que:

$$E_1 = KE_0$$

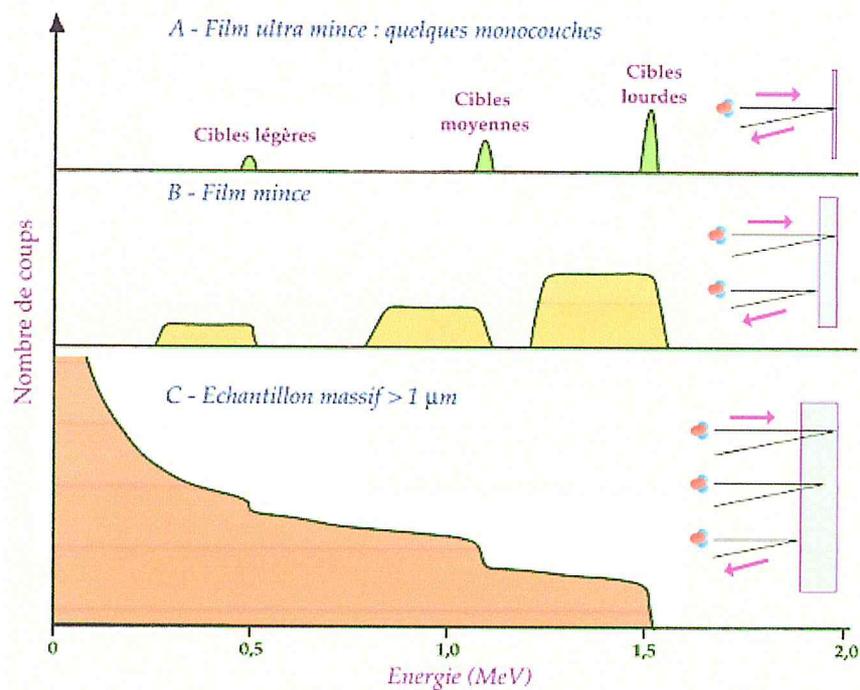
K est le facteur cinématique donné par :

$$K = \frac{E_1}{E_0} = \left[ \frac{M_1 \cos \theta + (M_2^2 - M_1^2) \sin^2 \theta}{M_1 + M_2} \right]^{1/2}$$



**Figure 01** Schéma de la rétrodiffusion de particules pour un angle  $\theta$  dans un angle solide  $d\Omega$

Le spectre obtenu par cette méthode est constitué d'une succession de pics étroits pour un échantillon mince et présente une forme particulière constituée de marches successives ayant un front à une énergie caractéristique de chaque élément constitutif et une hauteur en première approximation proportionnelle à la concentration atomique de l'élément si la cible est épaisse. En effet, l'énergie du faisceau incident diminue en fonction de la profondeur de l'échantillon. La hauteur du pic est fonction de la concentration de l'élément percuté par le faisceau et nous pouvons donc par cette méthode réaliser le profil de concentration d'un élément donné selon la profondeur de l'échantillon (résolution de 10 nm environ). Cette méthode s'applique particulièrement bien à l'analyse des éléments lourds dans un substrat léger.



**Figure 02.** Spectres obtenus pour une cible comportant 3 types d'atomes cibles, légers, moyens et lourds, dans les cas d'une cible ultra mince, une cible mince et une cible épaisse.

### 1.2.2 Concept physique de la méthode RBS

Nous décrivons la rétrodiffusion de Rutherford comme une collision élastique entre une particule d'énergie cinétique élevée du faisceau incident (le projectile) et une particule stationnaire située dans l'échantillon (la cible). La collision élastique dans ce contexte signifie qu'aucune énergie n'est transférée entre la particule incidente et la particule stationnaire pendant la collision, et l'état de la particule stationnaire n'est pas modifié. Quatre paramètres physiques permettent de définir les possibilités et limitations de l'analyse RBS.

- Le facteur cinématique  $k$  ; défini comme le rapport entre l'énergie après la diffusion et l'énergie incidente.
- La section efficace de diffusion  $d\sigma/d\Omega$  ; la probabilité à laquelle l'ion se diffuse a un certain angle  $\theta$ .
- Le pouvoir d'arrêt ( $dE/dx$ ) ; décrit l'arrêt des ions dans la cible.
- Le straggling ; est la dispersion en énergie.

### 1.2.2.1 Le facteur cinématique K

Soit une particule de masse  $M_1$ , de vitesse  $v_0$  et d'énergie  $E_0$ , et une particule de masse  $M_2$  considérée au repos dans le référentiel du laboratoire. Les forces coulombiennes étant conservatives, on peut exprimer le principe de conservation de l'énergie cinétique de la façon suivante :

$$1/2M_1v_0^2 = 1/2M_1v_1^2 + 1/2M_2v_2^2$$

Et de conservation de l'impulsion :

$$M_1v_0 = M_1v_1 \cos\theta + M_2v_2 \cos\phi$$

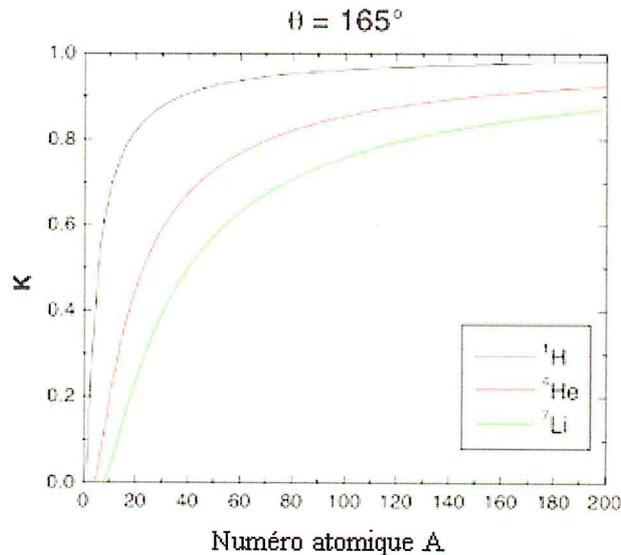
$$\text{Et } 0 = M_1v_1 \sin\theta - M_2v_2 \sin\phi$$

Avec  $v_1$  vitesse de la particule de Masse  $M_1$  après la collision,  $\theta$  et  $\phi$  les angles formés par les directions respectivement des particules  $M_1$  et  $M_2$  après la collision avec la direction de la particule  $M_1$  avant la collision.

Si  $M_1 \leq M_2$  on peut définir le facteur cinématique  $K$  qui est égal au rapport de l'énergie du projectile avant et après la collision sous la forme :

$$k = \frac{E_1}{E_0} = \left[ \frac{(M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta)^{1/2} + M_1 \cos \theta}{M_2 + M_1} \right]^2$$

Cette dernière équation explique comment, par la mesure à un angle  $\theta$  connu de l'énergie  $E_1$  des particules rétrodiffusées par la cible, et connaissant les caractéristiques  $M_1$  et  $E_0$  du faisceau incident, on peut identifier la masse  $M_2$  des atomes composant la cible.



**Figure 03.** Exemples de variation du coefficient  $K$  de rétrodiffusion élastique avec la masse de l'atome cible, l'angle de diffusion et la masse de l'ion incident.

#### 1.2.2.2. Section efficace de diffusion ( $d\sigma/d\Omega$ )

Pour une analyse quantitative des spectres RBS, la probabilité qu'un ion rétrodiffusé soit détecté à une géométrie donnée doit être connue. La section efficace de diffusion sert à déterminer le nombre d'atomes cibles par unité de surface à partir d'un détecteur. Ce dernier reçoit les particules rétrodiffusées dans un angle solide de détection ( $d\Omega$ ), à l'angle moyen  $\theta$ , par rapport à la direction du faisceau incident sur la cible.

Pour calculer la section efficace de diffusion qui est notée par  $d\sigma/d\Omega$  (habituellement définie en barn ( $1\text{barn}=10^{-24}\text{cm}^2$ )), il faut prendre en considération le modèle de la force induite pendant la collision entre le projectile et la cible. Cette force est décrite par la force répulsive coulombienne.

La formule de la section efficace dans le repère de laboratoire est comme suit :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) = \left[\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E_0}\right]^2 \times \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left[1 - \left(\frac{M_1}{M_2}\right) \sin \theta\right]^2 + \cos^2 \theta}{\left[1 - \left(\frac{M_1}{M_2}\right) \sin \theta\right]^2}^{\frac{1}{2}}$$

Où :

$(d\sigma/d\Omega)$  : section efficace différentielle de Rutherford. Elle est exprimée en barn/stéradian qui est approximativement égale à la taille du noyau atomique.

$E_0$  : l'énergie des ions incidents avant la rétrodiffusion.

$Z_1, Z_2$  : les nombres atomiques des atomes incidents et cibles respectivement.

$M_1, M_2$  : masses atomiques du projectile et de l'atome cible respectivement.

$$e^2 = 1.44 \cdot 10^{-13} \text{ MeV} \cdot \text{cm}.$$

### 1.2.2.3. Pouvoir d'arrêt (dE/dx)

Si un faisceau d'ions pénètre dans la matière, il perd de l'énergie à cause des collisions avec les électrons (pouvoir d'arrêt électronique  $S_e$ ) et les noyaux cibles (pouvoir d'arrêt nucléaire  $S_n$ ). La perte d'énergie de l'ion rétrodiffusé est plus grande lorsque la cible est épaisse.

