

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université SAAD DAHLAB BLIDA-1.



Faculté des Sciences
Département de Physique

MÉMOIRE

Présenté par : **Mlle. MOKRANE Lillia**

POUR OBTENIR LE DIPLÔME DE
MASTER EN PHYSIQUE

Option : Matière & Rayonnements

Intitulé du Sujet :

Étude de la pulvérisation en surface des cibles de silicium (Si) et dioxyde de silicium (SiO₂) sous l'impact des ions lourds rapides aux énergies du MeV :
Interprétation des données expérimentales via une approche modifiée du modèle de pointes thermiques.

Soutenu Publiquement le : 28/ 06 / 2016 devant le jury :

président

Mr. M. BENTAIBA

Professeur / USD BLIDA-1

encadreur

Mr. Ster MAMMERI

Maitre de Recherche classe A, Centre de Recherche Nucléaire
d'Alger (C.R.N.A.).

L'examineur

Mr. M. CHIKIRINE

Maitre Assistant classe A / USD BLIDA-1

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (C.R.N.A.). Je tiens à remercier Monsieur le Directeur Général du CRNA pour avoir rendu possible mon séjour au sein du CRNA.

*Je remercie vivement Monsieur **Ster MAMMERI**, Maître de Recherche Classe A (Chercheur Senior), pour m'avoir encadré et pour son accueil chaleureux, sa disponibilité et ses encouragements durant mes cinq mois de stage au CRNA.*

*Mes remerciements vont également à tous les chercheurs et le staff technique de la Division des Techniques Nucléaires du CRNA, particulièrement, **A. DIB, H. AMMI**, pour m'avoir aidé dans l'aboutissement de ce travail.*

Toute ma reconnaissance va aussi vers ma famille, en premier lieu mes chers parents dont le soutien a été essentiel tout au long de mes études, pour leurs aides et leurs encouragements de tous les jours, mes deux jolis frères, et, ma sœur. Un merci particulier à tous mes amis, pour l'aide efficace et leur soutien moral durant mon séjour à Alger. Je tiens enfin à exprimer toute ma gratitude à mes chers enseignants durant tout mon parcours scolaire et universitaire.

ملخص:

أجريت دراسة عددية شاملة حول ظاهرة الرش بالأيونات الثقيلة، السريعة وذات الطاقة ميغا إلكترون-فولط (eVM) على هدفين صلبين من السيليكون (Si) وثاني أكسيد السيليكون (OSi₂) المشاعين. لقد قمنا بتطبيق نظرية مقارنة ومعدلة للنقط الحرارية، بحل عددي لمعادلتين تفاضليتين غير الخطيتين للانتشار الحراري المرفقة للنظم الفرعية الإلكترونية والذرية. قمنا بضبط القدرة على الإيقاف النووي والإلكتروني للأيون المسرع و أدخلناها في الشروط الابتدائية المتعلقة بالنهايات، وكذلك أدخلنا القيم المتعلقة بالخصائص التارموفيزيائية للمادة المشاعة في الحالتين الصلبة والسائلة. في الأخير قارننا بين النتائج العددية المتحصل عليها مع المعطيات التجريبية الخاصة بمردود الرش المتاحة في المراجع والبحوث العلمية.

RÉSUMÉ :

Une étude numérique exhaustive a été effectuée sur la pulvérisation en surface induite dans deux cibles solides de silicium (Si) et de dioxyde de silicium (SiO₂) irradiées par des ions lourds rapides aux énergies du MeV. Nous avons ainsi appliqué une approche théorique modifiée du modèle de pointes thermiques basée sur la résolution numérique de deux équations différentielles non-linéaires de diffusion de chaleur associées aux sous-systèmes électroniques et atomiques. Nous avons introduit les paramètres des pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique de l'ion incident comme conditions initiales aux limites avec des valeurs appropriées des propriétés thermo-physiques du matériau irradié en phase solide et liquide. Les résultats numériques obtenus ont été finalement comparés avec les données expérimentales du rendement de pulvérisation disponibles dans la littérature.

ABSTRACT

A comprehensive numerical study was conducted on the surface sputtering induced in two solid targets of silicon (si) and silicon dioxide (SiO₂) irradiated by energetic heavy ions (~MeV). We have applied a modified theoretical approach of the thermal spikes model based on the numerical resolution of two non-linear differential equations of diffusion heat in electronic and atomic subsystems. We introduced the appropriate parameters of nuclear and electronic stopping power of the incident ions as initial boundary conditions with suitable values of thermo-physical properties (both in solid and liquid phase) of the irradiated target materials. The numerical results were finally compared to previous experimental sputtering yield data available in the literature.

CHAITRE III :

III. Présentation des résultats, analyse et discussion	23
III.1. Profil de distributions des températures en temps et en distance radiale	23
III.2. Optimisation des différents paramètres physiques d'interaction	26
III.2.1. Pas de discrétisation spatio-temporels (Δr , Δt)	26
III.2.2. Largeur à-mi-hauteur initiale (L) de la densité d'énergie électronique déposée	27
III.2.3. Largeur à-mi-hauteur initiale (R) de la densité d'énergie nucléaire déposée	29
III.3. Nombre des défauts créés en volume	32
III.4. Le rendement de pulvérisation total	33
CONCLUSION	36
RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES	37

LISTE DES FIGURES

CHAPITRE I

Figure I-1 : Schéma d'une collision élastique entre un ion incident de vitesse v_0 et un atome cible au repos dans (a) le système référentiel du laboratoire (L.) et (b) dans le système de centre de masse (C.M.).

Figure I-2 : Variation en fonction de l'énergie des pouvoirs d'arrêts (électronique et nucléaire) générés par le code SRIM pour le système projectile-cible ($\text{Bi}^+ - \text{SiO}_2$).

Figure I-3 : Parcours des ions rapides dans un matériau solide.

CHAPITRE II

Figure. II-1 : Maillage des différences finies utilisées dans le présent travail.

Figure. II-2 : Variation en fonction de la température de la capacité calorifique pour les deux sous-systèmes électronique et atomique dans le cas du (a) silicium [32] et du (b) dioxyde de silicium [31].

Figure II.3 : Variation en fonction de la température de la conductivité thermique pour les deux sous-systèmes électronique et atomique dans le cas du (a) silicium [32] et du (b) dioxyde de silicium [31].

Figure II.4 : Schéma représentatif de l'algorithme du programme FORTRAN utilisé.

CHAPITRE III

Figure. III-1a: Variations de la température électronique en fonction du temps (t) et de la distance radiale (r) obtenues via l'approche modifiée (mTS) du modèle de pointes thermique pour une cible SiO_2 irradiée par des ions Bi^+ d'énergie 63.1 MeV.

Figure. III-1b: Idem figure (III.1a) mais pour la température atomique.

Figure III.2a : Variations de la température électronique en fonction du temps (t) et de la distance radiale (r) obtenues via l'approche inélastique (iTTS) du modèle de pointes thermique pour une cible SiO_2 irradiée par des ions Bi^+ d'énergie 63.1 MeV.

Figure III.2b : Idem figure (III.2a) mais pour la température atomique.

Figure III.3a : Variation du rendement de pulvérisation en fonction du pas de discrétisation radiale (Δr) pour des ions lourds Bi^+ d'énergie 63.1 MeV incidents sur une cible de

(a) SiO₂ et de (b) Si en tenant compte uniquement de la perte d'énergie électronique ($S_n = 0$).

Figure III.3b : Idem Figure (III.3a) mais en faisant varier le pas de discrétisation temporel (Δt).

Figure III.4 : Idem Figure (III.3) mais en faisant varier la largeur à-mi-hauteur initiale (L) de la densité d'énergie électronique déposée.

Figure III.5: Variation de la largeur à-mi-hauteur de la distribution initiale (L) de la perte d'énergie électronique en fonction de l'énergie incidente des ions lourds Bi⁺ bombardant les deux cibles (a) SiO₂ et (b) Si.

Figure III.6: Variation du rendement de pulvérisation en fonction de la largeur à-mi-hauteur initiale (R) de la densité d'énergie nucléaire déposée pour des ions lourds Bi⁺ d'énergie 63.1 MeV incidents sur une cible de (a) SiO₂ et de (b) Si.

Figure III.7 : Variation en fonction du rapport des masses (M_2/M_1) de différents paramètres de dommages induits dans une cible (M_2) par des ions (M_1) d'énergie réduite (éq. 1.4b, $m = 1/3$, $\varepsilon < 0.2$ et $m = 1/2$, $0.08 < \varepsilon < 2.0$) d'après le calcul de Winterbon et al. [41].

Figure III.8 : Trajectoires des ions Bi⁺ d'énergie de 15 keV et les dommages créés dans une cible SiO₂ selon les axes X, Y et Z obtenus via le code de simulation SRIM. (the Stopping and Range of Ions in Matter)

Figure III.9 : Variation de la largeur à-mi-hauteur (FWHM) (R) de la distribution initiale de la perte d'énergie nucléaire en fonction de l'énergie incidente des ions lourds Bi⁺ bombardant deux cibles : (a) SiO₂ et (b) Si.

Figure III.10 : Variation du nombre de défauts créés en volume en fonction du pouvoir d'arrêt électronique pour des ions lourds Bi⁺ incidents sur une cible de SiO₂.

Figure III.11 : Variation du rendement de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique pour des ions lourds Bi⁺ incidents sur une cible de SiO₂. La comparaison avec les données expérimentales et d'autres prédictions théoriques est également incluse

INTRODUCTION

Les effets induits par l'interaction des ions lourds énergétiques avec la matière, comme la pulvérisation ou l'érosion des surfaces solides, ont été bien étudiées pendant les cinq dernières décennies et demeurent encore un sujet d'investigation privilégié en recherche fondamentale et appliquée [1-3]. Le processus conduisant à ces effets se produit lorsqu'un ion rapide pénètre dans un matériau solide et perd son énergie cinétique par interaction avec les atomes cibles, en donnant lieu à différents défauts ponctuels et de dommages en volume accompagnés par l'émission de diverses espèces de particules atomiques par pulvérisation en surface. Aux basses énergies (\sim keV), l'énergie de l'ion est principalement déposée dans la cible par des collisions nucléaires élastiques en induisant des déplacements atomiques directs dans le matériau cible et à l'érosion de sa surface. Tandis qu'aux énergies élevées (du MeV jusqu'au GeV), la perte d'énergie de l'ion dans le matériau solide est essentiellement causée par des collisions électroniques inélastiques, c.-à-d., via l'excitation et l'ionisation des atomes cibles tout au long du chemin de l'ion incident dans la cible, en créant ainsi une zone endommagée et instable à l'origine de la pulvérisation atomique en surface. La pulvérisation nucléaire aux énergies du keV a été intensivement étudiée pendant plusieurs décennies par modélisation analytique ou numérique et par expérimentation sur un grand nombre matériaux de différentes natures [2, 3]. Concernant la pulvérisation électronique aux énergies du MeV, les données expérimentales sont principalement disponibles pour les matériaux isolants et les métaux [3], pour lesquels deux principaux modèles théoriques de l'explosion coulombienne [4] et des pointes thermiques [5] avaient été proposés pour décrire le processus d'interaction ion-matière dans cette gamme d'énergie. Notons que ce dernier modèle de pointes thermiques proposé avec différentes approches modifiées [5-7] a été souvent appliqué avec succès pour tenir compte des effets d'irradiation des ions lourds dans la matière tels que la création des traces latentes et la pulvérisation électronique.

L'objet du présent travail concerne une étude numérique sur la pulvérisation en surface induite dans deux cibles solides de silicium (Si) et de dioxyde de silicium (SiO₂) irradiées par des ions lourds rapides aux énergies du MeV. Ces deux matériaux présentent un intérêt

grandissant dans diverses applications technologiques, en particulier, dans les installations nucléaires radioactives où il est largement utilisé dans les dispositifs d'analyse et de détection [8, 9] fonctionnant dans des environnements de rayonnements élevés. Ainsi, nous avons appliqué une approche théorique modifiée du modèle de pointes thermiques récemment proposée [10, 11] pour interpréter des données expérimentales de pulvérisation dans des matériaux semi-métalliques irradiés aux énergies du MeV. Il s'agit de résoudre numériquement deux équations différentielles non-linéaires de diffusion de chaleur associées aux sous-systèmes électroniques et atomiques, avec l'introduction des paramètres de pouvoirs d'arrêt (nucléaire et électronique) de l'ion incident comme conditions initiales aux limites avec des valeurs appropriées des propriétés thermo-physiques du matériau irradié en phase solide et liquide. Contrairement au modèle inélastique de pointes thermiques [5] largement utilisé dans la littérature pour décrire la pulvérisation électronique aux énergies élevées du MeV, l'approche modifiée utilisée ici tient en compte simultanément les deux processus de collisions élastiques et inélastiques. Ce qui permet d'étudier l'effet de synergie entre la pulvérisation nucléaire et électronique sur une large gamme d'énergie s'étalant du keV jusqu'au MeV. Ainsi, nous avons pu quantifier le nombre de défauts créés dans le matériau irradié et le rendement de pulvérisation en surface (ou le nombre moyen d'atomes éjectés de la surface cible par ion incident) via l'évaluation des profils de températures électronique et atomique en fonction du temps et de la distance radiale autour de la trajectoire de l'ion incident dans la cible. Finalement les résultats numériques obtenus ont été comparés aux données expérimentales du rendement de pulvérisation [3, 12-16] et aux autres prédictions théoriques existantes dans la littérature [5].

Le présent travail est structuré de la manière suivante : Nous commençons dans un premier chapitre à décrire le phénomène de pulvérisation induit par interaction ion-matière en définissant les paramètres pertinents régissant ce phénomène ainsi que les différents mécanismes d'érosion des surfaces solides sous l'impact d'ions énergétiques et les modèles de pulvérisation nucléaire et électronique. Le deuxième chapitre est principalement dédié à la description de l'approche modifiée du modèle de pointes thermiques en décrivant la procédure numérique utilisée pour résoudre les équations différentielles de diffusion de chaleur. À la fin de ce chapitre, nous donnons les différentes propriétés physiques et

thermo-physiques des deux matériaux étudiés. Dans le troisième chapitre, nous présentons les résultats obtenus du rendement de pulvérisation induite en surface et le nombre de défauts créés en volume et nous les comparons par la suite aux données expérimentales existantes dans la littérature. Finalement, nous terminons notre travail de mémoire de Master par une conclusion.

I. Interaction ion-matière :

Lorsqu'une particule chargée rapide (ou ion énergétique) pénètre dans la matière, deux principaux types de collisions peuvent avoir lieu avec les constituants (électrons & noyaux atomiques) de la cible solide : (i) des collisions inélastiques électroniques tout à fait au début de l'interaction en conduisant à son ralentissement et à l'excitation et à l'ionisation des atomes proches de sa trajectoire dans la cible, et (ii) des collisions nucléaires élastiques qui le fait dévier de sa trajectoire initiale. Les deux processus peuvent conduire à des modifications de structure et des dommages en volume ou dans certains cas en surface, c.-à-d., l'érosion de la surface solide via la pulvérisation des particules atomiques mises en mouvement directement ou indirectement par l'ion incident. Durant tout ce chapitre, nous allons décrire quelques notions sur les paramètres pertinents de l'interaction ion-matière comme la perte d'énergie nucléaire ou électronique, les déplacements atomiques, le rendement de pulvérisation en surface, tout en associant quelques résultats générés principalement via la simulation du code SRIM (the Stopping and Range of Ions in Matter) [19] qui va nous accompagner tout au long de ce travail de mémoire de Master.

