



**HAL**  
open science

# Etude des défauts surfaciques et volumiques induits par les ions lourds dans les isolants

Nassima Khalfaoui

► **To cite this version:**

Nassima Khalfaoui. Etude des défauts surfaciques et volumiques induits par les ions lourds dans les isolants. Physique [physics]. Université de Caen, 2003. Français. NNT: . tel-00005926

**HAL Id: tel-00005926**

**<https://theses.hal.science/tel-00005926>**

Submitted on 19 Apr 2004

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# UNIVERSITE DE CAEN/BASSE NORMANDIE

U.F.R. : des Sciences  
ECOLE DOCTORALE « Structure, Information, Matière et Matériaux »

## THESE

Présentée par

**Mme Nassima Khalfaoui**

Date de soutenance : 21 octobre 2003

en vue de l'obtention du

**DOCTORAT de L'UNIVERSITE de CAEN**

**Spécialité : Milieux denses et Matériaux**

(Arrêté du 25 avril 2002)

## **Etude des défauts surfaciques et volumiques induits par les ions lourds dans les isolants**

### **MEMBRES du JURY**

**Pr P. Descamps**, Directeur du LAMIP, Caen, France

**Dr A. Benyagoub**, Chargé de Recherches, CNRS, CIRIL, Caen, France

**Dr F. Gourbilleau**, Chargé de Recherches, CNRS, LERMAT, Caen, France

**Pr J. Teillet**, Professeur, Université de Rouen, France (*rapporteur*)

**Dr M. Toulemonde**, Directeur de Recherches, CNRS, Caen, France, (*directeur de thèse*)

**Dr C. Trautmann**, Senior Scientist, GSI, Darmstadt (Allemagne), (*rapporteur*)



*A mon époux Malik, mon fils Kahel et mes parents*



## Remerciements

Messieurs J.P. Grandin et S. Bouffard ont été les directeurs du Centre Interdisciplinaire de Recherche Ions Laser (CIRIL) durant ma thèse. Je les remercie de m'avoir accueillie et soutenue pendant toutes ces années. Plus particulièrement je remercie chaleureusement S. Bouffard qui m'a initiée à l'observation des surfaces par la microscopie à force atomique.

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à Marcel Toulemonde qui a dirigé ce travail de thèse. Pendant ces trois années, il n'a cessé de me prodiguer ses conseils, ses critiques et ses encouragements.

Je remercie l'ensemble des membres de jury qui ont étudié ce travail avec intérêt, et plus particulièrement Madame C. Trautmann (GSI, Allemagne) et Monsieur J. Teillet (Université de Rouen) qui ont accepté d'être les rapporteurs de ce mémoire.

Je tiens à exprimer mes remerciements aux différentes équipes avec qui nous avons collaborés : ce sont les équipes de GSI (Darmstadt) et des surfaces de l'Université d'Osnabrück en Allemagne, ainsi que les personnels des Laboratoires IRES et PHASE de Strasbourg. Je remercie également Monsieur I. Baranov du V. G. Khlopin Radium Institute (St.-Petersburg, Russie) pour l'élaboration des clusters d'or ainsi que Monsieur V. Skuratov (JINR, Dubna, Russie) pour la préparation d'échantillons de saphir.

C'est avec plaisir que je remercie Ali Meftah (Université de Skikda, Algérie), qui m'a fait découvrir ce domaine de recherche.

En fin mais pas en dernier, un grand merci à toute l'équipe du CIRIL : les chercheurs pour leurs discussions enrichissantes, les techniciens pour leur aide précieuse dans les irradiations, les secrétaires pour leur compétence à régler les problèmes administratifs et les thésards pour l'ambiance qu'ils créent au sein du laboratoire.



## Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre I : Interaction ions matière</b>	
I. Introduction	3
I-1. Perte d'énergie du projectile	3
I-2. Théorie classique de l'interaction	5
I-3. La perte d'énergie nucléaire	7
I-4. La perte d'énergie électronique	7
I-5. Comparaison entre la perte d'énergie électronique et nucléaire	11
I-6. Création de défauts par la perte d'énergie nucléaire	12
I-7. Terminologie	13
I-8. Références	15
<b>Chapitre II : Etat de connaissance sur les isolants soumis aux excitations électroniques intenses</b>	
II. Introduction	17
II-1. Les matériaux amorphisables	18
II-2. Les matériaux non amorphisables	24
II-3. Autres matériaux non amorphisables	30
II-4. Comportement du saphir	31
II-5. Discussion et but du présent travail	36
II-6. Modèle de formation de traces	36
II-7. Références	40
<b>Chapitre III : Dispositifs d'irradiation et techniques d'analyse</b>	
III. Introduction	45
III-1. Les dispositifs d'irradiation	45
III-2. Les techniques de caractérisation	52
III-2-a. Les Microscopes à champ proche	52
III-2-b. La profilométrie de surface	89
III-2-c. Spectrométrie de Rétrodiffusion Rutherford en canalisation	91
III-3. Les références	99



## **Chapitre IV : Résultats expérimentaux**

IV. Introduction	101
IV-1. Résultats des irradiations du CaF <sub>2</sub>	101
IV-1-I. Les observations des défauts en surface par microscopie à force atomique	101
IV-1-II. Les résultats du CaF <sub>2</sub> par C-RBS	123
IV-2-I. Les résultats d'AFM pour le Y <sub>3</sub> Fe <sub>5</sub> O <sub>12</sub>	129
IV-3. Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	133
IV-3-I. Les résultats du Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> par microscopie à force atomique	133
IV-3-II. Les résultats du saphir obtenus par C-RBS	148
IV-3-III. Les résultats du Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> par Gonflement	152
IV-4 Références	156

## **Chapitre V : Comparaison des résultats expérimentaux et interprétations**

V. Introduction	157
V.1. Comparaison des résultats du Y <sub>3</sub> Fe <sub>5</sub> O <sub>12</sub> par AFM aux résultats existants	157
V-2. Comparaison des résultats du CaF <sub>2</sub> avec les résultats existants	158
V-3. Comparaison des résultats du Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> avec les résultats existants	161
V-4. Synthèse sur le comportement des isolants soumis aux excitations électroniques	167
V-5. Confrontation des résultats expérimentaux avec le modèle de la pointe thermique	168
V-6. Comportement des isolants sous impulsions lasers	173
V-7. Confrontation des résultats de la pointe thermique et les résultats expérimentaux déduits par les lasers	177
V-8. Références	178

## **Conclusion 181**

## *Introduction*



## *Introduction*

Les effets du dépôt d'énergie par des excitations électroniques dans la matière condensée font encore l'objet de recherches très intensives. Parmi ces effets nous sommes intéressés à la création de défauts observés à la surface, pour essayer de les corréler avec ceux qui apparaissent dans le volume.

En étudiant expérimentalement l'endommagement induit dans le volume, l'ensemble des résultats obtenu a permis d'établir une classification des isolants en deux catégories en fonction de leurs réponses vis à vis de l'excitation électronique: les matériaux amorphisables et les matériaux non amorphisables. Les matériaux amorphisables ont un seuil en perte d'énergie électronique d'apparition des défauts qui est systématiquement plus petit que celui des matériaux non amorphisables. Toutefois  $\text{Al}_2\text{O}_3$  qui est un matériau difficilement amorphisable présente un comportement identique à celui des matériaux non amorphisables. Cette particularité a suscité une étude plus détaillée du comportement de ce matériau sous irradiation par des ions lourds énergétiques. De plus ce matériau était un candidat pour être une des matrices de stockage des déchets nucléaires.

En conséquence, suite aux études faites précédemment sur  $\text{UO}_2$  (matériau non amorphisable), qui ont montré que sa réponse en surface est différente de celle dans le volume, nous avons entrepris une étude systématique de l'apparition des défauts à la surface, proche de la surface et dans le volume dans trois isolants différents : ( $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ , matériau amorphisable,  $\text{CaF}_2$  matériau non amorphisable et  $\text{Al}_2\text{O}_3$  qui est un matériau difficilement amorphisable), afin de voir s'il existe des différences entre la réponse surfacique et volumique de chacun des matériaux, après irradiation par des ions lourds. Les caractérisations physiques utilisées pour sonder la réponse de ces matériaux suites aux excitations électroniques intenses sont : la microscopie à force atomique « AFM » (étude de la surface), la rétrodiffusion de Rutherford en canalisation « C-RBS » (étude proche de la surface) et des mesures de profilométrie (étude du volume). Les irradiations des matériaux ont été faites auprès de l'accélérateur GANIL (Caen), de l'accélérateur UNILAC de GSI (Darmstadt) et au Vivitron (Strasbourg).