Le pouvoir d'arrêt électronique est principalement dû à des collisions inélastiques impliquant des pertes d'énergie petites ainsi qu'une déviation angulaire faible de la trajectoire ionique.

$$S_e = - \frac{Z_1^2 q^4 n_e}{4\pi\epsilon_0^2 m_e v^2} \ln \frac{2m_e v^2}{I}$$

Le pouvoir d'arrêt nucléaire est dû à des collisions élastiques qui peuvent donner lieu à de grands angles de dispersion et à des pertes d'énergie discrètes de l'ion par collision.

$$S_n = - \frac{Z_1^2 Z_2^2 q^4 N}{4\pi\epsilon_0^2 M_2 v^2} \ln \frac{b_{max}}{b_{min}}$$

Où,  $Z_1$  et  $Z_2$  sont les numéros atomiques respectivement de l'ion et de la cible,  $q$  la charge électronique,  $N$  est le nombre d'atomes-cible par unité de volume,  $m_e$  la masse de l'électron,  $v$  la vitesse de l'ion incident et  $I$  est une valeur moyenne de l'énergie d'ionisation des atomes cibles.

Comme les mesures dans la méthode RBS, sont effectuées avec des ions légers d'énergie incidente  $E_0 \geq 500 \text{ keV}$ , le pouvoir d'arrêt nucléaire est négligeable.

La superposition de  $S_n$  et  $S_e$  donne le pouvoir d'arrêt total  $S$ . Il est défini par la formule :

$$S(E) = - \frac{dE}{dx} = S_n + S_e$$

### 1.2.2.4. Straggling

Les interactions en grand nombre de l'ion avec les électrons et les noyaux dans l'échantillon sont sujettes à des fluctuations statistiques que l'on désigne sous le terme de "straggling". En d'autres termes, les particules ayant la même énergie et la même vitesse initiale auront des énergies différentes après avoir traversé la même profondeur dans la matière.

Bohr a estimé la valeur de la dispersion en énergie dans un substrat d'épaisseur  $t$  par une gaussienne de variance :

$$\Omega_B^2 = 4\pi (Z_1 e^2)^2 N Z_2 t$$

Où  $N$  est la densité de la cible,  $Z_1$ ,  $Z_2$  sont les nombres atomiques du projectile incident et de la cible respectivement,  $e$  est la charge électronique et  $t$  l'épaisseur de la couche étudiée.

### 1.2.3 Profils de concentration

Comme on l'a vu plus haut, l'échelle d'énergie peut être convertie en échelle de profondeur pour chacun des éléments présents dans la cible. Chaque composante élémentaire d'un spectre est ainsi une image du profil de concentration de chaque élément dans l'échantillon.

## 1.3 Technique d'analyse par détection du noyau de recul ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis)

### 1.3.1 Principe

Un faisceau de particules de masse  $M$  et d'énergie  $E_0$  arrive sous un angle  $\alpha$  sur une cible contenant un élément de masse  $m$ . Après collision, les noyaux de recul sont détectés avec une énergie  $E_1$  à un angle  $\theta$ :

$$E_1 = KE_0$$

$K$  est le facteur cinématique donné par :

$$K = 4 \frac{m M}{(m + M)^2} \cos^2 \theta$$

Pour une détection à partir d'une profondeur à l'intérieur de la cible, les ions incidents et les noyaux de recul perdent une quantité d'énergie  $\Delta E_1$  et  $\Delta E_2$  respectivement dans l'échantillon ce qui donne une énergie :

$$E_2(x) = (E_0 - \Delta E_1)K - \Delta E_2$$

$$[S] = \left[ \frac{KS_1}{\sin \alpha} + \frac{S_2}{\sin(\theta - \alpha)} \right] = KE_0 - \left[ \frac{KS_1}{\sin \alpha} + \frac{S_2}{\sin(\theta - \alpha)} \right] x$$

$S$  est le pouvoir d'arrêt total,  $S_1$  et  $S_2$  sont les pouvoirs d'arrêt des ions incidents et des noyaux de recul respectivement.

L'utilisation d'un absorbant pour l'arrêt des particules non désirées introduit une perte d'énergie supplémentaire  $\Delta E_\alpha$ , ce qui donne une énergie détectée :

$$E_d(x) = E_2(x) - \Delta E_\alpha$$

Le nombre des ions de recul détectés est donné par :

$$n(E) dE = Q \Omega \sigma(E) C(x) dx$$

La section efficace de recul élastique est donnée par :

$$\sigma(E_1) = \left[ \frac{z_1 z_2 e^2 (m + M)}{2mE_1} \right]^2 \frac{1}{\cos^3 \theta}$$

$Z_1$  et  $Z_2$  sont les numéros atomiques du projectile et de l'atome cible respectivement,

$Q$  est le nombre de particules incidentes,

$e$  est la charge de l'électron,

$\Omega$  est l'angle solide de détection,

$C(x)$  est la quantité d'hydrogène détectée à la profondeur  $x$ .

$E_1$  est l'énergie de l'ion incident juste avant la collision :

$$E_1 = E_0 - \frac{S_1}{\sin \alpha} x$$

### 1.3.2 Paramètres d'analyse

#### Facteurs influençant les paramètres d'analyse

Les paramètres influençant l'analyse par la technique ERD sont :

- La résolution en profondeur et en énergie
- La sensibilité de la technique
- La profondeur atteinte

La résolution en profondeur résulte de la contribution de plusieurs facteurs :

- La résolution propre en énergie du détecteur.
- La dispersion en énergie causée par les diffusions multiples.
- La géométrie de détection et élargissement du faisceau.
- La dispersion en énergie causée par les irrégularités de la surface de l'échantillon
- Les phénomènes de "straggling" dans la cible et dans l'absorbant.

#### Diffusions multiples

Lorsqu'un faisceau de particules pénètre dans la matière, les particules rentrant en collision élastique avec les atomes de la cible sont déviés de leur direction initiale. Ce phénomène engendre une dispersion en énergie, qui affecte la résolution en profondeur. Cette dispersion provient de la :

- Divergence angulaire qui traduit la déviation des particules incidentes de leur direction initiale.
- Dispersion latérale qui est l'écart latéral par rapport par rapport à la direction du faisceau incident.

### Effet straggling

Une particule chargée se déplaçant dans un matériau perd de l'énergie via plusieurs interactions, de façon aléatoire. La perte d'énergie est donc soumise à un processus statistique. Des particules identiques ayant la même vitesse initiale ne perdent pas exactement la même énergie après avoir traversé une distance donnée. La perte d'énergie présente une certaine dispersion. Cette dispersion est connue sous le nom de « straggling ». Niels Bohr est le premier à évaluer l'énergie « straggling » :

$$\Omega_B = 4 \pi N (Z_1 e^2)^2 Z_2 t$$

La dispersion totale en énergie est donnée sous la forme quadratique des contributions Individuelles :

$$\Delta E^2 = \Delta E^2_d + \Delta E^2_g + \Delta E^{i2}_s + \Delta E^{O2}_s + \Delta E^{i2}_{ms} + \Delta E^{O2}_{ms} + \Delta E^2_\alpha$$

#### 1.3.3 Sensibilité de la technique

La sensibilité est définie comme étant la quantité minimale d'un élément que l'on peut détecter. Pour un nombre d'événements détectés  $n(E) dE$  dans la gamme d'énergie  $E$  et  $E+dE$ , la quantité de l'élément présent dans une couche d'épaisseur  $dx$  à une profondeur  $x$  est déterminée par l'équation :

$$n(E) dE = Q \Omega \sigma(E_1) C(x) dx$$

- ✓ La dépendance de la section efficace du numéro atomique  $Z_1$  montre l'intérêt des ions lourds pour l'amélioration de la sensibilité.
- ✓ La sensibilité est d'autant meilleure que l'énergie des particules incidentes est faible.
- ✓ Une détection au voisinage de  $90^\circ$  donne une haute sensibilité mais réduit la résolution.
- ✓ La sensibilité peut être réduite par un bruit de fond des protons adsorbés sur la surface de l'échantillon.

#### 1.3.4 Calcul du profile de concentration

La détermination du profile de concentration d'un élément consiste en la transformation du spectre en énergie  $Y(E)$  de cet élément en sa distribution spatiale.

Un des principes utilisés consiste à diviser la couche irradiée en une succession de sous-couches d'épaisseurs égales ; La concentration moyenne à une profondeur  $x$  est donnée par :

$$C(x) = N \frac{H \sigma_{RBS}(E_0) t}{H_0 \sigma_{rec}(E_1) \Delta x}$$

N représente la densité du substrat,

H et  $H_0$  sont les rendements moyens de recul et de rétrodiffusion de Rutherford,

$\sigma_{RBS}(E_0)$  est la section efficace de rétrodiffusion de Rutherford définie pour les particules incidentes à l'énergie  $E_0$ ,

$\sigma_{rec.}(E_1)$  est la section efficace de recul élastique à l'énergie  $E_1$ ,

$\Delta x$  est l'épaisseur d'une sous-couche,

t est l'épaisseur du substrat correspondant au canal de surface dans le spectre de rétrodiffusion de Rutherford.

## 1.4. Technique d'analyse par réactions nucléaires (NRA)

### 1.4.1 Introduction

L'utilisation des réactions nucléaires pour l'analyse des surfaces des matériaux constitue un champ dans lequel beaucoup de travaux ont été entrepris, que ce soit sur le plan théorique ou expérimental où des applications spécifiques n'arrêtent pas de se développer.

### 1.4.2 Principe

Pour qu'une réaction nucléaire puisse avoir lieu, il est indispensable que l'énergie des particules incidentes soit suffisamment élevée pour surmonter l'énergie potentielle électrostatique. Cette barrière Coulombienne est proportionnelle à la quantité  $z_1 z_2 / r$  où r est le rayon de l'interaction particule noyau-cible, et  $z_1$   $z_2$  les numéros atomique de la particule incidente et du noyau cible.

Une réaction nucléaire est le plus souvent donnée sous la forme :

A ( $m_a, m_b$ ) B

Où ;  $(1 + x)^n = 1 + \frac{nx}{1!} + \frac{n(n-1)x^2}{2!} + \dots$

A est le noyau cible,

B, le noyau résiduel et

$m_a, m_b$ , les particules incidentes et émises respectivement.