I.1. Cinématique de collisions :

Considérant une particule de masse M_1 et d'énergie E_0 ($E_0 = M_1 v_0^2 / 2$) arrive sur un atome cible de masse M_2 et au repos. Après la collision, les valeurs des vitesses et des énergies du projectile et de la cible sont déterminées par l'angle de diffusion θ et de l'angle de recul φ dans le système du Laboratoire. (Voir. Fig. I-1a).

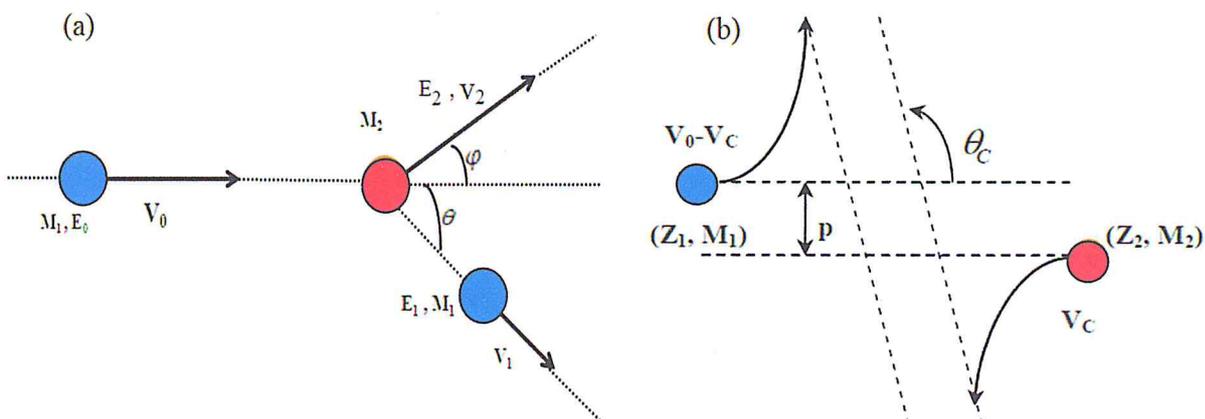


Fig. I-1 : Schéma d'une collision élastique entre un ion incident de vitesse v_0 et un atome cible au repos dans (a) le système référentiel du laboratoire (L.) et (b) dans le système de centre de masse (C.M.).

Ainsi, en se servant des lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement dans le système de laboratoire, l'énergie transférée de l'ion incident vers l'atome cible est donnée par la relation suivante [1] :

$$T = E_2 = \frac{4M_1M_2E_0}{(M_1+M_2)^2} \cos^2 \varphi, \quad (1.1a)$$

Cette dernière relation peut être également déterminée via le système du centre de masse (C.M.), en considérant que les deux partenaires comme une seule particule de masse $\mu = M_1M_2 / (M_1+M_2)$ et d'énergie $E_c = \mu v_0^2 / 2$, venant de l'infini où elle s'approche d'une zone où règne un champ de force centrale (potentiel central) agit uniquement le long de la ligne droite entre les deux particules. (Voir fig. I-2b). La formule de la perte d'énergie transférée est réécrite donc en fonction de l'angle de rétrodiffusion du projectile θ_c :

$$T = E_2 = \frac{4M_1M_2E_0}{(M_1+M_2)^2} \sin^2 \frac{\theta_c}{2} = \gamma E_0 \sin^2 \frac{\theta_c}{2}, \quad (1.1b)$$

avec
$$\gamma = \frac{4M_1M_2}{(M_1+M_2)^2} \quad (1.1c)$$

est une constante sans dimension. Nous observons que l'énergie transférée à l'atome cible est maximale ($T_{\max} \approx \gamma E_0$) lorsque le choc est frontal et lorsque les deux masses du projectile et de la cible sont identiques ($M_1 = M_2$, $T_{\max} = E_0$) ce qui certainement peut influencer sur le nombre d'atomes déplacés par particule incidente et sur la densité de cascades des collisions atomiques (voir les prochains paragraphes).

I.2. Perte d'énergie nucléaire :

La perte d'énergie par collisions élastiques entre les ions incidents et les atomes cibles est souvent appelée perte d'énergie nucléaire en référence au transfert de la quantité de mouvement à la cible et à la rétrodiffusion du projectile à cause du champ coulombien des noyaux cibles. Cependant, la grandeur physique la plus souvent utilisée est le pouvoir d'arrêt nucléaire défini comme la perte d'énergie nucléaire moyenne par unité de parcours : $S_n(E) = \left(-\frac{dE}{Ndx} \right)_n$.

Le pouvoir d'arrêt total est écrit donc comme :

$$S_{tot}(E) = S_n(E) + S_e(E) = \left(-\frac{dE}{Ndx} \right)_n + \left(-\frac{dE}{Ndx} \right)_e, \quad (1.2)$$

En tenant compte de la contribution de la perte d'énergie électronique (ou du pouvoir d'arrêt électronique).

A basse température où les collisions nucléaires élastiques sont prédominantes, la probabilité de transfert d'énergie à la cible dans l'intervalle d'énergie $(T, T + dT)$ peut être déterminée en termes de la section efficace différentielle de diffusion en obtenant ainsi l'expression du pouvoir d'arrêt nucléaire $S_n(E)$:

$$S_n(E) = - \left. \frac{dE}{Ndx} \right|_n = \int_0^\infty T d\sigma = 2\pi T_{max} \int_0^p \text{Sin}^2 \left(\frac{\theta_c}{2} \right) p dp, \quad (1.3)$$

Où N est la densité atomique de la cible solide et p est le paramètre d'impact (voir Fig. 1b).

L'expression (1.3) du pouvoir d'arrêt nucléaire peut être aussi réécrite sous la forme réduite suivante en utilisant le formalisme de Lindhard et al. [17, 18] :

$$S_n(E) = \frac{\pi a_{TF}^2 \gamma E_0}{\varepsilon} S_n(\varepsilon), \quad (1.4a)$$

avec
$$\varepsilon = \frac{a_{TF} M_2 E_0}{Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)}, \quad (1.4b)$$

ε est le paramètre de l'énergie réduite, e est la charge élémentaire de l'électron et Z_1 (ou Z_2) est le numéro atomique de l'ion (ou de la cible). a_{TF} est le rayon d'écran de Thomas-Fermi donnée dans la théorie LSS [18] par la relation suivante :

$$a_{TF} = \frac{0.8854 a_0}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}}, \quad (1.4c)$$

Dans le cas du potentiel d'interaction ZBL [19], a_{TF} prend la nouvelle forme suivante :

$$a_{TF} = \frac{0.8854 a_0}{(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})}, \quad (1.4d)$$

Dans la relation (1.4b), $S_n(\varepsilon)$ est l'expression du pouvoir d'arrêt nucléaire réduit qui dépend du potentiel d'interaction. $S_n(\varepsilon)$ peut prendre plusieurs formes, en citant à titre d'exemple, le potentiel de Thomas-Fermi (TF) [18] et le potentiel ZBL [19]. Les formules du pouvoir d'arrêt nucléaire réduit relatif à chaque type de potentiel (TF) et ZBL sont données par les relations suivantes :

$$S_n^{TF}(\varepsilon) = \frac{3.441 \sqrt{\varepsilon} \ln(\varepsilon + 2.718)}{1 + 6.355 \sqrt{\varepsilon} + \varepsilon (6.882 \sqrt{\varepsilon} - 1.708)}, \quad (1.5a)$$

$$S_n^{ZBL}(\varepsilon) = \begin{cases} \frac{0.5 \ln(1 + 1.1383 \varepsilon)}{\varepsilon + 0.01321 \varepsilon^{0.21226} + 0.19593 \sqrt{\varepsilon}} & \varepsilon < 30 \\ \frac{\ln \varepsilon}{2 \varepsilon} & \varepsilon \geq 30 \end{cases} \quad (1.5b)$$

Ces deux dernières formulations semi-empiriques sont largement utilisées pour l'évaluation du pouvoir d'arrêt nucléaire, principalement, dans les codes numériques simulant les effets d'irradiation ionique dans les matériaux solides, comme par exemple le code SRIM [19].

I.3. Perte d'énergie électronique :

La perte d'énergie électronique résulte principalement des collisions inélastiques entre l'ion incident et les électrons cibles. L'ion incident qui pénètre dans le matériau solide perd son énergie cinétique en s'engageant dans différents processus inélastiques tels que la capture et l'excitation électroniques ou l'ionisation atomique. La description de ces processus inélastiques est beaucoup plus complexe que ceux observés dans la perte d'énergie nucléaire, car l'interaction entre l'ion incident et l'ensemble des électrons cibles ne peut pas être décrite par des collisions entre deux corps mais avec plusieurs électrons liés eux-mêmes aux noyaux cibles. Pour faciliter le traitement de ces trois processus, trois différents domaines de vitesse sont énumérés en termes de la quantité $Z_1^{2/3} v_0$ définie typiquement comme la vitesse moyenne des électrons liés au projectile dans le modèle de Thomas-Fermi, avec v_0 est la vitesse de Bohr ou la vitesse orbitale de l'électron 1s de l'atome d'hydrogène.

I.3.1. Domaine de vitesses élevées ($v \gg Z_1^{2/3} v_0$) :

Le projectile est rapidement épluché de ses électrons et il interagit avec les électrons cibles à travers un potentiel coulombien. Cette région est décrite par la théorie de Bethe-Bloch [20] :

$$S_e(E) = \frac{\kappa Z_1^2 Z_2}{\beta^2} \left\{ \ln \frac{2m_e v^2}{\langle I \rangle (1-\beta^2)} - \beta^2 - \frac{C}{Z_2} + \frac{\delta}{2} + Z_1 L_1 + Z_1^2 L_2 \right\}, \quad (1.6a)$$

avec $\beta = v/c$ et $\kappa = \frac{0.307}{M_2}$ en unité de (MeV.cm²/g). Les autres termes dans cette expression sont définis comme étant des facteurs correctifs pour différents effets intervenant dans le ralentissement de l'ion incident (ex., les corrections de couches, C/Z_2 , un facteur correctif de Bloch, $Z_1^2 L_2$, effet de Barkas, $Z_1 L_2$ et l'effet de densité $\delta/2$). Le paramètre $\langle I \rangle$ est le potentiel d'ionisation moyen spécifique au matériau bombardé ($\langle I \rangle (eV) \approx 11.5 \times Z_2$) [21].

I.3.2. Domaine des vitesses intermédiaires ($v \sim Z_1^{2/3} v_0$) :

Lorsque la vitesse incidente démunie, le projectile capture des électrons et devient partiellement épluché et sa charge électrique moyenne devient inférieure à $Z_1 e$. Dans cette

région de vitesses la formule (I.6) de Bethe-Bloch est souvent utilisée en employant la notion de la charge effective ($Z_1^*e = \gamma Z_1e$, où γ est un facteur sans dimension principalement dépendant de la vitesse de l'ion incident).

I.3.3. Domaine des basses vitesses ($v \leq Z_1^{2/3}v_0$):

Dans cette gamme de vitesse, l'ion garde pratiquement une grande partie de ses électrons et il interagit avec les atomes cibles via le recouvrement de leurs nuages électroniques. L'énergie cinétique perdue par l'ion incident est bien décrite par la théorie LSS de Lindhard et al. [17] où le pouvoir d'arrêt électronique est proportionnel à la vitesse du projectile, soit :

$$S_e(E) = \frac{KZ_1^{7/6}Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \sqrt{\frac{E}{M_1}}, \tag{I.6b}$$

avec $K \approx 3.83$ en unité d'eV/(10^{15} at. /cm²), M_1 est la masse atomique et E est l'énergie incidente exprimée en keV.

I.3.4. Pouvoir d'arrêt via la simulation du code SRIM :

Il existe une autre manière plus précise pour le calcul du pouvoir d'arrêt électronique via la compilation des données mesurées expérimentalement en les ajustant par des formules semi-empiriques basées sur les deux principales théories cités précédemment, à savoir, celles de Bethe-Bloch et de LSS valables, respectivement, aux basses et hautes énergies.

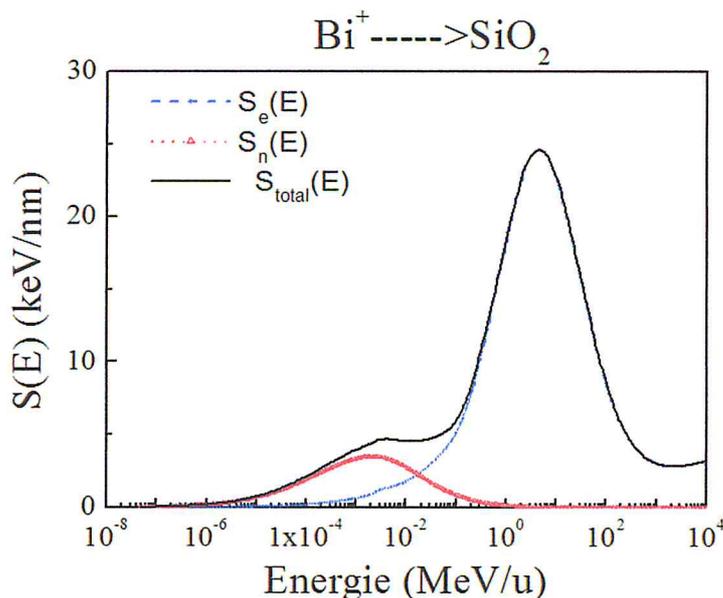


Fig. I-2 : Variation en fonction de l'énergie des pouvoirs d'arrêts (électronique et nucléaire) générés par le code SRIM pour le système projectile-cible ($Bi^+ - SiO_2$).

Parmi ces compilations, nous citons celle de ZBL utilisée dans le code SRIM [19] pour simuler les effets d'irradiation ionique dans les matériaux solides. Sur la figure (I-2) est tracée la variation du pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire en fonction de l'énergie pour des ions Bi^+ incidents sur une cible de dioxyde de silicium (SiO_2) étudiée dans ce travail. Nous observons que le pouvoir d'arrêt nucléaire est prédominant à basse énergie jusqu'à 3.5 MeV suivi du régime de pouvoir d'arrêt électronique au-delà de cette valeur d'énergie.

I.4 Parcours d'ions dans les solides :

Lorsqu'un ion rapide pénètre dans une cible solide, il perd son énergie cinétique E_0 par des collisions nucléaires élastiques et des collisions électroniques inélastiques et s'arrête en profondeur à une distance R de la surface cible. Le parcours des ions énergétiques dans la matière peut être exprimé par l'intégrale suivante :

$$R = \int_{E_0}^0 \frac{dE}{S_{tot}(E)} \quad (1.7)$$

où $S_{tot}(E)$ est donné par l'éq. (1.2) en termes des pouvoirs d'arrêts électronique et nucléaire. Sur la figure I-3 est présentée une image obtenue via la simulation du code SRIM-2013 [19] concernant la trajectoire de quelques ions Bi^+ d'énergie de 15 keV traversant une cible de SiO_2 où nous observons que le parcours réel de l'ion est supérieur à la distance entre la surface de la cible et sa position et qui représente le parcours projeté R_p , dont sa valeur peut être estimée numériquement via le code SRIM.

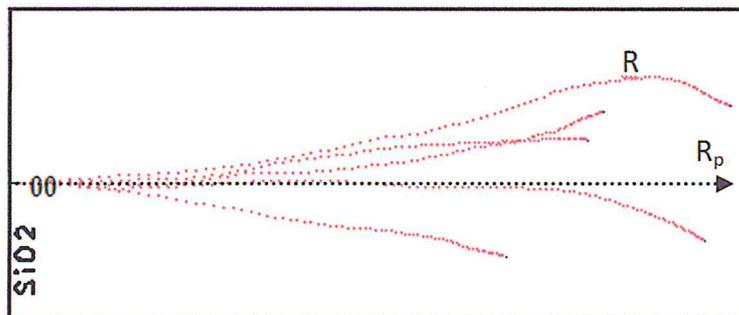


Figure I-3: Parcours des ions rapides dans un matériau solide.