Ce mémoire est composé de cinq chapitres.

Dans le premier chapitre, nous rappelons les principaux aspects de l'interaction ion lourd-matière. A la fin de ce chapitre nous donnons les définitions de certains termes utilisés dans la suite de ce mémoire.

Le deuxième chapitre est divisé en deux parties : la première partie est consacrée à une synthèse bibliographique sur l'état de connaissances expérimentales obtenues lors de l'étude des isolants soumis aux irradiations par des ions. La seconde partie présente l'ensemble des modèles théoriques qui tentent d'apporter une interprétation aux résultats expérimentaux.

La description des dispositifs d'irradiations et des techniques d'analyse utilisés pour effectuer ce travail font l'objet du troisième chapitre. Nous précisons le type d'information que permet d'obtenir chaque technique de caractérisation.

Dans le quatrième chapitre, nous présentons et nous analysons les résultats obtenus de l'étude des trois matériaux ( $\text{CaF}_2$ ,  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) avant et après irradiation par les différentes techniques utilisées.

Enfin dans le chapitre cinq, dans la première partie, nous comparons nos résultats expérimentaux obtenus avec les résultats qui existent déjà dans la littérature. La deuxième partie est dédiée à l'exploitation des résultats expérimentaux, en utilisant le modèle de la pointe thermique. La troisième partie de ce chapitre compare l'interprétation proposée par le modèle de la pointe thermique pour  $\text{Al}_2\text{O}_3$  aux résultats déduits par l'irradiation de ce dernier par les lasers femtosecondes.

## ***Chapitre I : Interaction ions lourds matière***



## I. Introduction

Ce chapitre est consacré à la description de l'interaction ions-matière ainsi que la définition de la terminologie utilisée dans ce travail.

### I-1. Perte d'énergie du projectile

Si nous négligeons les réactions nucléaires qui, pour les ions considérés, ont des sections efficaces trop faibles pour apporter une contribution notable à l'endommagement, nous pouvons dire que deux mécanismes fondamentaux, considérés comme indépendants, décrivent l'interaction de l'ion incident dans la matière.

- Les collisions «élastiques» ou interactions coulombiennes directes entre la particule incidente et les noyaux de la cible.
- Les collisions «inélastiques» ou interactions avec les électrons de la cible.

A basse énergie ( $\sim 1$  keV/nm), le ralentissement de l'ion est essentiellement de nature «élastique». En revanche, il est essentiellement de nature «inélastique» à haute énergie ( $>100$  keV/nm), avec un maximum qu'on appelle le pic de Bragg, localisé aux environs de 1 à 5 MeV/u. Dans cette étude, compte tenu de l'énergie des ions (supérieure à 1 MeV/u), c'est essentiellement les collisions «inélastiques» qui nous intéressent.

Pour la perte d'énergie linéique le long de la trajectoire de l'ion, nous distinguons les pertes d'énergie électronique  $-(dE/dx)_e$  et nucléaire  $-(dE/dx)_n$ . Pour une cible, la valeur totale de la perte d'énergie de l'ion est la somme de ces deux composantes.

La perte d'énergie est caractéristique du milieu traversé et de la particule incidente (nature et énergie). Elle s'exprime généralement en  $\text{keV}\cdot\text{nm}^{-1}$  si on connaît la densité du matériau.