L'énergie de la particule émise est déterminée théoriquement par la conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie totale de la réaction. Elle est donnée par :

$$E_3 = \frac{m_1 m_3 E}{(M_4 + m_3)^2} \left[ 2 \cos^2 \theta + \frac{M_4 (m_3 + M_4)}{m_1 m_3} \left( \frac{Q}{E} - \frac{m_1}{M_4} + 1 \right) \right. \\ \left. \pm 2 \cos \theta \left( \cos^2 \theta + \frac{M_4 (M_3 + M_4)}{m_1 m_3} \left[ \frac{Q}{E} - \frac{m_1}{M_4} + 1 \right] \right)^{x^{1/2}} \right]$$

E est l'énergie de la particule incidente,  $m_1$  et  $m_3$  sont les masses de la particule incidente et résiduelle respectivement,  $\theta$  est l'angle, dans le système du laboratoire entre les directions des particules incidentes et émises.

Q est l'énergie délivrée par la réaction. Elle est donnée par la relation :

$$Q = (m_1 + M_2)c^2 - (m_3 + M_4)c^2$$

c étant la vitesse de la lumière.

Les positions des pics dans le spectre en énergie sont facilement calculées à partir des équations précédentes.

Le nombre d'évènements  $dn$  détectés à partir d'une réaction ayant lieu dans une tranche  $dx$  située à une profondeur  $x$  est donnée par l'expression :

$$dn = I \varepsilon \sigma(\theta, E) \Omega C(x) dx$$

I, est le nombre de particules incidentes ar seconde,

$\varepsilon$ , l'efficacité du détecteur,

$\sigma(\theta, E)$ , la section efficace différentielle à l'énergie E et pour l'angle de détection  $\theta$ ,

$\Omega$ , l'angle solide de détection,

$C(x)$ , la concentration de l'élément à analyser à la profondeur  $x$ .

Cette formule est uniquement valable si on néglige les effets de la distribution des pertes d'énergie (straggling) et de la dispersion en énergie du faisceau de particules incidentes. En tenant compte de ces deux effets, l'expression précédente devient :

$$dn = I \varepsilon \sigma(\theta, E) \Omega C(x) g(E_0, E_x) f(E_i, E_j, x) dE_i dE_j dx$$

## 1.5. Technique d'analyse PIXE

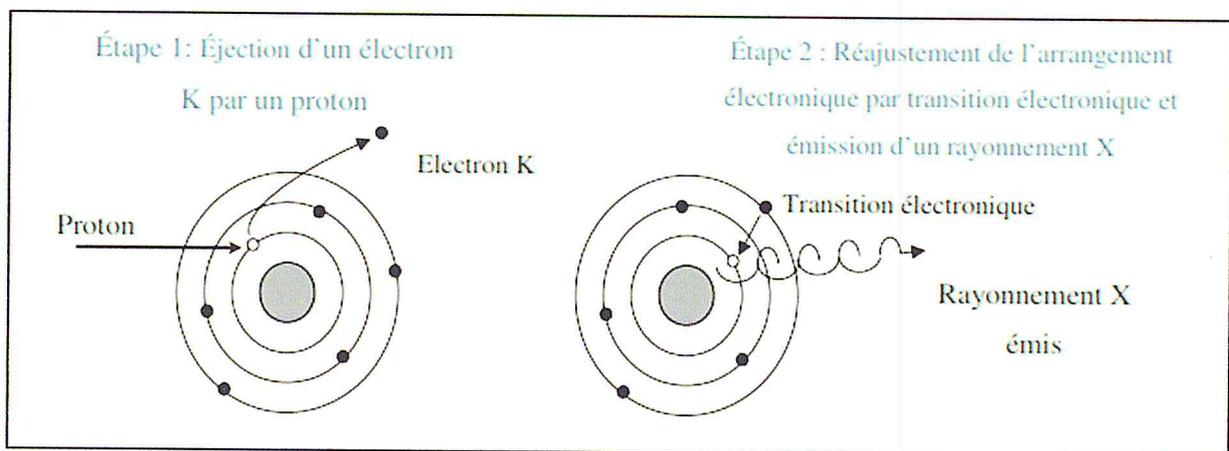
### 1.5.1 Introduction

L'émission de photons X induite par des particules, PIXE est une méthode puissante pour l'analyse élémentaire. La technique a été proposée en 1970 par Sven Johansson de l'Université de Lund (Suède) et développé par la suite avec ses collègues, Roland Akselsson et Thomas B Johansson. La technique PIXE est basée sur la détection de rayons X provenant d'un atome ionisé, par interaction avec un faisceau de particules chargées. La PIXE est non-destructive et peut analyser des éléments en trace, de numéro atomique  $Z > 11$  tels que Ti, Cr, Ni, Cu, Zn, As, Br, Rb, Sr, Zr, Ba, Pb, Th, U. Les avantages de la technique PIXE sont nombreux. Elle est

rapide : une irradiation d'une minute peut suffire. Elle est sensible; on peut mesurer des teneurs allant jusqu'à quelques parties par million (ppm). Elle ne détériore pas l'échantillon, ce qui est appréciable pour les objets précieux (bijoux, tableaux, papiers...).

### 1.5.2. Principe

La technique d'analyse PIXE utilise l'émission X provoquée par des particules chargées accélérées (généralement des protons) qui interagissent avec les atomes du matériau. Un proton qui passe à proximité d'un atome communique une partie de son énergie à un électron d'une couche interne (niveau K ou L) qui s'ensuit par un réarrangement des électrons (figure 5). Ce réarrangement s'accompagne d'un dégagement d'énergie, en émettant un rayon X caractéristique de l'élément à analyser.



*Figure 04 principes de l'émission de rayonnement X induite par un faisceau de protons*

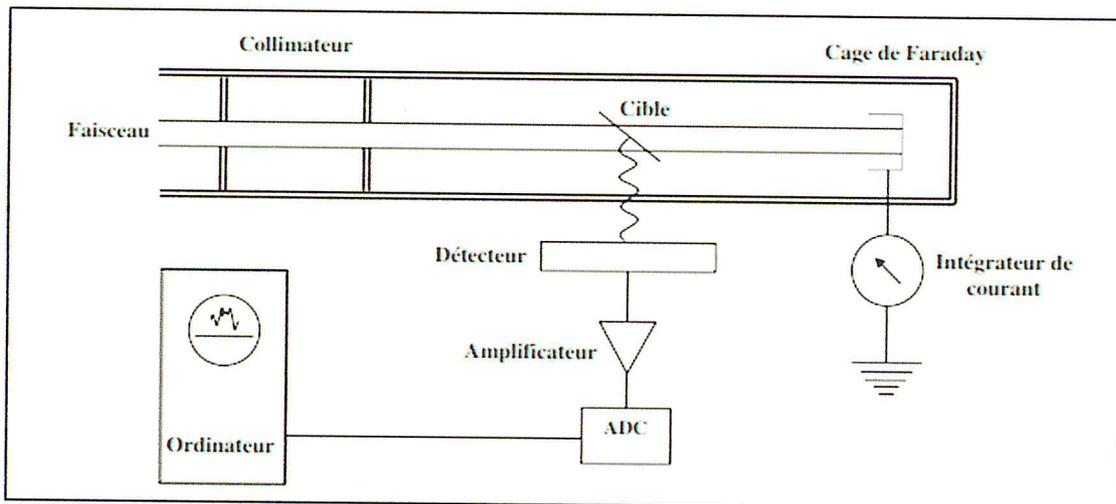
# Chapitre 2

## Instrumentation

## 2.1. Dispositif expérimental

Le dispositif typique d'analyse par faisceaux d'ions est constitué :

d'une source d'ions, d'un accélérateur de particules chargées, d'une ligne de faisceau, d'un collimateur définissant la taille du faisceau, d'un porte échantillon, d'un dispositif pour mesurer le nombre de particules incidentes, d'un dispositif de détection des rayonnements émis par l'échantillon et d'un logiciel pour analyser les spectres enregistrés.



*Figure 05 Principe d'une installation d'analyse par faisceau d'ions*

### 2.1.1 Accélérateur et voie de faisceau

L'accélérateur du CRNA est de type Van de Graaff 3.75 MV qui fournit les faisceaux d'ions  $H^+$ ,  $D^+$  et  $^4He^+$ . L'accélérateur étant vertical, le faisceau de particules après focalisation, est déflécté sous un angle de  $90^\circ$  par un électro-aimant d'analyse hautement stabilisé. Pour éviter la divergence du faisceau de particules, des lentilles électromagnétiques quadripolaires sont disposées le long du trajet du faisceau. Afin de réduire la surface du point d'impact du faisceau sur la cible, un diaphragme est placé juste à l'entrée de la chambre à réaction. La stabilité du réglage en forme et en position du point d'impact étant assurée par un système d'asservissement d'aimants de déviation tout au long de l'expérience.

### 2.1.2. Etalonnage de l'accélérateur

L'énergie des particules à la sortie de l'aimant d'analyse est proportionnelle au carré de l'induction magnétique régnant dans l'entrefer :

$$E = [(q r)^2 / 2m] B^2$$

La mesure du champ magnétique est basée sur le principe de précession du noyau autour de l'axe parallèle à la direction du champ magnétique dans lequel il s'y trouve. La fréquence de précession  $f$  est directement proportionnelle à l'intensité du champ magnétique :

$$f = G B$$

Ce qui donne :

$$E = M f^2$$

Pour tenir compte d'autres paramètres physiques et techniques, des termes correctifs sont introduits dans la relation précédente qui devient :

$$E = A f^2 + B f + C$$

Les constantes A, B, C sont déterminées à partir des résonances fines des réactions nucléaires dont l'énergie est connue avec une grande précision.

## 2.2 . Elaboration des couches minces

Les cibles utilisées ont été préparées aux laboratoires cible du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA) et Centre de Développement des Technologies Avancées (CDTA), nous allons tout d'abord nous intéresser aux deux différentes techniques d'élaboration des couches minces qui sont :

- la méthode PVD (dépôt physique en phase vapeur) : l'évaporation thermique.
- la méthode CVD (dépôt chimique en phase vapeur).