I.5. Déplacements atomiques dans les solides :

Lors du bombardement d'un solide par des ions énergétiques, les atomes cibles qui interagissent avec eux reçoivent une partie de leur énergie cinétique pour être déplacés vers de nouvelles positions (ou sites) dans le réseau cristallin avec la création différents types de défauts en volume. Si cette énergie transférée dite énergie de recul est suffisante, c.-à-d.,

elle est supérieure à l'énergie seuil de déplacement (E_d) dans les solides (~ 5 eV à 40 eV), ces atomes déplacés peuvent déplacer à leur tour d'autres atomes cibles plus proches en créant ainsi une avalanche de cascades de collisions atomiques secondaires, tertiaires,.... L'ensemble de ces cascades génère autour de la trajectoire de l'ion incident des défauts atomiques dans le solide à l'origine des dommages en volume et des modifications structurales et topographiques en surface.

Le nombre moyen d'atomes déplacés dans une cascade créée par un atome primaire ayant reçu une énergie E , est donné suivant le modèle de Kinchin -Pease [22] en fonction de l'énergie de déplacement :

$$\bar{N}_d(E) = \begin{cases} 0 & \text{pour } 0 < E < E_d \\ 1 & \text{pour } E_d < E < \frac{2E_d}{0.8} \\ \frac{0.8}{2E_d} \nu(E) & \text{pour } \frac{2E_d}{0.8} \leq E \end{cases} \quad (1.8)$$

Où la fonction d'énergie de dommage $\nu(E)$ exprime la densité d'énergie perdue par collisions nucléaires élastiques.

1.6. Phénomène de pulvérisation :

Comme expliqué ci-dessus, les déplacements atomiques induits par collisions nucléaires élastiques sont directs et se manifestent à basse énergie (\sim keV). Certains déplacements induits près de la surface cible avec des énergies de recul supérieures à l'énergie de surface ($E_r > U_s$) peuvent conduire à l'émission des particules atomiques hors du solide, c'est le phénomène de pulvérisation nucléaire. Cependant, aux énergies élevées du MeV, les collisions électroniques inélastiques associées à la perte d'énergie électronique sont également considérées comme un processus conduisant aux déplacements atomiques indirects et à la pulvérisation en surface (pulvérisation électronique) principalement via l'augmentation transitoire de la température dans la région voisine de la trajectoire de l'ion incident.

Quelque soit le type de pulvérisation induit, la grandeur physique généralement utilisée est le rendement de pulvérisation, défini comme le nombre moyen d'atomes (ou de molécules) éjectés de la surface par ion incident :

$$Y(\text{at./ion}) = \frac{\text{Nombre moyen d'atomes éjectés de la surface}}{\text{Nombre d'ions incidents}} \quad (1.9)$$

Cette variable statistique dépend des caractéristiques de l'ion incident (Z_1, M_1, E_0), et la direction du faisceau incident ainsi que des propriétés de la cible (Z_2, M_2, U_s), et la microstructure de la cible (amorphe ou cristalline) [23].

I.7. Pulvérisation nucléaire :

La pulvérisation induite par des collisions nucléaires élastiques directes peut être qualitativement subdivisée en deux principaux régimes selon le nombre d'atomes déplacés par l'ion incident : (i) le régime de cascades linéaires et (ii) le régime de cascades non-linéaires ou de pointes thermiques. Dans le premier régime, la densité de cascades atomiques est suffisamment faible de telle sorte que la probabilité pour qu'un atome en collision rencontre un autre en mouvement soit nulle. Tandis que dans le deuxième régime, la densité de cascades de collisions est trop élevée en conduisant à des effets non linéaires associés à l'augmentation de la température dans la zone proche de la trajectoire de l'ion incident. Les deux régimes de pulvérisation peuvent être bien décrits par deux formalismes théoriques différents proposés par P. Sigmund et ses collaborateurs en 1969 [24] et en 1981 [25], respectivement.

I.7.1. Modèle linéaire de Sigmund :

Ce modèle est basé sur l'approximation des collisions binaires combinée au modèle de Thomas-Fermi de telle sorte que le rendement de pulvérisation soit proportionnel au pouvoir d'arrêt nucléaire via l'énergie déposée $F_D(E, x = 0)$ par l'ion incident à la surface de la cible :

$$Y_{Sig} = \Lambda F_D(E, x = 0) = 0.042 \alpha \times \frac{S_n^{TF}(E)}{U_s}, \quad (I.10a)$$

où l'énergie de surface U_s est souvent supposé comme étant l'énergie de sublimation du matériau solide étudié, α est un facteur correctif en fonction du rapport des masses cible/projectile (M_2/M_1) donnée par la formule suivante :

$$\alpha \approx \begin{cases} 0.15 + 0.13 \frac{M_2}{M_1} & \left(\frac{M_2}{M_1} < 1 \right) \\ 0.13 + 0.14 \left(\frac{M_2}{M_1} \right)^{0.65} & \left(\frac{M_2}{M_1} > 1 \right) \end{cases}, \quad (I.10b)$$

I.7.2. Modèle non-linéaire de Sigmund-Claussen :

Ce modèle [25, 26] est basé sur le concept de la pointe thermique de géométrie cylindrique autour de la trajectoire de l'ion incident avec une dépendance non-linéaire du rendement de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire, soit :

$$Y_{the} = 0.036 \left(\frac{\lambda_0 a^2 F_D^2}{U_s^2} \right) g \left(\frac{U_s}{k_B T_0} \right), \quad (I.11a)$$

$$\text{avec } g \left(\frac{U_s}{k_B T_0} \right) = \begin{cases} 1 - \frac{3}{2} \left(\frac{U_s}{k_B T_0} \right)^2 & \frac{U_s}{k_B T_0} < 1 \\ 3 \exp \left(-\frac{U_s}{k_B T_0} \right) & \frac{U_s}{k_B T_0} > \sim 5 \end{cases}, \quad (I.11b)$$

où $\lambda_0 = 24$ est une constante sans dimension et $a = 0.219 \text{ \AA}$ est le rayon d'écran de Born-Mayer [1]. k_B est la constante de Boltzmann. T_0 est la température initiale du cœur de la pointe thermique à un temps $t = 0$, soit :

$$k_B T_0 = \frac{F_D(E, x=0)}{2\pi N \langle \rho_0^2 \rangle}, \quad (I.11c)$$

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

$$F_D(E, x = 0) = \alpha N \times S_n(E), \quad (I.11d)$$

où α est le rapport des masses cible/projectile donné par la relation (I.10b).

I.8. La pulvérisation électronique :

Comme signalé au début de ce chapitre, l'ion incident aux énergies élevées du MeV interagit avec les atomes cibles principalement via des collisions inélastiques liées à des excitations électroniques. Ces excitations créent une forte perturbation locale du système électronique autour de la trajectoire de l'ion incident qui transfère une grande partie de l'énergie électronique perdue aux atomes cibles pour les déplacer indirectement dans le solide en créant une zone instable et fortement endommagée associée au phénomène de pulvérisation en surface (pulvérisation électronique). Ce dernier phénomène est complexe et indirect, il implique des mécanismes de coulage électron-phonon pour le transfert de la perte d'énergie électronique où les propriétés physiques et thermo-physiques du matériau jouent un rôle plus important dans ce phénomène. Dans ce qui suit, deux principaux modèles théoriques seront présentés pour décrire le phénomène de pulvérisation électronique.

I.8.1. Modèle de l'explosion coulombienne :

Ce modèle proposé par Fleischer et al. [27] en 1965 est supposé intervenir durant l'étape initiale de l'interaction. Il est basé sur l'hypothèse de la force de répulsion coulombienne qui est supérieure à la force élastique de liaison des atomes cibles. Initialement, l'énergie déposée par l'ion incident ionise les atomes cibles situés autour de sa trajectoire en créant un volume de charge positive qui induit une forte répulsion coulombienne entre eux à l'origine de leur déplacement de leurs positions initiales et la création des défauts et des dommages dans le matériau irradié.

I.8.2. Modèle de pointes thermiques :

Ce modèle a été proposé dès 1923 par Desaner [28] et a été appliqué plus tard en 1956 par Seitz et Lifshitz [29] aux métaux. Ce modèle est basé sur la conversion via le couplage électron-phonon de l'énergie transférée par l'ion incident aux électrons cibles vers les atomes du solide sous forme d'énergie thermique (de chaleur). Ce transfert peut être rapide est efficace pour les atomes proche de la trajectoire de l'ion incident en augmentant rapidement la température locale du système vers des valeurs élevées. Et si cette température dépasse une certaine limite correspondante à la chaleur de fusion ou de vaporisation propre au matériau irradié, différents types de dommages en volume ou en surface peuvent se produire. Notons que ce dernier modèle de pointes thermiques proposé avec différentes approches modifiées [5-7] a été souvent appliqué avec succès pour tenir compte des effets d'irradiation des ions lourds dans la matière tels que la création des traces latentes et la pulvérisation électronique.

Ce modèle de pointes thermiques est décrit par deux équations différentielles de transfert de chaleur exprimées dans une géométrie cylindrique comme le modèle élastique de Sigmund-Claussen [25] :

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right] - g(T_e - T_a) + A(r, t), \quad (I.12a)$$

$$C_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial r} \right] - g(T_e - T_a), \quad (I.12b)$$

où g est la constante de couplage électron-phonon et $(T_e - T_a)$ est la différence de température entre les électrons et les atomes du solide. Le produit entre les deux quantités donne le terme d'échange de chaleur. T , C et K sont, respectivement, les températures, les

capacités calorifiques et les conductivités thermiques pour les électrons (indice e) et les atomes (indice a).

La fonction $A(r, t)$, définit la densité de dépôt d'énergie spatio-temporelle par le projectile sur les électrons du milieu. Elle dépend de la perte d'énergie électronique déposée dans le matériau irradié.

La résolution de ces deux équations différentielles [30] donne directement la température atomique $T_a(r, t)$ autour de la trajectoire de l'ion incident en fonction du temps et de la distance radiale.

La dernière étape est le calcul du nombre moyen de défauts créés en volume par unité de parcours en utilisant la relation suivante :

$$N_d(\text{at./}\mu\text{m}) = \int_0^\infty dt \int_0^\infty v(T_a(r, t)) 2\pi r dr, \quad (\text{I.13a})$$

avec
$$v(T_a(r, t)) = n_a \frac{k_B T_D}{h} \exp\left(\frac{-U_a}{k_B T_a(r, t)}\right), \quad (\text{I.13b})$$

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

Également, le rendement de pulvérisation en surface est obtenu via un calcul d'intégrale double (espace-temps) via la relation suivante :

$$Y(\text{at./ion}) = \int_0^\infty dt \int_0^\infty \Phi(T_a(r, t)) 2\pi r dr, \quad (\text{I.14a})$$

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

$$\Phi(T_a(r, t)) = n_a \sqrt{\frac{k_B T_a(r, t)}{2\pi M_a}} \exp\left(\frac{-U_s}{k_B T_a(r, t)}\right), \quad (\text{I.14b})$$

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

CHAPITER II :
APPROCHE MODIFIÉE DU
MODÈLE DE POINTES
THERMIQUES

II. Approche modifiée du modèle de pointes thermique :

L'approche inélastique du modèle de pointes thermiques n'est pas la seule approche avancée pour décrire les effets d'irradiation ionique dans les matériaux solides mais il existe dans la littérature d'autres approches numériques comme celle de Yasui [7] ou analytique comme celle de Szenes [6]. Dans ce chapitre, l'approche numérique de Yasui [7] sera présentée en tenant compte d'une version récemment modifiée [10, 11] pour l'interprétation des données expérimentales de pulvérisation en surface des cibles semi-métalliques minces de bismuth. Cette version modifiée du modèle de pointes thermiques tient en compte simultanément les deux processus de collisions nucléaires élastiques et électroniques inélastiques, ce qui permet d'étudier l'effet de synergie entre la pulvérisation nucléaire et électronique sur une large gamme d'énergie s'étalant du keV jusqu'au MeV.

II. 1. Formalisme théorique

Comme nous avons expliqué précédemment, le passage de l'ion incident à travers la matière induit une forte densité d'excitation électronique autour de sa trajectoire. Ce processus peut être décrit mathématiquement par un système de deux équations différentielles de transfert de la chaleur qui peut être exprimé en géométrie cylindrique :

$$\begin{aligned} \pi\{(r + \Delta r)^2 - (r)^2\}n_e \cdot C_e|_2 \frac{dT_e}{dt}|_2 &= -2\pi r K_e|_1 \frac{dT_e}{dr}|_1 + 2\pi(r + \Delta r) \cdot K_e|_3 \frac{dT_e}{dr}|_3 - \\ &\pi\{(r + \Delta r)^2 - (r)^2\}n_e C_e|_2 \frac{1}{\tau} \{T_e|_2 - T_a|_2\}, \end{aligned} \quad (II.1)$$

$$\begin{aligned} \pi\{(r + \Delta r)^2 - (r)^2\}n_a \cdot C_a|_2 \frac{dT_a}{dt}|_2 &= -2\pi r K_a|_1 \frac{dT_a}{dr}|_1 + 2\pi(r + \Delta r) K_a|_3 \frac{dT_a}{dr}|_3 + \\ &\pi\{(r + \Delta r)^2 - (r)^2\}n_a \cdot C_a|_2 \frac{1}{\tau} \{T_e|_2 - T_a|_2\}, \end{aligned} \quad (II.2)$$

Ces deux équations décrivent l'évolution de la température des sous-systèmes électronique et atomiques en fonction du temps (t) et de la distance radiale (r) de la trace cylindrique.

Les indices 1, 2 et 3 représentent, respectivement, les valeurs moyennes aux points r, r+ Δr/2 et r+Δr. Les deux quantités (n_e, n_a) sont, respectivement, la densité électronique et atomique reliées entre elles par la relation : n_e = zn_a ou z est le nombre d'électrons de la bande de valence. Les autres deux couples de quantités physiques, (C_e, C_a) et (K_e, K_a), sont

les capacités calorifiques et les conductivités thermiques des sous-systèmes électronique (indice e) et atomique (indice a). Tandis que T_e et T_a sont la température électronique et atomique ou du réseau. (τ) est le temps de couplage électron-phonon relié à la constante de couplage électron phonon (g) et au libre parcours moyen (λ) de l'électron dans le solide par la relation suivante :

$$\tau = \frac{n_e C_e}{g} = \frac{\lambda^2}{D_e} \quad (II.3a)$$

où
$$D_e = \frac{K_e}{n_e C_e} \quad (II.3b)$$

est la diffusivité électronique dans le solide.

II.2. Conditions initiales aux limites et densités d'énergies déposées

Dans ce paragraphe sont présentées les densités d'énergie (électronique et nucléaires) déposées par l'ion incident dans le matériau étudié et qui sont introduites via les conditions initiales aux limites pour les deux sous-systèmes électroniques et atomiques.