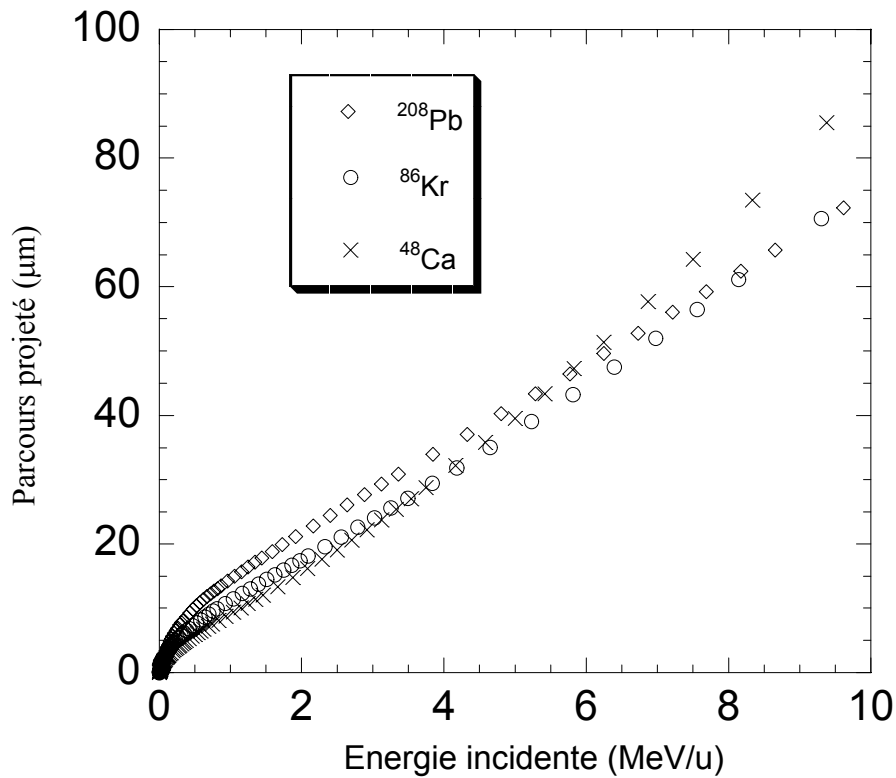
La perte d'énergie permet d'évaluer le parcours total  $R_L$  de la particule incidente dans le matériau.

$$R_L = \int_0^E - \left( \frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE \quad (\text{I-1})$$



Le parcours projeté  $R_p$  est défini comme étant la longueur du parcours  $R_L$  projeté sur la direction de l'ion incident. Le parcours transverse  $R_T$  mesure le déplacement de l'ion dans un plan perpendiculaire à sa direction d'incidence.

Le paramètre, utilisé habituellement à haute énergie, est le parcours moyen projeté qui est approché par l'expression I-1. La figure I-1 montre l'évolution du parcours projeté de divers ions dans le  $\text{CaF}_2$  en fonction de l'énergie du projectile.



**Figure I-1 :** Evolution du parcours projeté de divers ions dans une cible de  $\text{CaF}_2$  en fonction de l'énergie du projectile. Les courbes ont été déduites du code de calcul TRIM95 [13].

Pour une cible polyatomique, il suffit de pondérer les pertes d'énergie induites par chaque type d'atome  $i$  selon leurs densités atomiques  $N_i$  et leurs masses molaires  $A_i$  respectives par la relation de Bragg :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{total} = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^n N_i A_i \left(\frac{dE}{dx}\right)_i \quad (\text{I-2})$$

$$\text{Avec } M = \sum_{i=1}^n N_i A_i$$

Dans le domaine des énergies de plusieurs MeV/u, cette règle d'additivité est bien vérifiée [1].

## I-2. Théorie classique de l'interaction

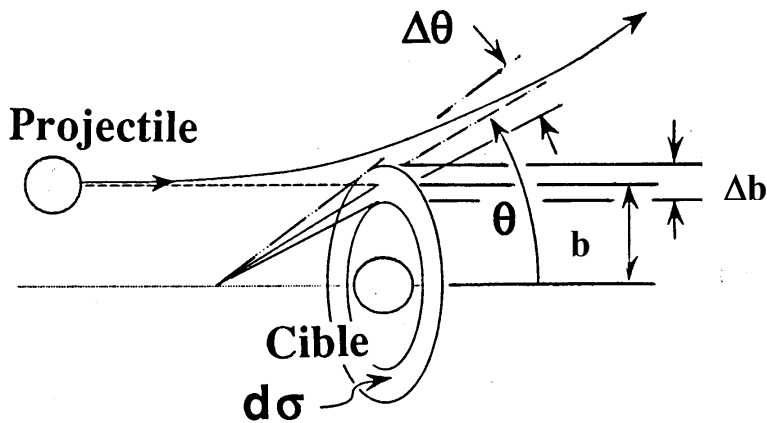
Nous ne considérons ici que le cas où le projectile a une vitesse  $V_1$  très supérieure à celle de la cible  $V_2$  ( $V_1 \gg V_2$ ). Dans le cas de collisions avec les noyaux de la cible  $V_2=0$  car les noyaux sont au repos. Pour les collisions avec les électrons de la cible  $V_2=$