Puis, nous détaillerons les conditions opératoires mises en œuvre pour préparer des couches minces. Finalement, nous observerons, par microscopie électronique à balayage (MEB), la surface de la cible.

### 2.2.1 Dépôt physique en phase vapeur PVD

Cette technique permet de déposer, par évaporation d'un matériau donné, des couches minces sur un substrat.

#### 2.2.1.1. Description de la technique d'évaporation (Evaporateur)

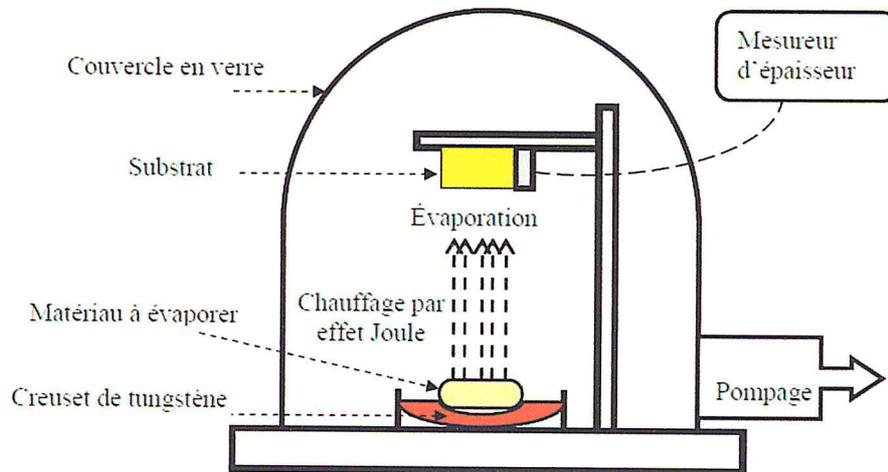
La technique d'évaporation thermique consiste à chauffer, dans une enceinte sous vide en forme de cloche et par effet Joule, un creuset contenant le matériau à déposer. La température de fusion du matériau (température maximale de chauffage) doit être obligatoirement inférieure à la

température de fusion du creuset. Une fois que la température de chauffage dépasse la température de liquéfaction du matériau, il y a formation de vapeurs d'entités atomiques ou moléculaires de celui-ci, sous une pression sensiblement supérieure à la pression à l'intérieur de l'enceinte. Ces entités s'échappent alors de la matrice du matériau et se propagent jusqu'à ce qu'elles rencontrent un obstacle (substrats, parois de l'enceinte, quartz). Des dépôts du matériau se forment progressivement sur les surfaces froides des substrats par condensation des entités évaporées. Afin d'avoir des dépôts de grande pureté, il est primordial de chauffer le creuset avant l'évaporation du matériau et de disposer, à l'intérieur de la cloche, d'un bon vide secondaire. Pour obtenir un dépôt de bonne qualité, l'augmentation de la température de chauffage (intensité) doit se faire de façon progressive afin d'éviter d'importantes fluctuations de la pression (vide) durant le processus d'évaporation.

#### 2.2.1.2. Description de l'évaporateur utilisé

La figure présentée ci-dessous montre le schéma général de l'évaporateur du CRNA. Cet appareil est composé essentiellement de :

- (i) Une chambre à vide étanche sous forme de cloche. Le vide à l'intérieure de l'enceinte est maintenu à une valeur meilleure que  $10^{-6}$  Torr grâce à un pompage primaire (pompe à palettes) couplée à une pompe secondaire à diffusion d'huile.
- (ii) Un creuset (source d'évaporation) en métal réfractaire contenant le matériau à évaporer est placé sur l'axe de l'enceinte.
- (iii) Un porte substrat circulaire pouvant supporter plusieurs substrats simultanément est placé sur l'axe de la cloche à une distance de l'ordre de 15 cm au-dessus du creuset.
- (iv) Une balance à quartz (cristal piézoélectrique) positionnée au voisinage du substrat et permettant le contrôle en ligne des épaisseurs des dépôts. Son principe est basé sur la mesure de la variation de la fréquence d'oscillation du quartz induite par l'augmentation de la masse du cristal suite au processus de dépôt.



**Figure 06** Schéma descriptif de l'évaporateur à effet Joule du CRNA

Les cibles réalisées par la méthode PVD (voir figures 7, 8 et 9) sont:

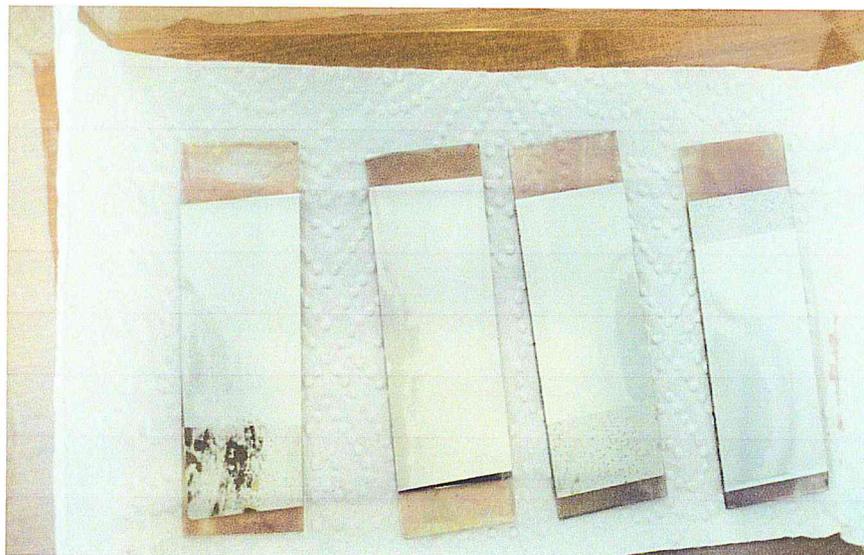
- Al/C
- Au/Al/C
- Al/Ag/Si
- Al/Ag/Ki/Verre



**Figure 07** Dépôt d'aluminium d'épaisseur 256 Å sur un substrat de charbon



*Figure 08 Dépôt d'or d'épaisseur 9 Å sur une couche d'aluminium d'épaisseur 238 Å sur un substrat de charbon*



*Figure 09 Dépôt d'aluminium sur une couche d'argent sur un dissolvant (KI) sur un substrat de verre*

### 2.2.2. Dépôt chimique en phase vapeur CVD

Dans le processus de dépôt CVD, les différents constituants de la phase gazeuse sont transportés par un courant gazeux et réagissent chimiquement entre eux au voisinage de la surface ou sur le substrat sous l'effet de la chaleur, d'un rayonnement ...

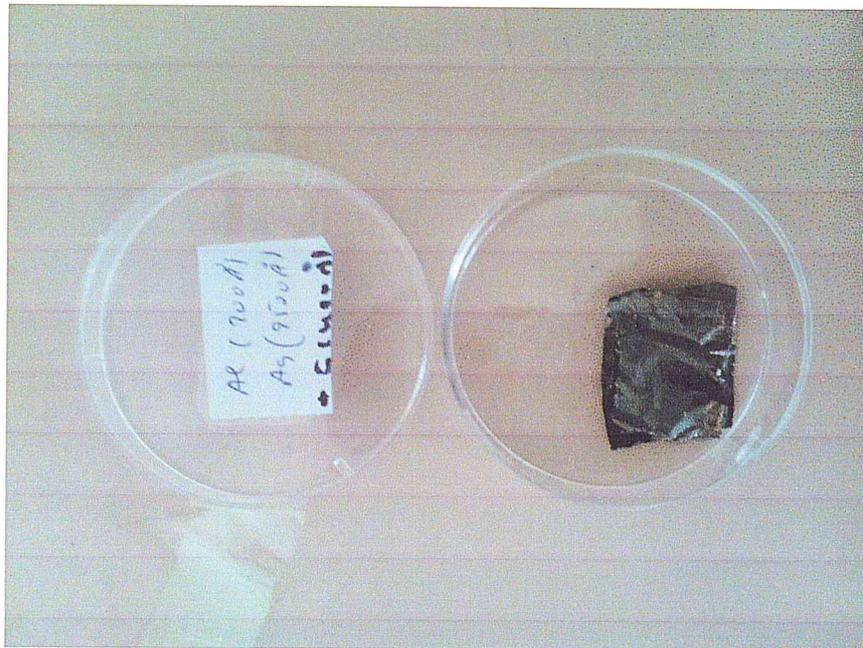
Cette méthode est largement utilisée pour le dépôt des couches minces isolantes, diélectriques ou semi-conductrices.

### 2.2.2.1 Description de la méthode CVD

Cette technique consiste à mettre en contact un composé volatil du matériau avec la surface à recouvrir, en présence ou non d'autres gaz. On provoque alors une ou plusieurs réactions chimiques, donnant au moins un produit solide au niveau du substrat. Les autres produits de réaction doivent être gazeux afin d'être éliminés hors du réacteur.

La création du dépôt ne peut se faire que dans des conditions thermodynamiques permettant la réaction. L'énergie nécessaire à la réaction est apportée sous forme thermique en chauffant soit l'intégralité de l'enceinte (four à paroi chaude) soit seulement le porte-substrat (four à parois froides).

L'échantillon cible Al/Ag/C est obtenu par la méthode CVD (voir figure 10).



**Figure 10** Dépôt d'aluminium d'épaisseur 200 Å sur une couche d'argent d'épaisseur 2500 Å sur une couche de charbon

### 2.2.3. Préparation du substrat

La nature des substrats, ainsi que leur état de surface, affectent énormément les propriétés physiques de dépôt. Pour obtenir une bonne qualité de ce dernier, quel que soit son procédé d'élaboration, il est nécessaire d'avoir des substrats dont la surface est soigneusement nettoyée afin d'éliminer toutes les impuretés ou les graisses qui pourraient être présentes. Cela permet d'éviter les éventuels problèmes d'adhérence et de provoquer une activation de la surface.