Ainsi, des températures ambiantes sont supposées de l'ordre de 100 K à des distances radiales éloignées (c.-à-d., pour $r \rightarrow \infty$), soit :

$$T_e|_{r \rightarrow \infty} = T_a|_{r \rightarrow \infty} = T_{matrice} = 100 \text{ K}. \quad (II.4)$$

Également, les conditions initiales à $t = 0$ sont liées au pouvoir d'arrêt électronique de l'ion incident dans le matériau cible, $S_e(E)$, via la densité d'énergie électronique donnée par la relation suivante :

$$E_e(r, t = 0) = \frac{S_e}{4\pi\sigma_e^2} \exp\left(-\frac{r^2}{4\sigma_e^2}\right) + n_e \int_0^{100K} C_e dT, \quad (II.5a)$$

Où $\sigma_e = \frac{L}{2(\ln 2)}$, avec L étant la largeur-à-mi-hauteur (FWHM) de la distribution radiale initiale de l'énergie déposée dans le sous-système électronique. La densité d'énergie électronique peut être aussi exprimée par une autre relation :

$$E_e(r, t = 0) = n_e \int_0^{T_e(r, t=0)} C_e dT, \quad (II.5b)$$

ce qui nous permet de déterminer la température radiale initiale $T_e(r, t = 0)$ du sous-système électronique en égalant les deux expressions (II.5a et II.5b) de la densité d'énergie électronique $E_e(r, t = 0)$.

D'autre part, la densité d'énergie déposée par collisions nucléaires élastiques peut être également prise en considération dans les conditions initiales de la température atomique par analogie à la densité d'énergie électronique donnée dans l'expression (II.5) [3]. Cette densité d'énergie appelée densité de pointes thermiques élastiques est significative pour des ions lourds où les cascades de collisions élastiques sont non linéaire (voir paragraphe I.7.2. du premier Chapitre).

Ainsi, cette densité d'énergie supplémentaire a été introduite récemment [11] par l'équipe de Recherche du CRNA dans l'approche de Yasui [7] pour tenir compte de l'augmentation du rendement de pulvérisation observé lors des expériences d'irradiation par des ions lourds (Kr et Cu) dans des cibles semi-métalliques de bismuth dans la gamme d'énergie intermédiaires (c.-à-d., de l'ordre de quelques dizaines de MeV).

La densité d'énergie nucléaire $E_e(r, t = 0)$ à un temps initial $t = 0$ est exprimée en terme du pouvoir d'arrêt nucléaire, $S_e(E)$, en réécrivant les deux équations (II.5a) et (II.5b) sous la forme suivante :

$$E_n(r, t = 0) = \frac{S_n}{4\pi\sigma_a^2} \exp\left(-\frac{r^2}{4\sigma_a^2}\right) + n_a \int_0^{100K} C_a dT, \quad (II.6a)$$

$$E_n(r, t = 0) = n_a \int_0^{T_a(r, t=0)} C_a dT, \quad (II.6b)$$

où $\sigma_a = \frac{R}{2(\ln 2)}$ avec R étant la largeur-à-mi-hauteur (FWHM) de la distribution radiale initiale de l'énergie déposée par collisions nucléaires. Ainsi, la température radiale initiale du sous-système atomique, $T_a(r, t = 0)$, est déterminée de la même manière en égalant les deux expressions (5) et (6) de la densité d'énergie nucléaire.

En observant attentivement les expressions (II.5) et (II.6), nous pouvons remarquer la présence de deux paramètres (L et R) définissant la largeur-à-mi-hauteur (FWHM) de la distribution radiale initiale des deux densités d'énergie électronique et nucléaire. Ces deux paramètres peuvent influencer significativement sur la température du système et par conséquent sur le rendement de pulvérisation induit dans le matériau irradié. Une étude systématique de l'influence de ces deux paramètres sur le rendement de pulvérisation est donc nécessaire et qui sera effectuée dans le prochain chapitre consacré à la présentation des résultats.

II.3. Discrétisation numérique via les différences finies

Notant que les deux équations (II.1) et (II.2) sont non-linéaires, c.-à-d., elles contiennent divers paramètres thermo-physiques dépendants de la température comme les capacités calorifiques et les conductivités thermiques atomiques et électroniques. Elles peuvent être donc résolues numériquement via une méthode explicite des différences finies en développant les deux composantes de la température, $T_e(r, t)$ et $T_a(r, t)$ en séries de Taylor en fonction de l'espace et du temps (r, t) selon les formes suivantes :

$$T\left(r \pm \frac{\Delta r}{2}, t\right) = T(r, t) \pm \frac{\Delta r}{2} \frac{\partial T}{\partial r}, \quad (\text{II.7a})$$

$$T\left(r + \Delta r \pm \frac{\Delta r}{2}, t\right) = T(r + \Delta r, t) \pm \frac{\Delta r}{2} \frac{\partial T}{\partial r}, \quad (\text{II.7b})$$

$$T\left(r + \frac{\Delta r}{2}, t + \Delta t\right) = T\left(r + \frac{\Delta r}{2}, t\right) + \Delta t \frac{\partial T}{\partial t}. \quad (\text{II.7c})$$

En faisant la sommation et la subtraction de l'ensemble de ces trois dernières équations, nous obtenons les valeurs moyennes suivantes :

$$\left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_1 = \frac{T\left(r + \frac{\Delta r}{2}, t\right) - T\left(r - \frac{\Delta r}{2}, t\right)}{\Delta r}, \quad (\text{II.8a})$$

$$\left. \frac{\partial T}{\partial t} \right|_2 = \frac{T\left(r + \frac{\Delta r}{2}, t + \Delta t\right) - T\left(r + \frac{\Delta r}{2}, t\right)}{\Delta t}, \quad (\text{II.8b})$$

$$\left. \frac{\partial T}{\partial t} \right|_3 = \frac{T\left(r + \frac{3\Delta r}{2}, t\right) - T\left(r + \frac{\Delta r}{2}, t\right)}{\Delta r}, \quad (\text{II.8c})$$

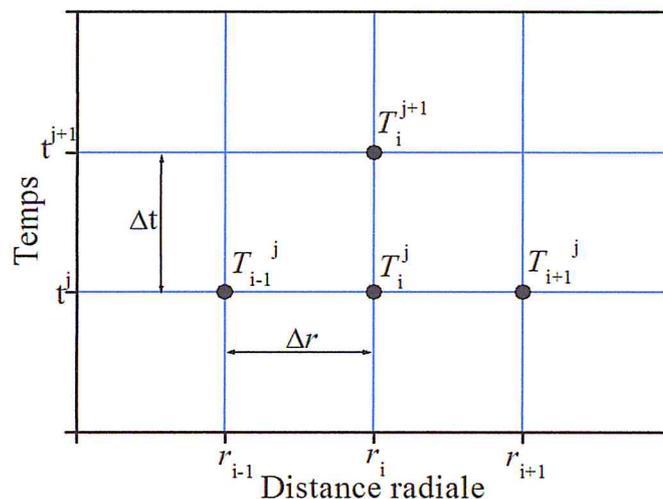


Figure II.1 : Maillage des différences finies utilisées dans le présent travail.

En définissant les deux variables $r = \left(i - \frac{1}{2}\right) \Delta r$ et $t = j \Delta t$ (Δr et Δt étant les pas de discrétisation de la distance radiale et du temps, respectivement), nous pouvons donc discrétiser les deux équations de diffusion de chaleur selon le maillage présenté sur la figure

(II-1). Par la suite, nous injectons les équations. (II.8a, II.8b et II.8c) dans le système d'équations (II.1) et (II.2), nous obtenons le système suivant :

$$T_{e_i}^{j+1} = A_1 T_{e_{i+1}}^j + A_2 T_{e_i}^j + A_3 T_{e_{i-1}}^j + A_4 T_{a_i}^j, \quad (II.9a)$$

$$T_{a_i}^{j+1} = B_1 T_{a_{i+1}}^j + B_2 T_{a_i}^j + B_3 T_{a_{i-1}}^j + B_4 T_{e_i}^j, \quad (II.9b)$$

Les quantités A_{1-4} et B_{1-4} , sont définies par les relations suivantes :

$$A_1 = \frac{(i+0.5) K_e|_3}{i} \frac{1}{n_e C_e|_2} \frac{\Delta t}{\Delta r^2}, \quad (II.9c)$$

$$A_2 = 1 + \left[\frac{(i-0.5)}{j} \frac{1}{n_e C_e|_1} \frac{\Delta t}{\Delta r^2} (K_e|_1 - K_e|_3) \right] - \frac{\Delta t}{\tau}, \quad (II.9d)$$

$$A_3 = \frac{(i-0.5) K_e|_1}{i} \frac{1}{n_e C_e|_2} \frac{\Delta t}{\Delta r^2}, \quad (II.9e)$$

$$A_4 = \frac{\Delta t}{\tau}, \quad (II.9f)$$

$$B_1 = \frac{(i+0.5) K_a|_3}{i} \frac{1}{n_a C_a|_2} \frac{\Delta t}{\Delta r^2}, \quad (II.9g)$$

$$B_2 = 1 + \left[\frac{(i+0.5)}{i} \frac{1}{n_a C_a|_2} \frac{\Delta t}{\Delta r^2} (K_a|_1 - K_a|_3) \right] - \frac{n_e C_e|_2}{\tau n_a C_a|_2}, \quad (II.9h)$$

$$B_3 = \frac{(i-0.5) K_a|_1}{i} \frac{1}{n_a C_a|_2} \frac{\Delta t}{\Delta r^2}, \quad (II.9i)$$

$$B_4 = \frac{n_e C_e|_2}{\tau n_a C_a|_2}, \quad (II.9j)$$

Les quantités $A_{1-4}(T_{e_i}^j)$ et $B_{1-4}(T_{a_i}^j, T_{e_i}^j)$ sont également dépendantes de la température via les propriétés thermo-physiques du matériau étudié, principalement, les capacités calorifiques et les conductivités thermiques des deux sous-systèmes électroniques et atomiques.

II.4. Les propriétés thermo-physiques du matériau

Ce paragraphe est consacré à la présentation des propriétés thermo-physiques des deux matériaux solides étudiés dans ce travail, à savoir, le silicium et le dioxyde de silicium. Ainsi, les quatre paramètres nécessaires pour la résolution de nos deux équations différentielles sont la capacité calorifique et la conductivité thermique pour les deux sous-systèmes atomique et électronique. Ces paramètres peuvent être obtenus via des tabulations expérimentales ou numériques existantes dans la littérature. Pour des raisons plus pratiques, nous avons utilisé dans le présent travail des expressions semi-empiriques [31, 32]

ajustant les données expérimentales de ces paramètres thermo-physiques à l'état solide et liquide des matériaux étudiés (Voir Figure (II-1) pour la capacité calorifique et Figure (II-2) pour la conductivité thermique).

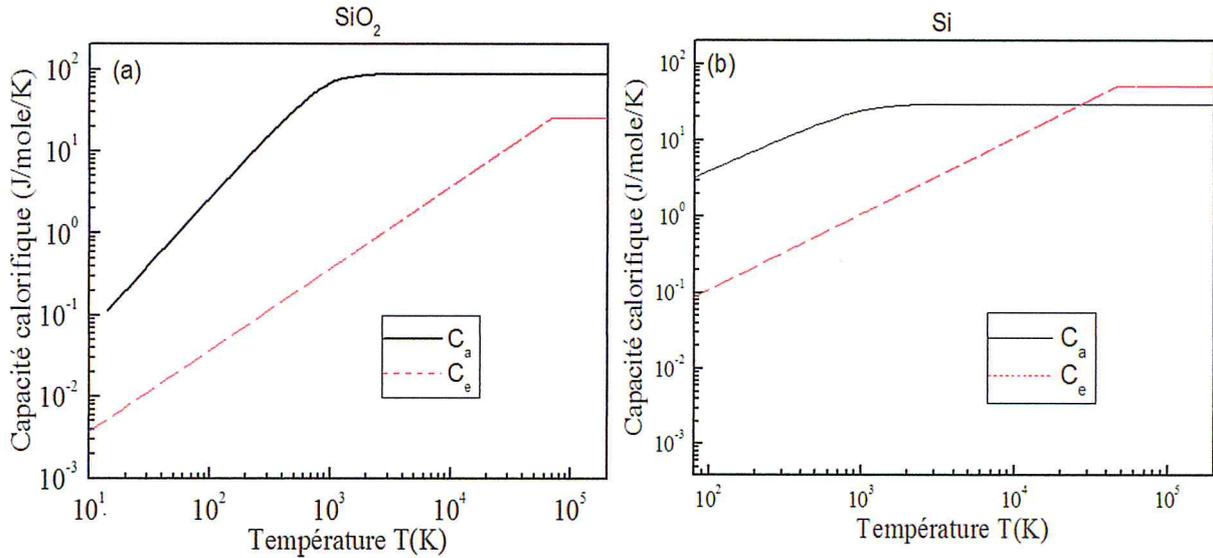


Figure II.2 : Variation en fonction de la température de la capacité calorifique pour les deux sous-systèmes électronique et atomique dans le cas du (a) silicium [32] et du (b) dioxyde de silicium [31].

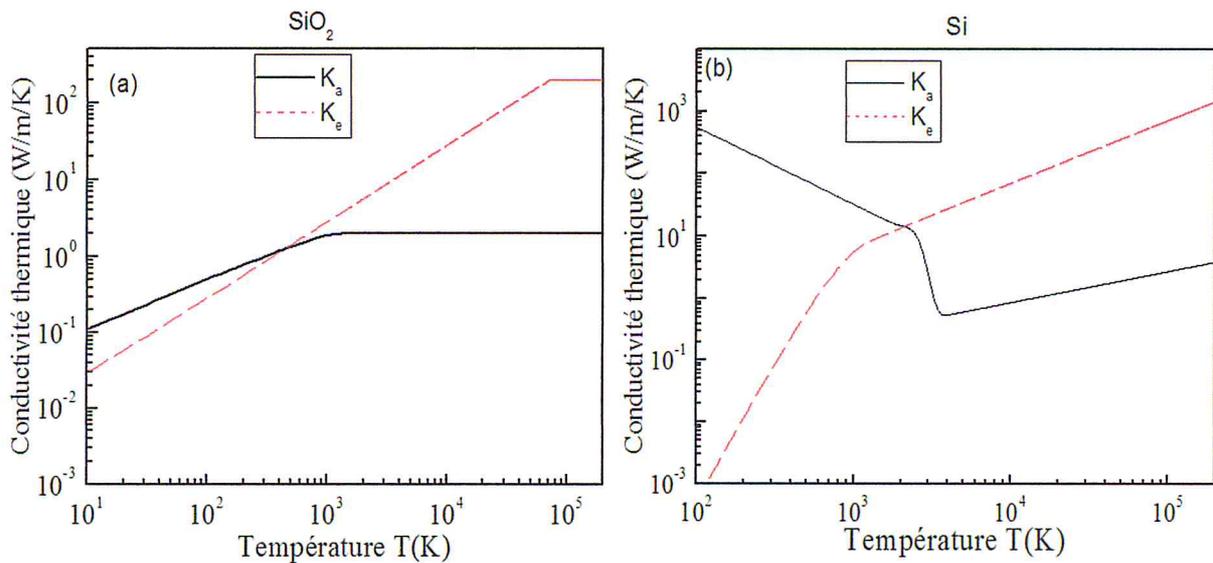


Figure II.3 : Variation en fonction de la température de la conductivité thermique pour les deux sous-systèmes électronique et atomique dans le cas du (a) silicium [32] et du (b) dioxyde de silicium [31].

D'autres paramètres physiques nécessaires pour la résolution de nos deux équations différentielles sont également introduits dans le tableau II.1.

Paramètre	Matériau (Si)	Matériau (SiO ₂)
Mass atomique	28.086 g/mol	60.08 g/mol
Densité massique	2.32 g/ cm ³	2.64g/ cm ³
Nombre d'élec. de valence	Z= 4	Z= 16
Température de fusion (T _m)	1683 K	1972 K
Température de vaporisation	2953 K	3223 K
Température de Fermi	149784 K	45529
Température de Debye	645 K	470 K
Const. de couplage é-p (g)	5.0×10 ¹² W/K/cm ³	1.25×10 ¹³ W/K/cm ³
Temps de relaxation é-p (τ)	0.244ps	0. 15ps
Énergie d'activation	0.6 eV	0.28 eV/at.
Énergie de sublimation	4.7 Ev	3.3 eV

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

II.5. Nombre de défauts créés en volume et rendement de pulvérisation en surface

Avant de procéder au traitement numérique de nos équations (II.9a) et (II.9b) discrétisées, nous évoquons ici les deux intégrales permettant la détermination du nombre Z d'atomes déplacés en volume et par unité de parcours ainsi que du rendement de pulvérisation en surface. Ces deux intégrales doubles déjà décrites au premier chapitre (éqs. I.13 et I.14) sont réécrites ici sous les deux formes explicites suivantes :

$$N_d(\text{at./}\mu\text{m}) = 2\pi n_a \int_0^\infty dt \int_0^\infty \frac{k_B T_D}{h} \exp\left(\frac{-U_a}{k_B T_a(r,t)}\right) r dr, \quad (\text{II.10})$$

$$Y(\text{at./ion}) = 2\pi n_a \int_0^\infty dt \int_0^\infty \sqrt{\frac{k_B T_a(r,t)}{2\pi M_a}} \exp\left(\frac{-U_s}{k_B T_a(r,t)}\right) r dr. \quad (\text{II.11})$$

Avec U_a et l'énergie d'activation et U_s l'énergie de surface et h constante de Planck En connaissant donc le profil spatio-temporel de la température du sous-système atomique selon l'approche modifiée du modèle de pointes thermiques, nous pouvons aisément évaluer les deux grandeurs physiques régissant l'effet d'irradiation ionique dans les matériaux étudiés.

II.6 : Procédure numérique

Les deux équations discrétisés (II.9a) et (II.9b) sont finalement résolues via un algorithme numérique contenu dans un programme FORTRAN en respectant la condition de convergence suivante :

$$\frac{2D_e\Delta t}{(\Delta r)^2} < 1, \quad (II.12)$$

où D_e est la diffusivité électronique dans le solide donnée par la relation (II.3b). Nous avons fixé les pas de discrétisation (Δr , Δt) à des valeurs appropriées en faisant plusieurs itérations.

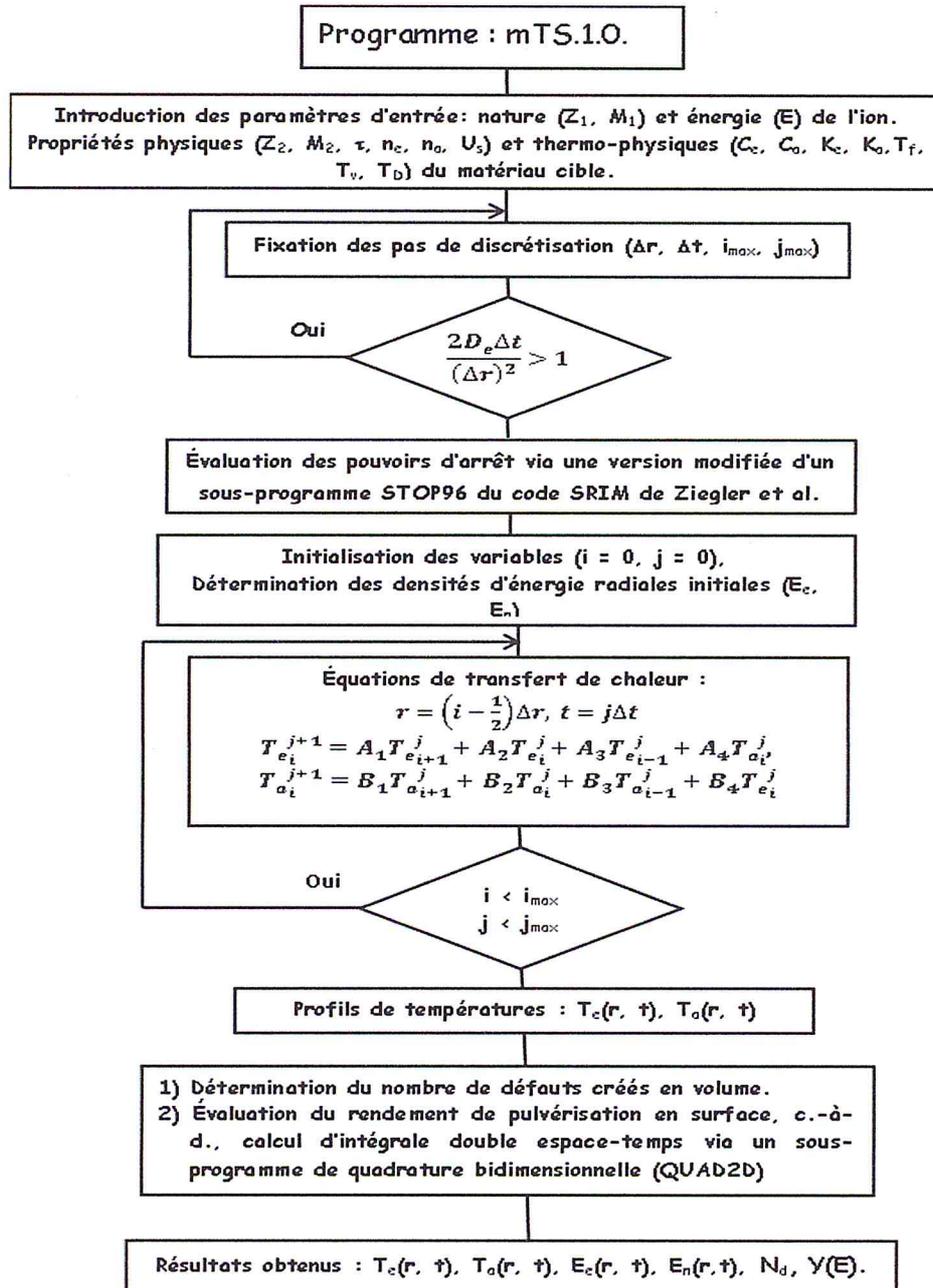


Figure II.4 : Schéma représentatif de l'algorithme du programme fortran utilisé.

Pour la détermination du nombre de défauts créés N_d et le rendement de pulvérisation Y via les deux expressions (II.10) et (II.9b), nous avons inclus dans notre programme numérique un sous-algorithme supplémentaire de quadrature bidimensionnelle (QUAD2D) en espace et en temps. Également pour tenir compte des paramètres de ralentissement de l'ion incident dans le matériau étudié, nous avons introduit une version modifiée d'un sous-programme (STOP96) du code SRIM de Ziegler et al. (ZBL) [33]. Ce sous-programme calcule directement les pouvoirs d'arrêts (nucléaire et électronique) à partir des expressions semi-empiriques obtenues par ajustement aux données expérimentales d'un grand nombre de systèmes projectile-cible. Les différentes étapes suivies par ce programme pour l'évaluation des différents paramètres physiques (T_e , T_a , N_d , Y) sont schématisées sur la figure (II.3).

D'autre part, nous avons procédé de la même manière pour l'évaluation numérique du rendement de pulvérisation selon le modèle de pointes thermiques inélastique (i-TS) proposé précédemment par Dufour et al [5] (voir éqs. I.12a et I.12b). Notant que l'approche inélastique utilisée par ces derniers auteurs diffère de celle que nous avons adopté dans notre calcul de pointes thermiques (approche modifiée) par deux aspects : (i) le mécanisme de transfert de chaleur au sous-système électronique et (ii) les expressions utilisées pour décrire l'interaction électron-phonon dans les équations de diffusion de chaleur. Dans notre approche modifiée, l'énergie transférée par l'ion incident aux électrons et noyaux cibles est introduite comme condition initiale de la température électronique et atomique, et les équations de diffusion de chaleur contiennent uniquement la constante de couplage électron-phonon, $g \equiv \frac{n_e C_e}{\tau}$ via le terme $\frac{n_e C_e}{\tau} (T_e - T_a)$ reliant le transfert de chaleur entre les deux sous-systèmes électronique et atomique. Alors que dans le modèle inélastique, l'énergie transférée par l'ion incident aux électrons cibles est introduite dans les équations de transfert de chaleur en la considérant qu'elle s'opère d'une manière progressive durant toute la période du processus de thermalisation des électrons cibles. Nous avons ainsi utilisé la même méthode explicite de différences finies avec les mêmes conditions de convergence en utilisant des valeurs appropriées de la constante de couplage électron-phonon (g) (voir tableau II.1) similaire à celle donnée dans le cas du matériau de quartz [34] et du silicium [35] sous irradiation par des ions lourds. Aussi, nous avons utilisé les mêmes valeurs d'entrée des capacités calorifiques (C_e , C_a) et des conductivités thermiques (K_e , K_a) comme dans le cas de notre approche modifiée.

CHAPITRE III :
PRÉSENTATION DES
RÉSULTATS, ANALYSE &
DISCUSSION

III. Présentations des résultats, analyse et discussion

Le présent chapitre est consacré à la présentation des résultats numériques obtenus pour les différents paramètres physiques intervenant dans la simulation des effets d'irradiation ionique dans les deux matériaux étudiés (Si et SiO₂) via l'approche modifiée du modèle de pointes thermiques. Nous avons ainsi analysé ces résultats obtenus en discutant également l'influence de différents paramètres d'entrée sur le profil de température, le nombre de défauts créés en volume et le rendement de pulvérisation en surface. Notre choix est porté sur des ions lourds Bi⁺ d'énergie du keV jusqu'au GeV incidents sur les deux cibles de dioxyde de silicium de (SiO₂) et du silicium (Si). Finalement, les différentes valeurs numériques générées pour le nombre de défauts créés et pour le rendement de pulvérisations sont comparées aux données expérimentales existantes dans la littérature et aux différentes prédictions théoriques rappelées au premier chapitre.

III.1. Profil de distributions des températures en temps et en distance radiale

Sur les deux figures (III.1a) et (III.1b) sont présentée, à titre d'exemple, l'évolution des deux températures électronique et atomique en fonction du temps et de la distance radiale obtenue via l'approche modifiée (mTS) du modèle de pointes thermiques dans le cas de la cible SiO₂ irradiée par des ions lourds Bi⁺ d'énergie de 63.1 MeV correspondante à un pouvoir d'arrêt électronique de 10.8 keV/nm.

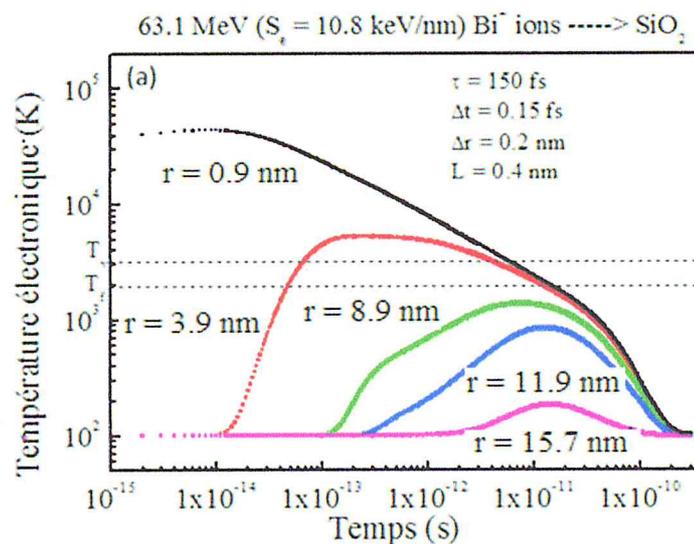


Figure III.1a: Variations de la température électronique en fonction du temps (t) et de la distance radiale (r) obtenues via l'approche modifiée (mTS) du modèle de pointes thermique pour une cible SiO₂ irradiée par des ions Bi⁺ d'énergie 63.1 MeV.

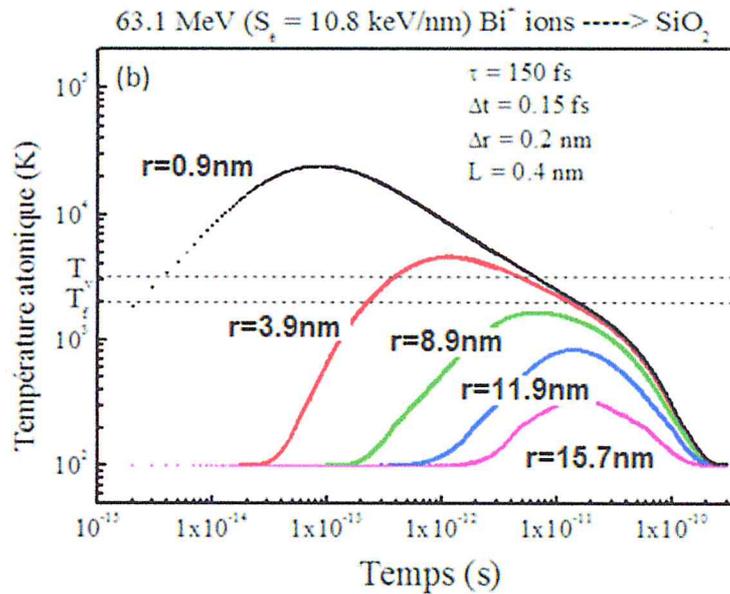


Figure III.1b: Idem figure (III.1a) mais pour la température atomique.

Nous pouvons observer sur ces deux figures une augmentation initiale de la température électronique jusqu'à une période de temps de l'ordre de 10^{-14} s (voir figure III.1a), suivie ensuite par une augmentation de la température atomique due au transfert de chaleur par couplage électron-phonon jusqu'à 10^{-13} s (voir figure III.1b). Par la suite, les deux températures diminuent lentement jusqu'à $\sim 10^{-11}$ s, puis diminuent rapidement pour atteindre leurs valeurs minimales à la température ambiante (à savoir, à 100 K) autour de $\sim 2 \times 10^{-10}$ s. Nous pouvons observer également sur ces deux figures la diminution des températures électronique et atomique en fonction de la distance radiale r . Ceci est expliqué par le fait que la densité d'énergie est significative beaucoup plus autour de la trajectoire de l'ion incident.

Ces comportements sont similaires à ceux précédemment révélés par divers calculs numériques pour un grand nombre de matériaux solides indépendamment des modifications introduites dans le modèle de pointes thermiques [7, 34, 36]. En particulier, différentes investigations numériques appuyées par des mesures qualitatives des rayons de traces latentes ont été précédemment effectuées [37-39] pour ce même matériau étudié en employant une autre approche dite modèle inélastique de pointes thermiques. Elles confirmaient ainsi les mêmes tendances avec peu de différences significatives dans les résultats numériques des profils de températures électroniques et atomiques.

Ainsi et à titre de comparaison, nous présentons sur les deux figures suivantes (III.2a) et (III.2b) le profil de distribution spatio-temporelle des températures électronique et atomique obtenue via l'approche inélastique (ITS) du modèle de pointes thermique de Dufour et al. [5] Toujours dans le cas de la cible du SiO₂.