Le nettoyage se fait en deux traitements essentiels : nettoyage chimique et nettoyage ionique, qui sont précédés généralement par un polissage mécanique dans le cas des substrats métalliques

afin d'améliorer leurs états de surface.

#### 2.2.3.1 Polissage mécanique

Le polissage mécanique par abrasion s'effectue en deux étapes principales dans des conditions métallographiques standard (le dégraissage et le finissage). La première étape consiste à polir grossièrement la surface sur des papiers sablés en rotation, à pouvoirs abrasifs décroissants, et en présence d'eau pour éviter l'échauffement du substrat. Ce type de polissage permet d'éliminer qualitativement les impuretés qui adhèrent fortement et résistent en particulier à une attaque chimique. Il permet aussi de supprimer éventuellement tout défaut de surface. La seconde étape consiste à finir le polissage en frottant la surface sur des papiers de feutre en rotation, en présence d'alumine et de l'eau ou de la patte diamantée.

#### 2.2.3.2 Dégraissage chimique

Le nettoyage chimique permet d'éliminer les contaminations organiques telles que les poussières, les graisses, les résines, et les oxydes qui se trouvent sur la surface du substrat. Il s'opère sur deux bains de solvants organiques activés sous ultra-sons sur une durée qui dépend de l'état du substrat.

Le premier nettoyage est généralement réalisé dans un bain d'acétone et le second dans un bain d'éthanol pur.

### 2.3 Microscope électronique à balayage (MEB)

L'agrandissement des microscopes optiques est limité à une valeur d'environ 1000 fois. Un MEB utilise un faisceau d'électron à la place des photons utilisés dans un microscope optique. L'utilisation de particules accélérées de plus courte longueur d'onde permet de résoudre les deux inconvénients de la source lumineuse. La longueur d'onde du faisceau électronique est 100000 fois plus faible que celle de la lumière, et d'autre part l'ouverture de ce faisceau est très faible. Il en résulte que les appareils modernes permettent des agrandissements jusqu'à 100 000 fois sur la plupart des matériaux solides tout en conservant une profondeur de champ compatible avec l'observation de surfaces tourmentées.

#### 2.3.1 Microscope électronique à balayage PHILIPS XL 30 ESEM FEG.

##### 2.3.1.1 Généralités

Les microscopes ESEM de la série XL sont des appareils numériques de nouvelle génération

travaillant sous environnement Windows NT de Microsoft. Il permet de combiner une facilité d'utilisation à des performances exceptionnelles.

Il permet aussi de répondre aux différents besoins actuels des utilisateurs. Ce microscope ne fait aucun compromis sur la qualité et la fiabilité et constitue la référence en microscopie électronique à balayage. Ainsi il associe une optique de très haute qualité à un ensemble robuste et fiable. Suivant la taille des échantillons, leur nature (conducteur, non conducteurs, hydratés etc...), le type d'information et la résolution que nous souhaitons obtenir le microscope ESEM XL 30 FEG peut répondre aisément à ces exigences sachant que :

- La chambre est plus ou moins grande pour s'adapter à la taille habituelle de nos échantillons. Avec des déplacements de 50 mm par 50 mm en X et Y.
- Une colonne électronique adaptée à nos besoins grâce à la source d'électrons à canon à émission de champ (FEG) de type Schottky pour combiner la très haute résolution avec la microanalyse.
- Un vide poussé pour répondre à la demande grandissante qui est de pouvoir observer un échantillon avec moins de préparation possible.

ESEM XL 30 FEG a le même principe de fonctionnement que le microscope électronique à balayage classique. Dans sa forme de base ce microscope permet l'examen de la surface d'objets massifs par un faisceau fin, néanmoins, il possède des spécificités particulières, à savoir, deux techniques principales qui sont :

a- Le mode pression contrôlée encore appelée « Low Vacuum » :

Il permet d'observer des échantillons non conducteurs sans avoir à les métalliser en travaillant avec des pressions généralement comprises entre 0,1 et 2 mbar. Ce mode convient essentiellement à l'observation des matériaux isolants ou assez mauvais conducteurs qui nécessiteraient une métallisation dans le cas d'un vide poussé. Cependant, ce mode ne peut résoudre tous les problèmes car sa gamme de pression limitée ne lui permet pas d'observer des produits hydratés sans les dégrader mais aussi sa résolution est limitée par le type de détecteur nécessaire pour l'observation. Il est à noter également que le champ d'observation est moins large, ce qui restreint l'utilisation des faibles agrandissements. Il faut noter par ailleurs, qu'il existe des microscopes dits « low vacuum » utilisant le détecteur d'électrons rétrodiffusés en mode pression, ce qui limite la résolution et les agrandissements possibles, et ne délivre pas le même type d'information qu'un détecteur d'électrons secondaires. Ils ne conviennent donc pas aux applications les plus exigeantes.

b- Le mode ESEM (Environmental Scanning Electron Microscope) :

Ce type de microscope représente une avancée majeure dans le domaine de la microscopie à balayage, car il permet de travailler sur n'importe quel échantillon (non conducteur, hydraté etc...) avec une excellente résolution (dépendant du type de canon choisi W, LaB6 ou FEG) grâce à un détecteur d'électrons secondaires gazeux (GSED) qui fait l'objet du brevet en question. De plus on peut travailler avec des pressions jusqu'à 25 fois supérieures à celles utilisées dans le mode « low vacuum » permettant ainsi d'observer des produits complètement hydratés sans aucune détérioration, mais aussi la possibilité de chauffer l'échantillon jusqu' à 1000° C ou à 1500° C et d'introduire différents types de gaz dans la chambre d'échantillons. Ce qui fait de l'ESEM un véritable laboratoire d'expérimentation «in-situ » unique en son genre. Avec l'ESEM XL 30 FEG, le mode environnemental nous donne la possibilité de surmonter la contrainte d'une nécessité de la métallisation de l'échantillon, en introduisant à l'intérieure de la chambre des vapeurs d'eau (H2O) distillée ou d'autres gaz tels que l'azote, l'argon, l'oxygène etc..., à des pressions contrôlées jusqu'à 26 mbar avec le filament FEG ou bien un filament classique en tungstène. Cependant, on peut atteindre les 50 mbar avec un filament composé par un cristal d'héxaborure de lanthane (LaB6). Enfin, L'ESEM permet de faire de la véritable imagerie en électrons secondaires, à la résolution optimale du MEB, grâce à son détecteur d'électrons secondaires gazeux (GSED)

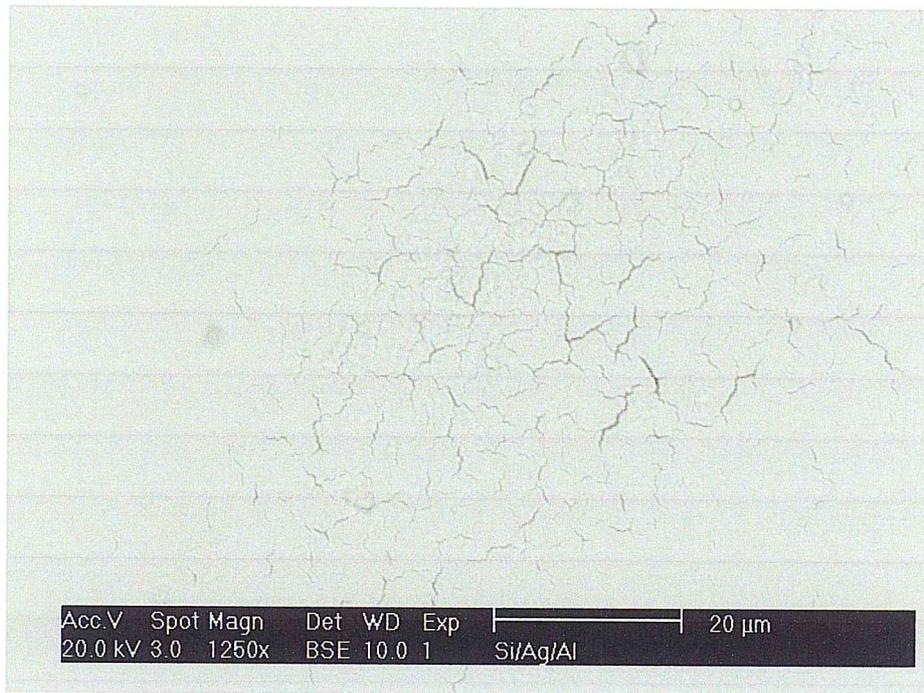
Les caractéristiques principales du microscope sont résumées dans le tableau suivant :

Résolution à 30kV - HiVAC mode	2nm
Résolution à 30kV - ESEM mode	2nm
Haute Tension	200V à 30kV
Courant de faisceau max	<10mA
Grandissement	38X - 600k
Pression	0,1 à 26 mb

*Table 02 Les caractéristiques principales du microscope*

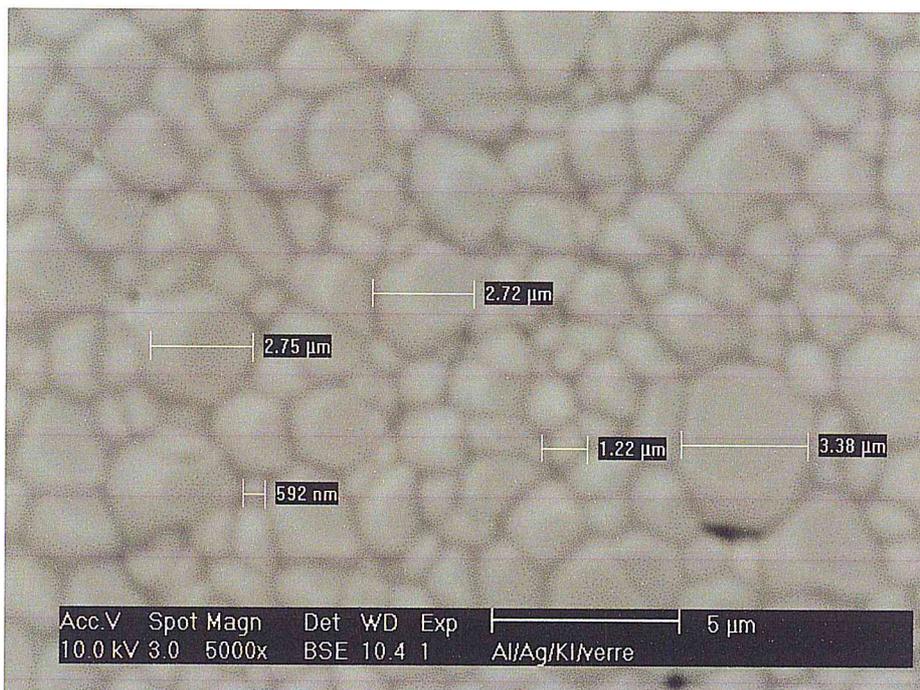
Sur les figures 11, 12 et 13 sont montrées les images MEB représentant l'état de surface des

cibles élaborées.