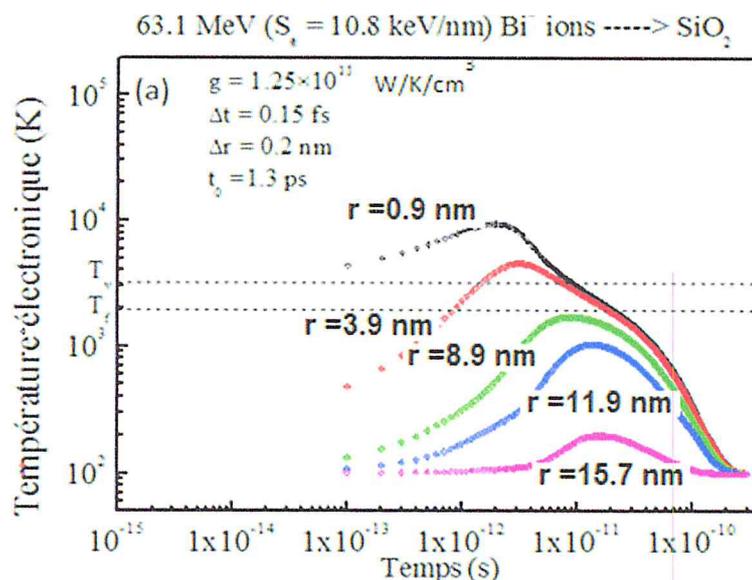


Figure III.2a: Variations de la température électronique en fonction du temps (t) et de la distance radiale (r) obtenues via l'approche inélastique (ITS) du modèle de pointes thermique pour une cible SiO₂ irradiée par des ions Bi⁺ d'énergie 63.1 MeV.

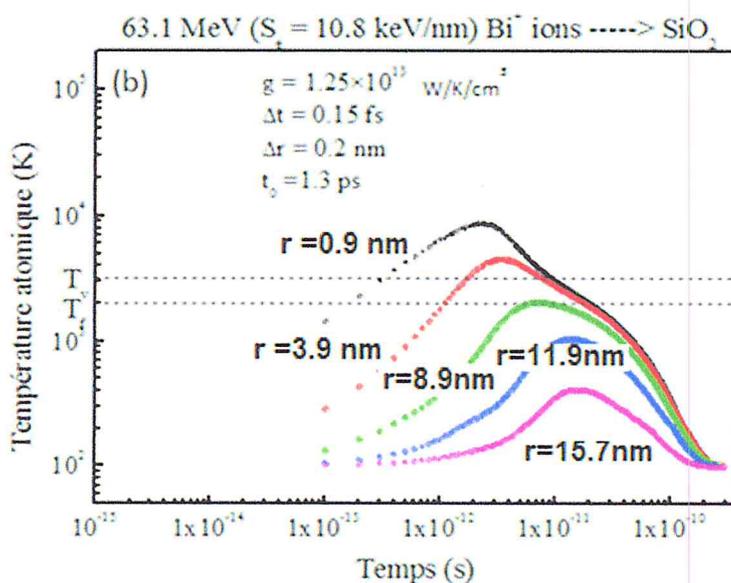


Figure III.2b: Idem figure (III.2a) mais pour la température atomique.

En observant attentivement les quatre figures présentées ci-dessus, nous pouvons remarquer la similitude dans l'évolution spatio-temporelle des deux températures avec pratiquement la même magnitude pour les deux approches mTS et ITS dans le cas de la

variation radiale. Cependant, pour la variation temporelle, nous observons que l'évolution de la température dans le cas de l'approche inélastique est retardée par rapport à celle modifiée. Cette différence pourrait être expliquée par la constante de couplage électron-phonon utilisée pour le calcul qui est de l'ordre de $1.25 \times 10^{13} \text{ W/k/cm}^3$, et qui peut donner un temps d'interaction é-p τ_{ITS} de l'ordre de 13 ps différent de celui utilisé dans l'approche mTS ($\tau_{\text{ITS}} \approx 0.15 \text{ ps}$) et qui a été précédemment mesuré via une expérience laser-matière [31].

III.2. Optimisation des différents paramètres physiques d'interaction

Par la suite, en intégrant sur tout l'intervalle du temps d'interaction et de la distance radiale le flux d'évaporation $\Phi(r, t)$ et la densité déplacement $v(r, t)$ explicitement introduits dans les relations (II.10) et (II.11), nous avons ainsi calculé numériquement le nombre de défauts créés par unité de parcours et le rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie de l'ion incident. Mais avant de comparer nos résultats numériques aux données expérimentales existantes dans la littérature, nous avons optimisé les différents paramètres d'interaction rentrant dans le calcul du rendement de pulvérisation.

III. 2.1. Pas de discrétisation spatio-temporels ($\Delta r, \Delta t$)

Les deux autres paramètres optimisés sont les pas de discrétisation ($\Delta t, \Delta r$) qui ont été fait varier en respectant la condition de convergence $(\frac{2D_e \Delta t}{(\Delta r)^2} < 1)$ donnée par la relation (II.12). Sur les deux figures (III.3) et (III.4), sont illustrées, à titre d'exemple, les variations du rendement de pulvérisation en fonction des pas de discrétisation spatio-temporels dans le cas des deux cibles Si et SiO₂.

Nous pouvons voir sur ces deux figures que les valeurs numériques du rendement de pulvérisation sont stables pour des pas de discrétisation comprises dans la gamme du temps 10^{-17} - 10^{-15} s et de distance radiale 0.1-0.6 nm. Notre choix est porté sur les valeurs appropriées de ($\Delta r = 0.2 \text{ nm}, \Delta t = 0.15 \text{ fs}$) dans le cas de la cible d'oxyde de silicium SiO₂ et de ($\Delta r = 0.2 \text{ nm}, \Delta t = 0.01 \text{ fs}$) dans l'autre cas du silicium Si. Concernant le temps de relaxation é-p pour la cible Si, une valeur appropriée de 1 fs. [40].

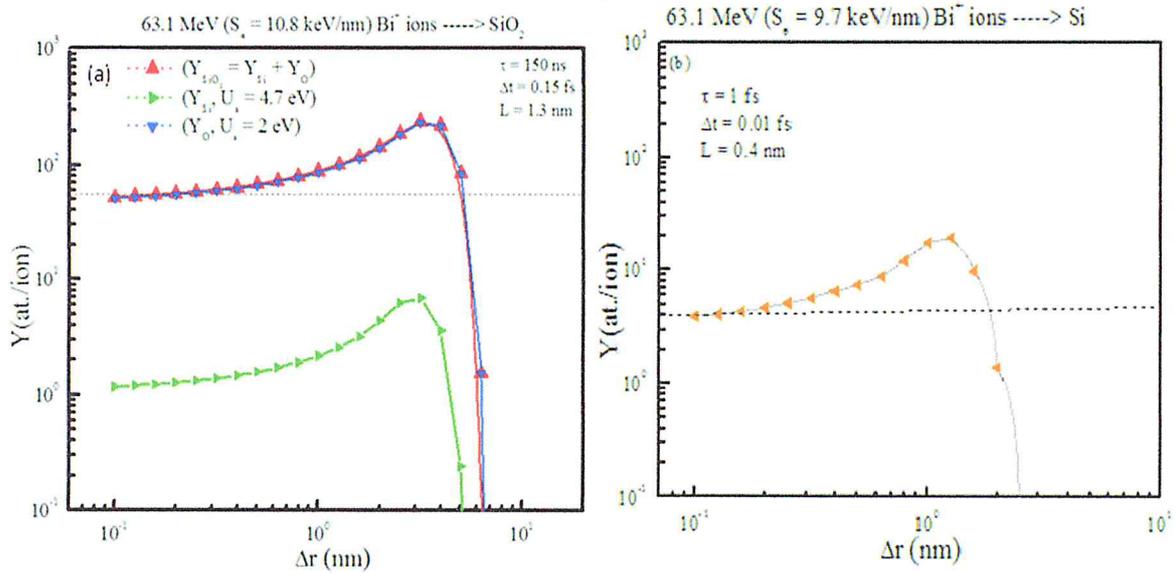


Figure III.3a : Variation du rendement de pulvérisation en fonction du pas de discrétisation radiale (Δr) pour des ions lourds Bi^{3+} d'énergie 63.1 MeV incidents sur une cible de (a) SiO_2 et de (b) Si en tenant compte uniquement de la perte d'énergie électronique ($S_n = 0$).

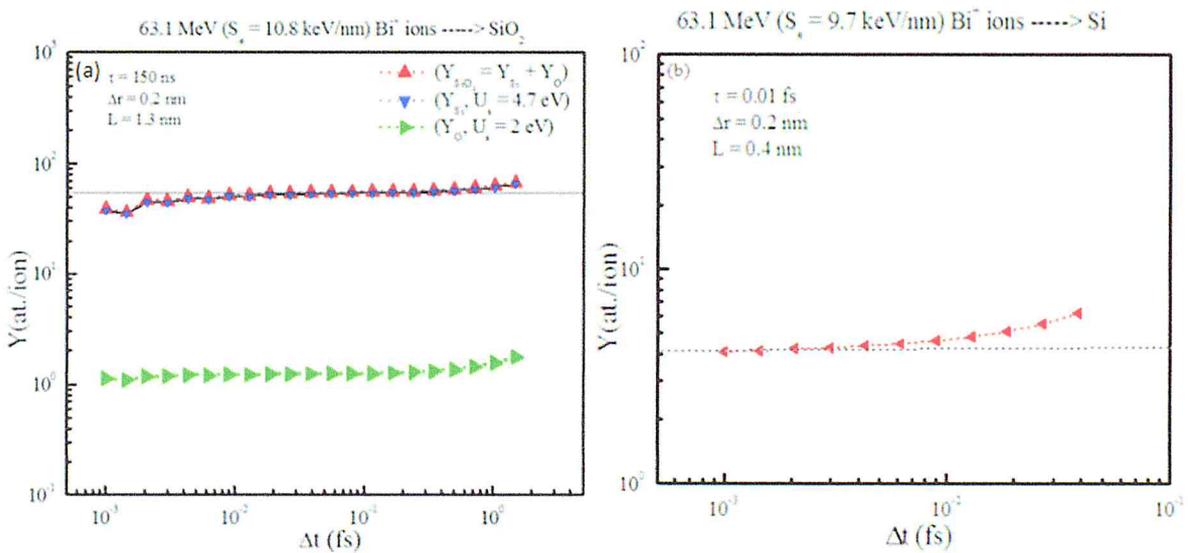


Figure III.3b : Idem Figure (III.3a) mais en faisant varier le pas de discrétisation temporel (Δt).

III. 2.2. Largeur à-mi-hauteur initiale (L) de la densité d'énergie électronique déposée

On doit noter que les valeurs appropriées du paramètre (L) peuvent être recherchées à partir des mesures expérimentales ou des tabulations numériques des rayons de traces latentes induites suite au bombardement du matériau étudié par des ions lourds aux

énergies du MeV. Mais nous avons fait varier librement ce paramètre pour voir son influence sur le rendement de pulvérisation (voir Figures III.4a et III.4b pour les cibles Si et SiO₂).

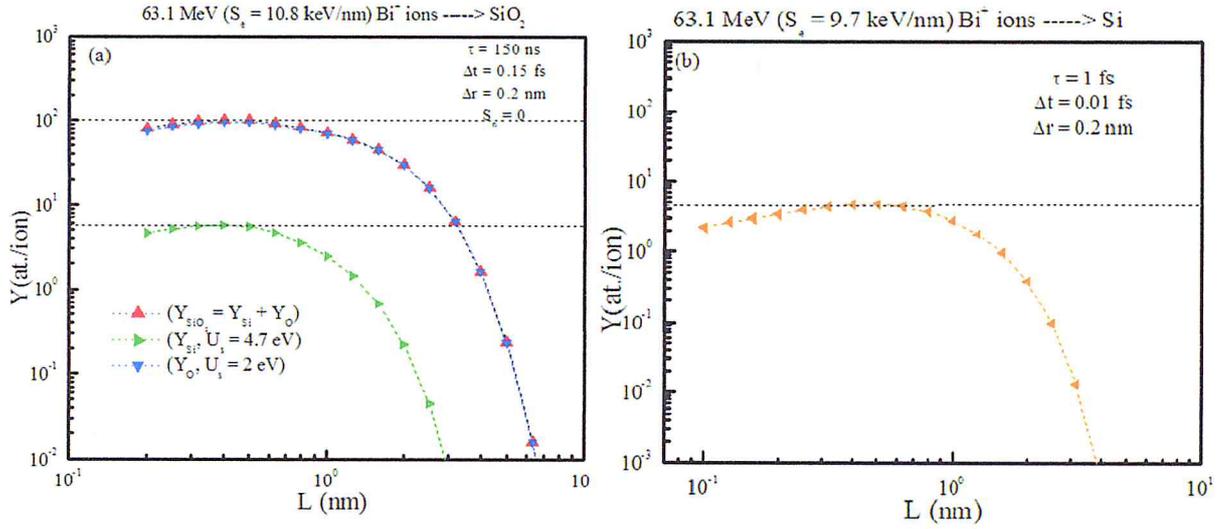


Figure III.4 : Idem que Figure (III.3) mais en faisant varier la largeur à-mi-hauteur (L) de la densité d'énergie électronique déposée.

Nous observons que le rendement de pulvérisation dans le cas du SiO₂ est stable ($Y \sim 10^2$ at./ion) pour des valeurs de (L) situées à peu près entre 0.2 nm et 2 nm, suivie d'une décroissance rapide au-delà de cette intervalle (Voir figure III.4a). Pour la cible de silicium, les valeurs de $Y(L)$ sont stables (~ 5 at./ion) pratiquement sur même intervalle (0.2 – 1.5) nm (voir Figure III.4b). Nous observons également que le rendement de pulvérisation partiel calculé pour Si dans le cas de la cible composée SiO₂ est pratiquement similaire à celui calculé dans le cas de la cible élémentaire Si.

Toutefois, les valeurs physiques et appropriées de largeur à-mi-hauteur L sont directement calculées à partir de la distribution radiale de dépôt d'énergie des électrons (δ) secondaires obtenue via un calcul Monté Carlo de Waligorski et al. [41] donnée par la relation suivante :

$$D(r) = \frac{S_e}{r(r+r_{min})} \left(\frac{r_{max}-r}{r_{max}+r_{min}} \right)^{\frac{1}{\gamma}}, \quad (III.1)$$

Où S_e est le pouvoir d'arrêt électronique, r_{max} et r_{min} sont, respectivement, le parcours maximal et minimal des électrons (δ) dans la direction perpendiculaire de l'ion incident, et γ est une constante. Par la suite, nous avons ajusté les valeurs numériques générées par la densité radiale $D(r)$ donnée par l'éq. (III.1) par la fonction plus explicite suivante :

$$F(r) = \frac{S_e}{r} \exp\left(-\frac{r}{r_0}\right), \quad (III.2)$$

Cette dernière fonction $F(r)$ est à peu près équivalente à la densité d'énergie utilisée dans l'approche modifiée du modèle de pointe (voir éq. II.5a), ce qui permet de déduire aisément la largeur à mi-hauteur initiale L de la densité d'énergie électronique, soit :

$$\sigma_e = \frac{L}{2(\ln 2)} \cong \sqrt{\frac{r_0 \lambda}{4}}, \quad (III.3)$$

Avec $\lambda = \sqrt{\tau D_e}$, où τ est le temps de relaxation électron-phonon (é-p) et D_e est la diffusivité électronique donnée par la relation (II.3b).

A titre d'exemple, dans le cas de la cible de SiO_2 irradiée à une énergie de 63.1 MeV, nous avons estimé la valeur de L à 1.8 nm. Notons que L est dépendant de l'énergie de l'ion incident. Nous présentons donc la variation de L en fonction de l'énergie, pour les deux cibles SiO_2 et Si sur la figure (III.5).

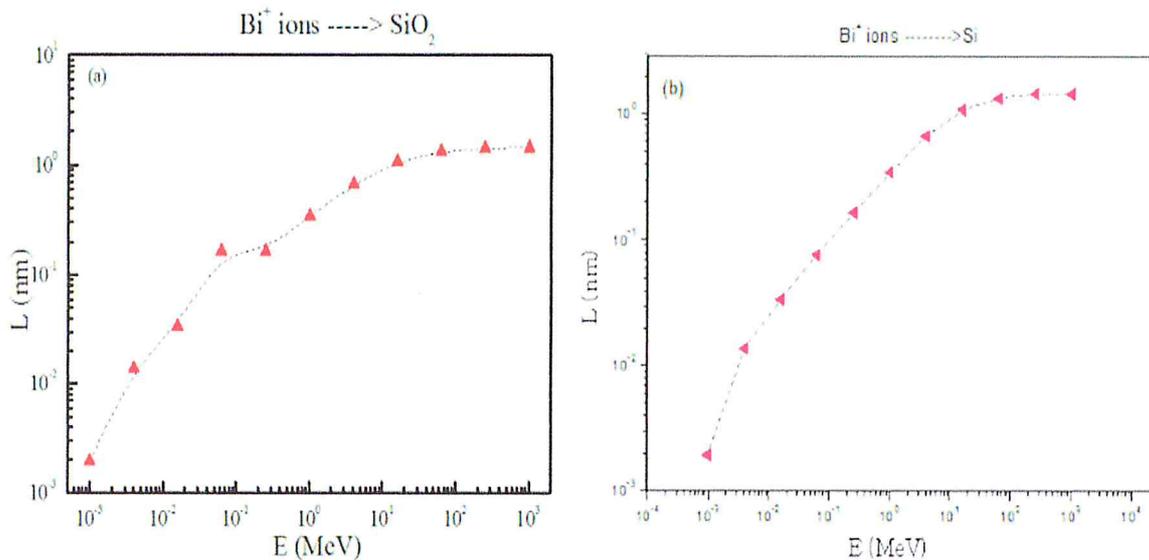


Figure III.5: Variation de la largeur à mi-hauteur de la distribution initiale (L) de la perte d'énergie électronique en fonction de l'énergie incidente des ions lourds Bi^+ bombardant les deux cibles (a) SiO_2 et (b) Si .

III. 2.3. Largeur à mi-hauteur initiale (R) de la densité d'énergie nucléaire déposée

Nous avons également fait varier librement le paramètre R de la largeur à mi-hauteur initiale de la densité d'énergie nucléaire déposée pour voir son influence sur le rendement de pulvérisation. Sur les deux figures (III.6a) et (III.6b), est présentée la variation du

rendement de pulvérisation en fonction de la largeur à mi-hauteur de la distribution initiale de la perte d'énergie nucléaire dans le cas des deux cibles SiO₂ et Si.

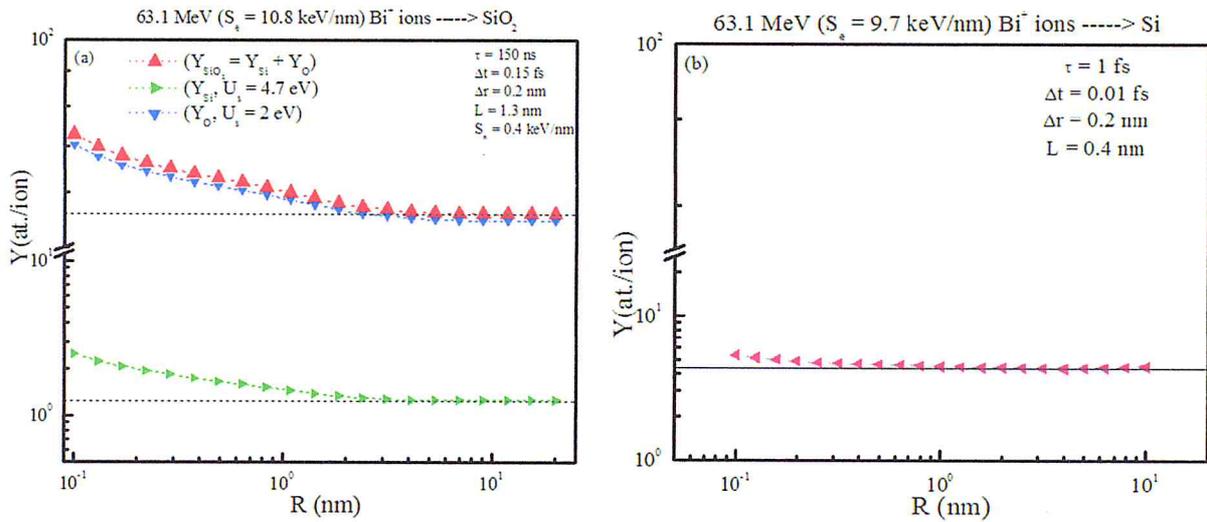


Figure III.6: Variation du rendement de pulvérisation en fonction de la largeur à mi-hauteur initiale (R) de la densité d'énergie nucléaire déposée pour des ions lourds Bi⁺ d'énergie 63.1 MeV incidents sur une cible de (a) SiO₂ et de (b) Si.

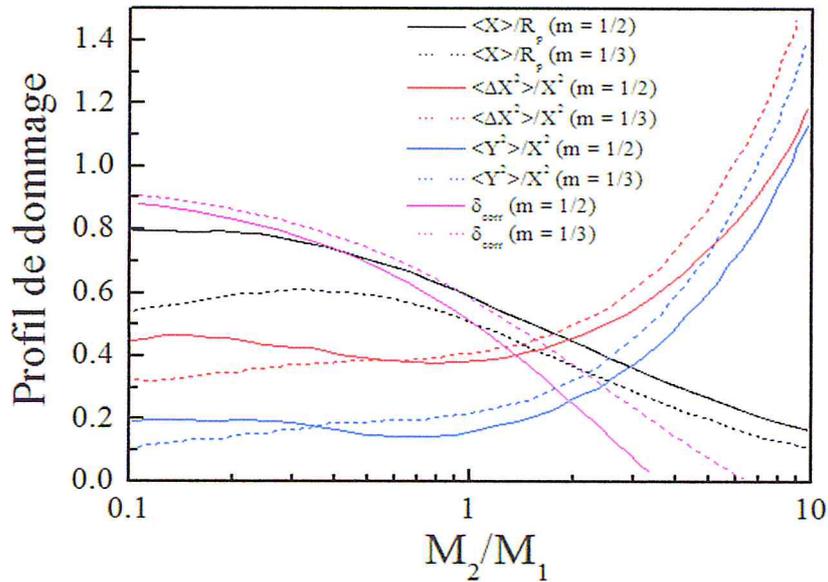


Figure III.7 : Variation en fonction du rapport des masses (M_2/M_1) de différents paramètres de dommages induits dans une cible (M_2) par des ions (M_1) d'énergie réduite (éq. 1.4b, $m = 1/3$, $\epsilon < 0.2$ et $m = 1/2$, $0.08 < \epsilon < 2.0$) d'après le calcul de Winterbon et al. [42].

Pour la cible de dioxyde de silicium, le rendement de pulvérisation $Y(R)$ est une fonction décroissante pour des valeurs de R inférieures à 2 nm, suivie d'une saturation où le rendement de pulvérisation est stable ($Y(R) \approx 56$ at./ion, voir Figure III.6a). Tandis que pour la cible Si, nous remarquons d'abord que les deux courbes de Si sur les figures (III.6a) et

(III.6b) sont pratiquement identiques et le rendement de pulvérisation est stable ($Y \sim 4$ at./ion) dans l'intervalle de R (2.0 nm – 3.9 nm).

D'autre part, des valeurs réelles du paramètre R peuvent être déterminées à partir du rayon de la zone des cascades de collisions élastiques non-linéaire (point thermique élastique) en utilisant le calcul Monté Carlo de Winterbon et al. [42] illustré sur la figure (III.7) où plusieurs courbes de profils de dommages sont tracées en fonction du rapport des masses cible/projectile M_2/M_1 . Sur cette figure, nous pouvons identifier les profils de dommage moyens selon l'axe X et Y perpendiculaires à la trajectoire de l'ion incident ainsi que leurs straggling de dommage associés plus le facteur correctif de volume de dommage par rapport au volume d'une cascade de collisions individuelle δ_{corr} .

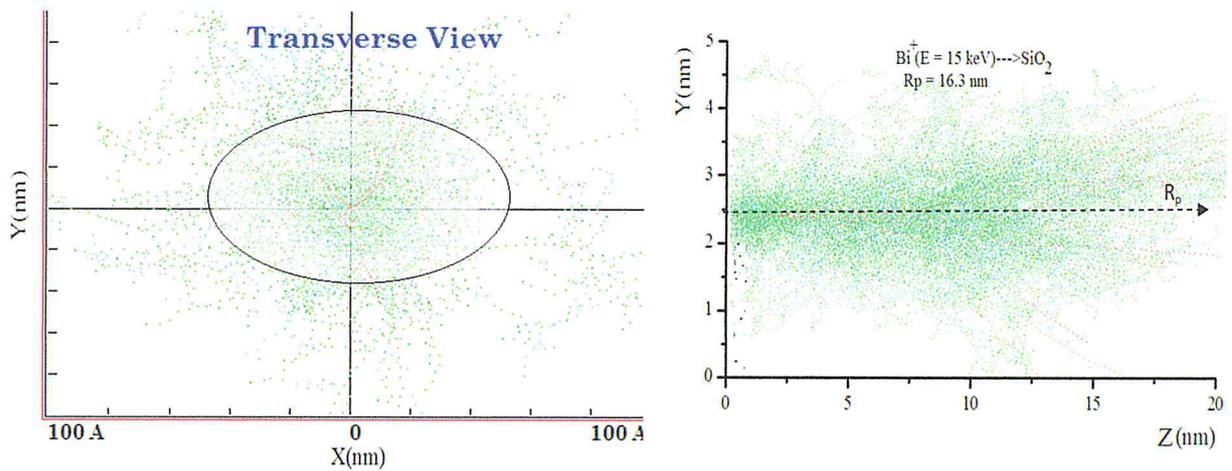


Figure III.8: Trajectoires des ions Bi^+ d'énergie de 15 keV et les dommages créés dans une cible SiO_2 selon les axes X, Y et Z obtenus via le code de simulation SRIM.

Sur la figure (III.7) suivante est présenté à titre d'exemple le résultat d'une simulation via le code SRIM [19] pour une cible SiO_2 irradiée par des ions Bi^+ d'énergie de 15 keV où nous observons clairement les trajectoires et les dommages selon les trois axes X, Y et Z.

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

$$E_n = (0.68)^2 \times \frac{S_n(E)}{A_{cas}}, \quad (III.4a)$$

avec $A_{cas} = \delta_{cor} \times \pi \langle Y^2 \rangle,$ (III.4b)

est la surface de la zone de cascades et $\langle Y^2 \rangle$ est le straggling de dommage selon l'axe Y.

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

$$E_n = \frac{3}{2} N_{at} K_B T_{surf}, \quad (III.4c)$$

Où T_{surf} est la température macroscopique atteinte sur la surface de la cible, elle est reliée à la largeur radiale initiale $\langle \rho_0^2 \rangle$ de la pointe thermique (voir éq. (I.11c) du chapitre I) :

$$T_{surf} = \frac{F_D(E,x=0)}{2\pi k_B N \langle \rho_0^2 \rangle}, \quad (III.4d)$$

où N est la densité atomique de la cible et F_D la densité d'énergie nucléaire déposée en surface.

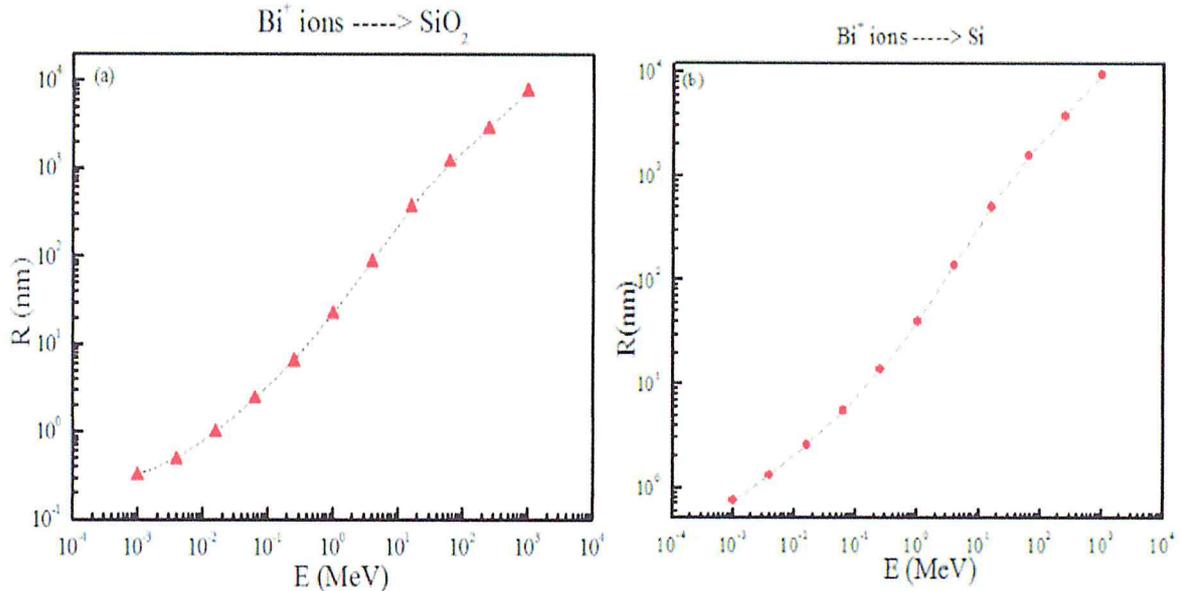


Figure III.9 : Variation de la largeur à-mi-hauteur (FWHM) de la distribution initiale (R) de la perte d'énergie nucléaire en fonction de l'énergie incidente des ions lourds Bi⁺ bombardant deux cibles : (a) SiO₂ et (b) Si.

Finalement, en se servant des relations suivantes (III.4a, III.4b, III.4c, III.4d et I.11d) ainsi que du calcul de Winterbon et al. [42] de la figure (III.6), nous avons déterminé la largeur initiale (R) de la densité d'énergie nucléaire qui est donnée par la relation explicite suivante :

$$\sigma_a = \frac{R}{2 \ln 2} \cong \sqrt{\frac{3\alpha \times A_{cas}}{4\pi(0.68)^2}}. \quad (III.5)$$

Sur la figure est tracée la variation du paramètre R en fonction de l'énergie incidente des ions Bi bombardant les deux cibles étudiée dans ce travail (SiO₂, Si). Nous observons que R(E) est une fonction croissante (ex., pour SiO₂ : R(1 MeV) ≈ 0.32 nm, R(1 GeV) ≈ 21.7nm et pour Si : R(1 MeV) ≈ 0.744nm, R(1GeV) ≈ 9429.26 nm).

III.3. Nombre des défauts créés en volume

Après l'optimisation des différents paramètres physiques d'entrée dans le programme mTS, nous avons calculé le nombre de défauts créés en volume et par unité de parcours N_d . Les résultats obtenus sont présentés sur la figure (III.10) en fonction du pouvoir d'arrêt

électronique de l'ion incident dans la cible dioxyde de silicium (SiO₂) où ils sont également comparés à la formule analytique de Kinchin-Pease[22] (donnée au premier Chapitre par la relation (I.8)) ainsi qu'avec des valeurs numériques d'atomes déplacés générées via le code de simulation SRIM [19]. Nous observons sur cette figure que notre calcul via l'approche modifiée (mTS) est en très bon accord avec la simulation SRIM et avec la formule analytique de Kinchin-Pease à basse énergie où le pouvoir d'arrêt nucléaire est prédominant. Cependant, aux énergies plus élevées correspondantes au régime du pouvoir d'arrêt électronique, notre calcul est en désaccord avec ces deux prédictions qui ne prennent pas en considération les effets des collisions électroniques inélastiques.