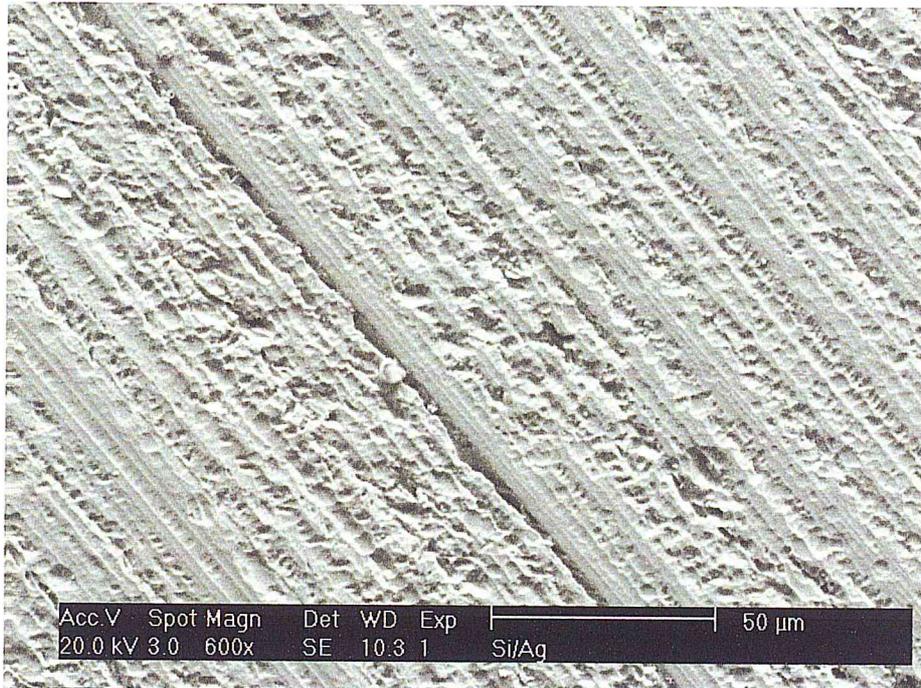
*Figure 11 Image obtenu par MEB de la surface d'aluminium déposé par évaporation sur une couche d'argent sur un substrat de silicium*

Sur cette image, nous observons la surface de l'échantillon, qui semble homogène, mais avec des zones entrecoupées de fissures de différentes tailles.



*Figure 12 Image obtenu par MEB de la surface d'aluminium déposé par évaporation sur une couche d'argent sur un dissolvant (KI) sur un substrat de verre*

Des particules de différentes tailles d'aluminium sont observées sur la surface. Cela peut être dû à l'oxydation de l'aluminium ou à recouvrement entre des atomes d'aluminium et d'argent.



*Figure 13 Image obtenu par MEB de la surface d'argent déposé par évaporation sur un substrat de silicium*

Nous pouvons remarquer sur cette image que la couche d'argent a pris la forme de la surface du silicium. Le dépôt d'argent étant homogène sur toute la surface.

# Chapitre 3

## Code de simulation IBA DataFurnace

### 3.1. Codes de simulation (analyse IBA)

Il existe deux générations de codes de simulation pour l'analyse des données IBA. La première génération englobe les codes suivants:

- GISA (Rauhala, 1984)
- RUMP (Thompson, 1985)
- RBX (Kótai, 1994)

La nouvelle génération de codes de simulation pour le traitement des données utilisant les techniques IBA sont:

- DataFurnace ("NDF" Barradas, Jeynes & Webb 1997)
- SIMNRA (Mayer, 1997)
- MCERD (Arstila, 2000)

### 3.2. Code IBA DataFurnace

#### 3.2.1. Introduction

DataFurnace est un code informatique dédié au traitement des données obtenues par les techniques RBS, ERDA, NRA, PIXE et NDP.

- Il lit des fichiers structure, géométrie, PRF et SPC (définis plus loin), nommés fichiers input et génère des fichiers output (résultats). Il permet de garder la trace de plusieurs fichiers output qui sont générés par le code.
- Il peut analyser plusieurs spectres à la fois. Il permet à l'utilisateur de créer des fichiers "batch" qui représentent des lots de spectres pouvant être analysés en même temps.
- Il est utilisé pour n'importe quel ion, n'importe quelle cible et n'importe quelle géométrie.

#### 3.2.2. Fichiers input

##### 3.2.2.1 Fichier «SPC»

Le fichier SPC peut avoir n'importe quel nom, avec une extension spc. Il est nommé "spc file". Il est composé des principaux fichiers utilisés dans l'analyse des données. Le fichier SPC possède la configuration suivante :

datafile 5. geofile structurefile

Où :

datafile est le nom de fichier de données

5 est la charge collectée.

geofile est le nom d'un fichier qui contient toutes les informations sur la géométrie,

structurefile est le nom d'un fichier qui contient toutes les informations sur l'échantillon.

Dans cet exemple un seul spectre est collecté et analysé. Dans le cas de l'analyse de trois spectres par exemple, le fichier SPC pourrait être :

datarbs 5. georbs1 structurefile

dataerda 3. georda

datarbs2 6.56 georbs2

#### 3.2.2.2. Fichier structure «STR»

Un fichier STR définit la composition de l'échantillon. Il comprend tous les éléments et/ou molécules présents. Il prend en considération la présence de rugosité, de vides, d'inclusions, etc.

Le fichier STR est établi pour chaque type d'échantillon. Il possède la configuration suivante :

100 5000 Epaisseur des couches minimales et maximales (en  $10^{15}$  at /  $\text{cm}^2$ ) utilisé dans la simulation.

5 Nombre d'éléments ou de molécules présents dans l'échantillon.

Au Définit l'élément ou la molécule.

0 500 Définit une plage de profondeur où cet élément peut exister

0 1 Définit la plage de concentration dans laquelle il peut exister

#### 3.2.2.3. Fichier géométrie «GEO»

Chaque spectre est associé à un certain nombre paramètres. qui lui sont associés, rassemblés dans le fichier géométrie.

Le fichier géométrie possède les configurations suivantes :

2 Format des données

50 400 Région d'intérêt pour le fit du spectre

4He 4He Faisceau incident, particule détectée

1500 Energie du faisceau en keV

17 Résolution d'énergie FWHM en keV

Ibm Configuration géométrique.

0 163 Angle d'incidence, angle de détection

7.2 Angle solide du détecteur en msr

2,653 80,7 Calibrage en énergie; gain en keV/canal, offset.

#### 3.2.2.4. Fichier «PRF»

Pour effectuer une simulation un fichier PRF est établi. Il possède la configuration suivante:

4

1000 1 0 3

200 0 .3 .8

300 1 1 3

30000 0 0 1

Le premier nombre définit le nombre de couches (4 couches dans cet exemple) qui constituent la cible. Chaque couche est représentée par une ligne indiquant l'épaisseur et les concentrations atomiques de chaque élément et/ou molécule défini dans le fichier STR.

### 3.3 Reproduction d'un exemple recommandé par le concepteur du code IBA DataFurnace

#### 3.3.1. Introduction

Contrairement aux anciennes méthodes de traitement de données, le code IBA DataFurnace peut analyser plusieurs échantillons complexes à la fois avec précision. Il compte parmi les plus développés pour le traitement des spectres RBS, ERDA NRA, PIXE, etc. Il peut simuler des spectres, se basant sur des profils en profondeur définis préalablement. Il utilise les conditions expérimentales contenues dans les fichiers "géométrie", ainsi que les éléments spécifiés dans le fichier "structure".

Afin d'optimiser son exploitation, les concepteurs de ce code ont proposé des exemples assez complexes, basés sur des travaux expérimentaux réels qu'ils recommandent aux utilisateurs potentiels de reproduire. Un exemple intéressant dont les résultats sont discutés dans la référence [1] concerne l'application du code NDF pour déterminer avec une grande précision les constantes de calibration de la chaîne électronique utilisée dans une expérience utilisant des faisceaux d'ions.

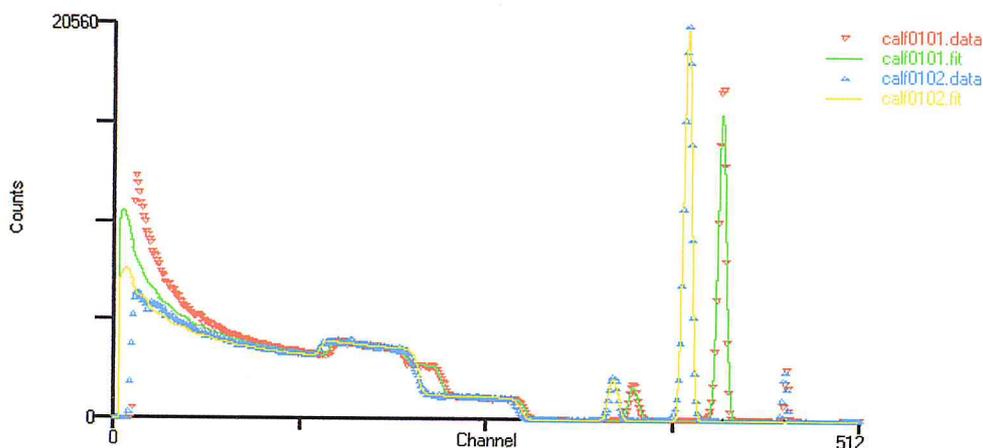
Dans ce mémoire, nous présentons un aperçu des résultats de simulation que nous avons reproduit à partir de données fournies par les concepteurs de ce code.

##### 3.3.1.1 Calibration d'une chaîne de détection

Le premier travail consiste à reproduire l'exemple proposé par le concepteur du code IBA

DataFurnace dans lequel il montre comment utiliser le code NDF pour obtenir une calibration en énergie d'un système de détection avec une grande précision. La cible utilisée dans ce travail est constituée d'une couche de dioxyde de silicium avec deux couches très fines d'or et de nickel sur un substrat de silicium (Au/Ni/SiO<sub>2</sub>/Si). La méthode de régression est utilisée pour obtenir une calibration approximative du système de détection, connaissant les énergies des particules rétrodiffusées et les numéros du canal correspondant à chaque élément. Sur la figure 14 sont représentés les spectres obtenus pour deux géométries différentes A et B.

Les canaux correspondant aux éléments Au, Ni, Si et O sont situés aux numéros 417, 358, 281 et 199 respectivement pour la géométrie A, et 394, 343, 278 et 204 pour la géométrie B. Les constantes de calibration (le gain en keV/canal et l'offset en keV) obtenues sont introduites dans le fichier géométrie. La simulation a montré que les données expérimentales associées étaient raisonnables.



*Figure 14 spectres obtenus pour deux géométries différentes avec la structure correspondante*

### 3.4. Utilisation du code IBA DataFurnace dans l'analyse d'un polymère.

#### 3.4.1. Introduction

La technique d'analyse par Réaction Nucléaire (NRA) est utilisée pour l'analyse de données d'une réaction nucléaire connaissant sa chaleur de réaction  $Q$  et sa section efficace. Le code de simulation NDF, limité au début à l'analyse des données RBS et ERDA a été étendu à l'analyse des spectres obtenues par la méthode NRA. Le code IBA DataFurnace est utilisé dans cet exemple pour déterminer le profil de concentration du carbone dans un polymère. Nous avons considéré pour ce travail les résultats expérimentaux d'une étude réalisée au niveau de l'accélérateur Van de Graaff (V.D.G.) 3.75 MV du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA).

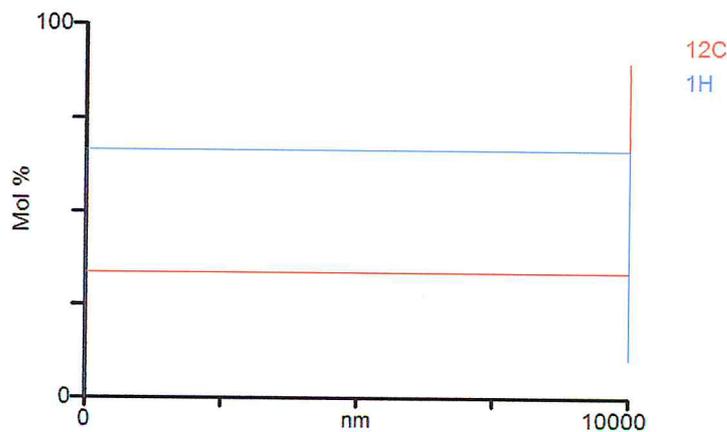
### 3.4.2. Résultats

La réaction  $^{12}\text{C}(\text{d},\text{p})^{13}\text{C}$  avec  $Q = 2722$  keV est utilisée tenant compte de la section efficace élevée à la résonance située à 1200 keV. Un détecteur à barrière de surface est placé à un angle de détection de  $120^\circ$  pour une incidence normale. Pour ce travail nous avons créé un fichier géométrie et un fichier structure, tenant compte des paramètres expérimentaux et de la cible utilisée. Les conditions expérimentales utilisées pour cette étude sont données dans le tableau ci-dessous :

Energie incidente	Angle d'incidence	Angle de détection	Résolution du détecteur
1200 keV	$0^\circ$	$120^\circ$	15 keV

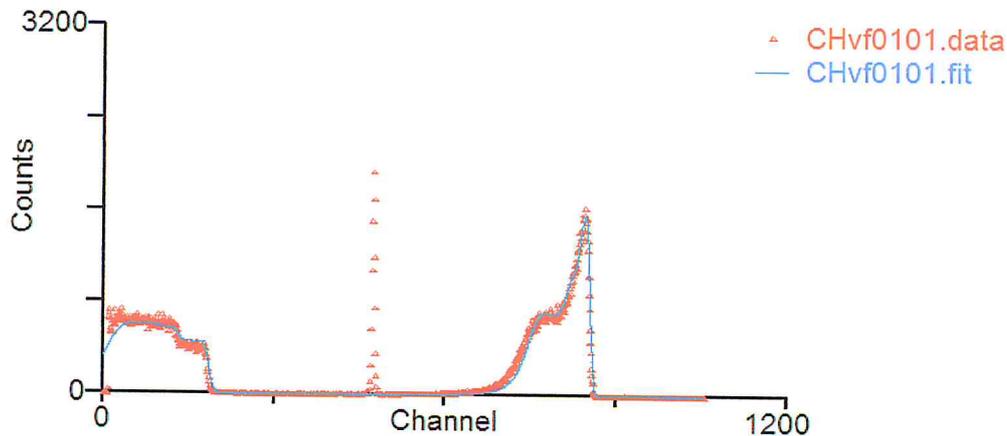
*Table 03 Conditions expérimentales utilisées*

La structure du polymère utilisé dans cette étude est montrée sur la figure 15.



*Figure 15 Structure de la cible utilisée pour la détermination du profil de concentration*

Sur la figure 16 est présenté un spectre NRA simulé, utilisant le code NDF.



**Figure 16** Spectre NRA (triangles) simulé (trait plein) pour une cible (polymère) utilisant la réaction  $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$  à  $E_d=1200\text{ keV}$ .

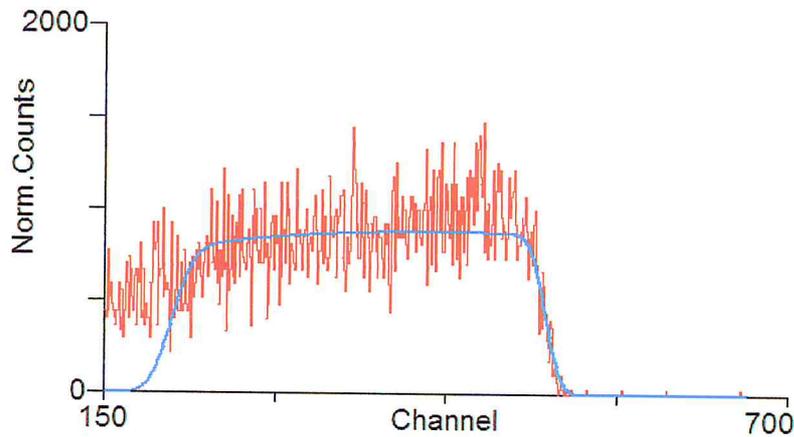
### 3.5. Utilisation du code IBA DataFurnace pour l'analyse d'un spectre ERDA

#### 3.5.1. Introduction

L'ERDA permet de déterminer la concentration en hydrogène, qui est l'élément chimique le plus difficile à étudier. Les noyaux de recul devant avoir un numéro atomique  $Z$  inférieur à celui de la particule incidente pour être détecté.

#### 3.5.2 Résultats

Les échantillons devant être très inclinés par rapport au faisceau des particules incidentes, le spectre expérimental est obtenu pour un angle d'incidence de  $23^\circ$ . Le système de détection est le même que celui utilisé pour les autres techniques d'analyse IBA. Le détecteur doit cependant être masqué à l'aide d'un filtre pour ne détecter que les protons de recul. Une feuille de mylar ( $\text{C}_8\text{H}_{10}\text{O}_4$ ) est utilisée dans ce cas. Sur la figure 17 sont présentés le spectre expérimental avec la simulation par NDF pour une cible Si/C-H, bombardé par un faisceau d' $^4\text{He}$  de 2500 keV d'énergie.



*Figure 17 Spectre ERDA simulé pour une cible Si/C-H utilisant la réaction  ${}^4\text{H}(\text{He},\text{H}){}^4\text{He}$  à  $E_\alpha=2500$  keV.*

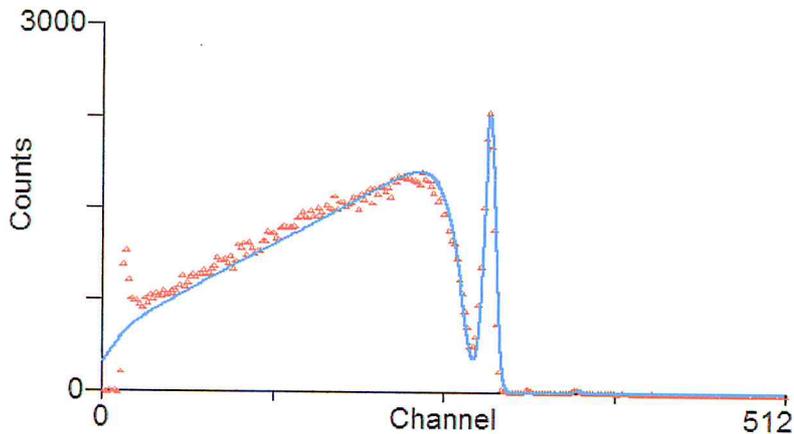
### 3.6. Application du code IBA DataFurnace pour l'analyse d'un spectre EBS (Elastic Backscattering)

#### 3.6.1. Introduction

La technique d'analyse par diffusion élastique non-Rutherford (résonante) est très utilisée pour extraire les profils en profondeur pour particulièrement pour l'oxygène, le carbone et l'azote. La section efficace élevée pour les éléments légers permet une grande sensibilité de détection. Cet exemple concerne l'utilisation du code NDF pour l'analyse d'un spectre EBS, à la résonance située à 1735 keV de réaction  ${}^{12}\text{C}(\text{p},\text{p}){}^{12}\text{C}$ .