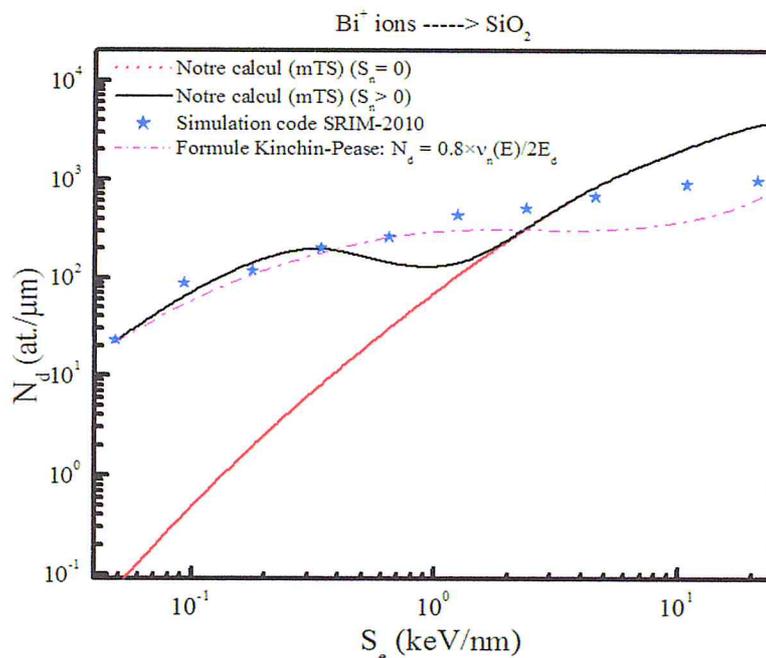


Figure III.10 : Variation du nombre de défauts créés en volume en fonction du pouvoir d'arrêt électronique pour des ions lourds Bi⁺ incidents sur une cible de SiO₂.

III.4. Le rendement de pulvérisation total

Finalement, nous avons également calculé le rendement de pulvérisation sur une large gamme d'énergie s'étalant de 1 keV jusqu'à 1 GeV. Sur la figure (III.11) est présentée la variation du rendement de pulvérisation calculé numériquement en fonction du pouvoir d'arrêt électronique des ions Bi⁺ incidents sur la cible SiO₂, où il est comparé aux données expérimentales [3, 12-16] disponibles dans la littérature ainsi qu'avec les prédictions théoriques de Sigmund [24] et de Sigmund-Claussen [25] valables dans le régime du pouvoir d'arrêt nucléaire (c.-à-d., aux énergies du keV). Notons également que l'approche inélastique

du modèle de pointes thermiques (ITS) développée par Dufour et al. [5] a été également incluse dans la comparaison.

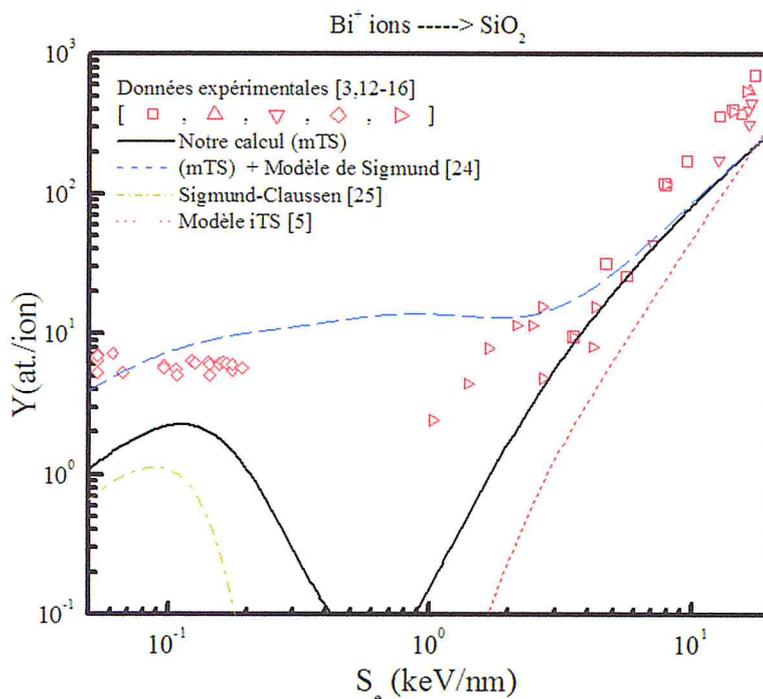


Figure III.11 : Variation du rendement de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique pour des ions lourds Bi⁺ incidents sur une cible de SiO₂. La comparaison avec les données expérimentales et d'autres prédictions théoriques est également incluse.

En observant attentivement cette dernière figure (III.11) , nous pouvons faire les remarques suivantes : notre calcul via l'approche modifiée (mTS) additionnée à la théorie linéaire de cascades élastiques de Sigmund [24] est en très bon accord avec les données expérimentales du rendement de pulvérisation sur toute la région de prédominance du pouvoir d'arrêt électronique tandis que le modèle inélastique de Dufour et al. [5] s'écarte légèrement en dessous de nos valeurs numériques. Aux basses énergies correspondantes au régime du pouvoir d'arrêt électronique, notre calcul via l'approche mTS est en accord satisfaisant avec la théorie de cascades élastiques non-linéaires de Sigmund-Claussen[25]. Il est aussi en très bon accord avec les données expérimentales lorsqu'on tient en compte de la contribution des cascades de collisions élastiques linéaires dans le processus de pulvérisation. Comme on peut le constater, le rendement de pulvérisation calculé via l'approche mTS en tenant compte uniquement des collisions électroniques inélastiques devient significatif à partir d'une valeur seuil du pouvoir d'arrêt électronique $S_e \approx 1.25$ keV/nm correspondante à peu près à une énergie cinétique de 1 MeV de l'ion Bi⁺ incident,

tandis que celle du modèle iTS a été estimée à $S_e(4 \text{ MeV}) \sim 2.37 \text{ keV}$. Ainsi, la valeur seuil du pouvoir d'arrêt électronique est très proche de celle obtenue expérimentalement [43] dans le cas des ions lourds Au^+ incidents sur une cible de quartz. Notons finalement que la différence entre l'approche modifiée et celle du modèle inélastique réside dans le fait que le calcul via la première approche est basé sur l'introduction des valeurs précises des paramètres d'entrée déduites expérimentalement comme le temps d'interaction τ , tandis que celle de Dufour et al [5] (c.-à-d., iTS) utilise généralement la constante de couplage électron-phonon comme paramètre d'ajustement aux données expérimentales des traces latentes induites dans le matériau irradié.

CONCLUSION

Dans le présent travail, nous avons effectué une étude numérique de la pulvérisation en surface induite par des ions lourds aux énergies du MeV sur deux matériaux solides de dioxyde de silicium et de silicium en employant une approche modifiée du modèle de pointes thermiques avec l'introduction des valeurs appropriées des propriétés physiques et thermo-physiques du matériau étudié et les paramètres pertinents du ralentissement de l'ion dans la matière.

Nous avons comparé par la suite nos résultats numériques obtenus du rendement de pulvérisation avec les données expérimentales existantes dans la littérature ainsi qu'avec d'autres valeurs numériques générées par différentes prédictions théoriques précédemment proposées pour décrire le phénomène de pulvérisation atomique.

Mon stage de formation Master au sein du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger était bénéfique pour moi. Il m'a permis d'approfondir mes connaissances théoriques sur le phénomène de l'interaction ion-matière et d'acquérir de nouvelles idées sur les effets d'irradiation ionique dans la matière. J'ai appris qu'un travail scientifique nécessite une recherche bibliographique approfondie et une connaissance parfaite des mécanismes régissant les phénomènes physiques mises en jeu. Finalement, le traitement, l'analyse et l'interprétation des données occupent une place centrale dans un travail scientifique qui nécessite donc la maîtrise des logiciels informatiques et des codes de simulation associés aux différentes méthodes numériques et mathématiques.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] M. Nastasi, J.W. Mayer, J.K. Hirvonen, 1996, Ion–Solid Interactions: Fundamentals and Applications, Cambridge University Press.pag (49).
- [2] P. Sigmund, 2012, Recollections of fifty years with sputtering, Thin Solid Films **520**, 6031-6049.
- [3] R. Behrisch, W. Eckstein (Eds.), 2007, Sputtering by particle bombardment, Topics in Appl. Phys, Vol. **110**, Springer-Verlag.
- [4] R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, Nuclear Tracks in solids (university of California Press, Berkely 1975).
- [5] C. Dufour, A. Audouard, F. Beuneu, J. Dural, J.P. Girard, A. Hairie, M. Levalois, E. Paumier and M. Toulemonde, 1993, J. Phys. Condens. Matter **5**, 4573-4584.
- [6] G. Szenes, 1996, Nucl. Instr. and Meth. B **116**, 141-144.
- [7] K. Yasui, 1994, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B, **90**, 409-411.
- [8] L. Fonseca, M. Lozano, F.Campabadal, C.Martínez, M.Ullán, B.S.Avset, A.Ruzin, F. Lemeilleur, E. Nossarzewska-Orlowska, 2000, Microelectronics Reliability **40** (4), 791-794.
- [9] A. Ruzin, G. Casse, M. Glaser, F. Lemeilleur, J. Matheson, S. Watts, A. Zanet, Radiation effects in silicon detectors processed on carbon and oxygen rich substrates, Materials 2000, Science in Semiconductor Processing**3**(4), 257-261.
- [10] S. Mammeri, S. Ouichaoui, H. Ammi., C.A. Pineda-Vargas., A. Dib. etM .Msimanga., 2012, Sputtering and surface topography modification of bismuth thin films under swift $^{84}\text{Kr}^{15+}$ ion irradiation, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **292**, 11-17.
- [11] S. Mammeri, S. Ouichaoui, H. Ammi, C.A. Pineda-Vargas, A. Dib et M. Msimanga, 2015, Thermal spike model interpretation of sputtering yield data for Bi thin films irradiated by MeV $^{84}\text{Kr}^{15+}$ ions, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **354**, 235-239.
- [12] N. Matsunami, M. Sataka, A. Iwase, 2002, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **193**, 830-834.
- [13] N. Matsunami, M. Sataka, A. Iwase, S. Okayasu, 2003, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **209**, 288-293.
- [14] M. Toulemonde, C. Dufour, A. Meftah, E. Paumier, 2000, Transient thermal processes in heavy ion irradiation of crystalline inorganic insulators, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **166-167**, 903-912.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [15] M. P. Seah, T.S. Nunnery, 2010, Sputtering yields of compounds using argon ions, J. of Phys. D: Appl. Phys., IOP Publishing, **43** (25), 253001.
- [16] S. Ninomiya, I. Imada, M. Nagai, Y. Nakata, T. Aoki, J. Matsuo, N. Imanishi, 2005, Total sputtering yields of solids under MeV-energy Si ion bombardment, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **230**, 483–488.
- [17] J. Lindhard, M. Scharff and H. E. Schiott, 1963, Mat. Fys. Medd. Dan Vid. Selsk. **33**, N° 14 (LSS theory).
- [18] J. Lindhard, V. Nielsen and M. Scharff, 1968, Approximation Method in Classical Scattering by screened Coulomb Fields (notes on Atomic Collisions I), Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. **36** No. 10/ 1.
- [19] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark, 1985, *The Stopping and Range of Ions in Solids* (Pergamon Press, New York); Le code TRIM/SRIM est disponible sur le site <http://www.srim.org>
- [20] S. P. Ahlen, 1980, Rev. Mod. Phys. **52**, No.1/ 121.
- [21] E. Bonderup, 1967, kgl. Dansk . Vid .Sels. Mat. Fys. Medd **35** No. 17.
- [22] M.T. Robinson, Phil. Mag. **12** (1965) 741 ; J. Nucl. Mater. **110** (1982) 147.
- [23] R. A. Baragiola, 2004, Phil. Trans. R. Soc. Lond. A **362**, 29.
- [24] P. Sigmund, 1969, Theory of sputtering. I. Sputtering yield of amorphous and polycrystalline targets, Phys. Rev. **184**, 383-416.
- [25] P. Sigmund, C. Claussen, 1981, sputtering from elastic-collision spikes in heavy-ion-bombarded metals, J. Appl. Phys. **52**, 990-995.
- [26] R. Leri- setti, Y.L. Wang, G.J. Grow, 1984, J.Phys. (paris) **45**, C9-149.
- [27] R. L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, 1975, Nuclear Tracks in solids (university of California Press, Berkely).
- [28] F. Desaner, 1923, Z. Physik **38**, 12.
- [29] M. Boccanfuso, 2001, Relation entre le gonflement et la création de défauts dans les cristaux ioniques irradiés par des ions lourds rapides, (Thèse université de CAEN, France).
- [30] H. Hijazi, 2011, interaction ions- surfaces, (université de CAEN BASSE – Normandie France), Pag 34.
- [31] K. Awazu, X. Wang, M. Fujimaki, and J. Tominaga, H. Aiba, and Y. Ohki, and T. Komatsubara, 2008, Elongation of gold nanoparticles in silica glass by irradiation with swift heavy ions, Phys. Rev. B **78**, 054102.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [32] S. L. Daraszewicz, D.M. Duffy, 2011, Nucl. Instr. and Meth. InPhys.Res. B **269**, 1646–1649
- [33] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark, 1985, The stopping and range of ions in solids, Pergamon, New York; SRIM computer code, available at <http://www.srim.org>.
- [34] M. Toulemonde, W. Assmann, C. Dufour, A. Meftah, C. Trautmann, 2012, Nanometric transformation of the matter by short and intense electronic excitation: Experimental data versus inelastic thermal spike model, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **277**, 28-39.
- [35] O. Osmani, 2011, irradiation effects of swift heavy ions in matter, Thesis University Duisburg-Essen . Pag 49 -51.
- [36] A. I. Ryazanov, S.A. Pavlov, E. V. Metelkin. AndA.V. Zhemerev, 2005, Effect of Coulomb Explosion on Track Formation in Metals Irradiated by Heavy Ions, J. of Exp. and Theor. Phys **101(1)**, 120-127.
- [37] M. Toulemonde, E. Balanzat, S. Bouffard, J.J. Grob, M. Hage-Ali and J. P. Stoquert, 1990, Damage Induced By High Electronic Stopping Power In SiO₂, Quartz, **B46**, 64-68.
- [38] M. Toulemonde, J. M. Costantini, C. Dufour, A. Meftah, E. Paumier, F. Studer, 1996, Track creation in SiO₂, and BaFe₁₂O₁₉ by swift heavy ions:a thermal spike description, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B, **116**, 37-42.
- [39] M. Toulemonde, W. Assmann, C. Trautmann, F. Greuner, H. D. Mieskes, H. Kucal, Z.G. Wang, 2003, Electronic sputtering of metals and insulators by swift heavy ions, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **212**, 346-357.
- [40] Qi. Xuele, C. stevesuh, 2010, Internal Journal of Heat and Mass Transfer. **53**, 41-47.
- [41] M. R. Waligorski, R.N. Hamm and R. Katz, 1986, The radial distribution of dose around the path of a heavy ion in liquid water, Nucl. TracksRadiat. Meas. **11**, 309-319.
- [42] K.B. Wanterbon, P. Sigmund, and J.B. Sacauders (1970) Spatial Distribution of energy Deposited by atomiqueparticules in elastic collisions, Mat. Fys. Medd. Danvid. Selsk. **37** (no.14), 5.
- [43] M. Toulemonde, S.M.M. Ramos, H. Bernas, C. Clerc, B. Canut, J. Chaumont and Trautman C., 2001, MeV gold irradiation induced damage in / α -quartz: Competition between nuclear and electronic stopping, Nucl. Instr. and Meth. In Phys. Res. B **178**, 331-336.