#### 3.6.2. Résultats

Dans cette exemple, nous avons analysé les données expérimentales obtenues avec une cible constituée d'un substrat de carbone (graphite) sur lequel on a déposé une couche fine d'aluminium (haute pureté) de 20 nm d'épaisseur. Sur la figure 18 est présenté le spectre expérimental simulé par le code NDF, obtenu à partir de la diffusion élastique des protons sur la cible décrite plus haut.



**Figure 18** Spectre en énergie EBS (symbole) et simulé (tiret), obtenus pour des protons sur une cible d'Al de 20 nm déposée sur un substrat de C.

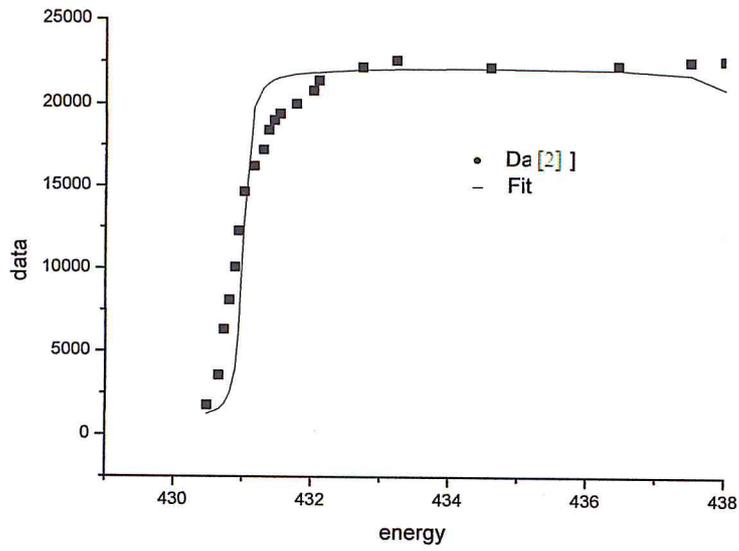
### 3.7. Application du code IBA DataFurnace au calcul du profil en profondeur des éléments légers

#### 3.7.1. Introduction

Une des spécificités du code IBA DataFurnace par rapport aux autres codes dédiés à l'analyse des spectres IBA est le profilage des éléments légers par la méthode des résonances fines. Cette méthode nommée NRP (Nuclear Resonance Profiling) est utilisée pour la détermination du rendement d'une réaction nucléaire au voisinage d'une résonance fine, de préférence isolée, en fonction de l'énergie des particules incidentes.

#### 3.7.2. Résultats

Les données expérimentales utilisés dans ce travail sont issus de la littérature. La courbe de rendement  $Y(E_i)$  ( $E_i$  étant l'énergie des protons incidents) théorique obtenue par le code NDF, et les données expérimentales sont présentés sur la figure 19. Les résultats sont obtenus pour une cible épaisse de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  enrichie avec  $^{15}\text{N}$ . Nous avons pour cela utilisé la section efficace de la réaction nucléaire  $^{15}\text{N}(p,\alpha\gamma)^{12}\text{C}$  au voisinage de la résonance à 429 keV (considérée comme une distribution de Lorentz avec une largeur à mi-hauteur  $\Gamma=120$  eV).



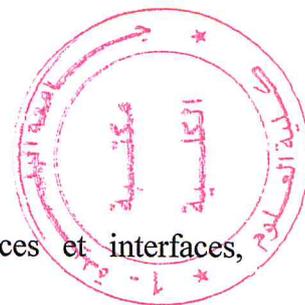
*Figure 19 Fit NRP obtenu avec le code IBA DataFurnace pour une cible Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> utilisant la résonance à 429 keV de la réaction  $^{15}\text{N}(p,\alpha\gamma)^{12}\text{C}$*

## Conclusion générale

Le code de simulation IBA DataFurnace est un code complexe désigné comme un instrument puissant pour le traitement des données expérimentales, dans le cadre de l'analyse par faisceaux d'ions. Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à la simulation de spectres expérimentaux par le code IBA DataFurnace. Les données expérimentales utilisées sont tirées de travaux précédents réalisés auprès de l'accélérateur de particules Van de Graaff 3.75 MV du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger. Un travail préalable effectué nous a permis de nous familiariser avec ce code, qui a consisté au traitement des exemples proposés par le concepteur.

Nous avons entamé ce travail par une étude bibliographique sur l'ensemble les étapes précédentes de l'analyse des spectres par le code NDF. L'étape suivante de notre démarche a consisté à élaborer des cibles en déposant des couches minces sur des substrats. Deux procédés sont utilisés à cet effet; la PVD et la CVD. Ces méthodes de dépôts de couches minces ont été décrites de façon assez détaillées, ainsi que les traitements subis par le substrat que nous considérons importants pour la qualité des dépôts. La qualité de surface des dépôts a été visualisée au moyen d'un microscope électronique à balayage. Le reste du travail est consacré au thème de cette thèse qui l'application du code IBA DataFurnace pour simuler des spectres obtenus par différentes techniques d'analyse IBA.

## Bibliographie



- [1] Abel, F. Microanalyse nucléaire, Caractérisations des couches minces et interfaces, Collection SFO, Vol 8, 2003, 173 -194.
- [2] A. L'Hoir, C. Cohen, J. J. Ganem, I. Trimaille, I. C. Vickridge, and M. Shubeita, Phys. Rev. A 85, 042901 (2012)
- [3] ARCANÉ. Centre d'études nucléaires de bordeaux gradignan [enligne]. Disponible sur : <[http //www.cenbg.in2p3.fr/](http://www.cenbg.in2p3.fr/)>. (Consultée le 18 Avril 2017).
- [4] BARRADAS, N.P et al. Thin film depth profiling using simultaneous particle backscattering and nuclear resonance profiling, *Nuclear instruments and methods in physics research B*, n° 268 (2010) 1829 - 1832.
- [5] BARRADAS, N.P et RAUHALA, E. 2009. Data analysis software for ion beam analysis: Joint ICTP/IAEA Workshop on Advanced Simulation and Modelling for Ion Beam Analysis
- [6] BOUDREAULT, G. Accurate ion beam analysis. Thèse de doctorat : Génie électronique et électrique. Université de Surrey, 2002
- [7] CALMON, P. Contribution de l'analyse RBS a l'étude des effets d'irradiation sur la diffusion dans les verres d'oxydes. Thèse de doctorat : Physique. Université de Paris sud, 1990, 199 p.
- [8] CHIARI, M et al. Benchmark measurements of non-Rutherford proton elastic scattering cross section for boron, *Nuclear instruments and methods in physics research B*, n° 343 (2015) 70 - 76.
- [9] CHIARI, M et al. Proton elastic scattering cross section in boron from 0.5 to 3 MeV, *Nuclear instruments and methods in physics research B*, n° 181 (2001) 309 - 318.
- [10] FUTURA. La microsonde nucléaire [enligne]. Disponible sur : <<https://www.futura-sciences.com/>>. (Consultée le 20 Avril 2017).
- [11] HABCHI, C.M et Moretto, F et l'équipe Interface Physique Biologie. Centre d'études nucléaires de bordeaux gradignan [enligne]. Disponible sur : <[http //www.cnrs.fr/](http://www.cnrs.fr/)>. (Consultée le 21 Avril 2017).
- [12] JEYNES, C et al. Elemental thin film depth profiles by ion beam analysis using simulated annealing - a new tool, *Journal of physics D : Applied physics*, Vol 36 n° 7 (2003) R 97.
- [13] La radioactivité. Analyse d'objets [enligne]. Disponible sur : <[http // http://www.laradioactivite.com/](http://www.laradioactivite.com/)>. (Consultée le 21 Avril 2017).

[14] MATHIS, F. Croissance et propriétés des couches d'oxydation et des patines à la surface d'alliages cuivreux d'intérêt archéologique ou artistique. Thèse de doctorat : Sciences des matériaux – Métallurgie. Université de paris sud, 2005, 210 p.

[15] MAYER, M et al. Computer simulation of ion beam analysis: Possibilities and limitations, *Nuclear instruments and methods in physics research B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, n° 24 (2011) 3006 - 3013.

[16] MENNAD, A. Les techniques de dépôt de couches minces et leurs applications, *Energies Renouvelables*, Vol 18 n°4 (2015) 713 – 719.

[17] Microscopes électroniques a balayage série XL, Manuel d'utilisation. PHILIPS. 1994.

[18] NDF v9.6a, Manuel d'utilisation. 2014.

[19] RAEPSAET, C et al. Quantification de la répartition de l'hydrogène a la microsonde nucléaire du laboratoire pierre sùe Dans l'épaisseur de tubes de gainage du combustible des REP en alliage de zirconium, Vol 39 n° 39110499 (2007)

[20] VENKATASHAMY, R. Etude de couches minces de type  $\text{LiNiVO}_4$  utilisables en tant qu'électrode négative dans des microbatteries au lithium. Thèse de doctorat : physico-chimie de la matière condensée. Université de bordeaux i : Ecole doctorale des sciences chimiques, 2003, 140 p.