$$V_0 = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{e^2}{h} = c/137. V_0 \text{ est la vitesse caractéristique de Bohr, } c \text{ est la vitesse de la lumière, } h$$

est la constante de Planck,  $e$  est la charge de l'électron,  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide. Dans ces conditions, nous pouvons décrire le problème comme une diffusion par un potentiel central  $V(r)=q_1q_2/r$ ;  $q_1$  et  $q_2$  étant respectivement les charges du projectile et de la cible.

### I-2-a. Diffusion de Rutherford

En mécanique classique, les trajectoires de deux particules après une collision sont bien déterminées par leurs vitesses et leurs paramètres d'impact (figure I-2).



**Figure I-2 :** Caractérisation classique de l'interaction entre deux corps en fonction du paramètre d'impact  $b$ , de l'angle de diffusion  $\theta$  et de la section efficace différentielle de collision  $d\sigma$ .

Pour une interaction coulombienne, l'angle de diffusion  $\theta$  dans le référentiel du centre de masse est relié au paramètre d'impact  $b$  et au diamètre de collision  $p$  par la relation :

$$\text{tg}\left(\frac{\theta}{2}\right) = \frac{p}{2b}$$

$p$  : représente la distance minimum d'approche entre la particule incidente et la particule cible, lors d'un choc frontal ( $b = 0$ ), défini par :

$$\frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 p} = \frac{M_0 V_1^2}{2} \quad (I-3)$$

$q_1$  et  $q_2$  sont respectivement la charge du projectile et de la cible

$M_0$  : la masse réduite définie par :  $(M_1 M_2)/(M_1 + M_2)$

$M_1$  : la masse du projectile d'énergie  $E$  et de vitesse  $V_1$

$M_2$  : la masse de la particule cible, supposée au repos.

L'énergie cinétique communiquée à la cible est :

$$T = \frac{T_{\max}}{1 + \left(\frac{2b}{p}\right)^2} = T_{\max} \left(\sin\left(\frac{\theta}{2}\right)\right)^2 \quad \text{avec } T_{\max} = \frac{4M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} E \quad (I-4)$$

$T_{\max}$  représente l'énergie maximale transférée dans le cas d'un choc frontal.

#### **I-2-b. Calcul de la perte d'énergie due aux chocs coulombiens :**

La section efficace d'un tel transfert a été calculée par Rutherford [2]:

$$d\sigma(E, T) = 2\pi b db = \pi \left(\frac{p}{2}\right)^2 T_{\max} \frac{dT}{T^2} \quad (I-5)$$

La perte d'énergie est donnée par l'expression :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right) = N \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T d\sigma(E, T)$$

$N$  est la densité atomique

En remplaçant  $d\sigma(E, T)$  par l'expression (I-5) ainsi que  $T_{\max}$  par (I-4) et  $p$  par (I-3), nous obtenons :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right) = N \left(\frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \frac{2\pi}{M_2 V_1^2} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \frac{dT}{T} \quad (I-6)$$

$$\text{Soit } -\left(\frac{dE}{dx}\right) = N \left(\frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \frac{2\pi}{M_2 V_1^2} \ln \frac{T_{\max}}{T_{\min}}$$

La borne inférieure  $T_{\min}$  est nécessaire pour éviter la divergence de l'intégrale et se justifie par l'existence d'un seuil de transfert d'énergie existant quel que soit le type d'interaction considérée.

### I-3. La perte d'énergie nucléaire

A basse vitesse, l'ion incident dissipe son énergie par des chocs élastiques avec les noyaux de la cible. Dans ce domaine de vitesse, les pertes nucléaires deviennent du même ordre de grandeur que les pertes électroniques et elles sont prédominantes à très basse vitesse. Contrairement aux collisions inélastiques, l'énergie transmise aux noyaux par chocs nucléaires peut devenir grande et même comparable à l'énergie du projectile (à faible paramètre d'impact par exemple). Dans ce cas, la trajectoire de l'ion incident est fortement modifiée à cause du transfert important de la quantité de mouvement. La mécanique classique permet de décrire correctement ce processus de diffusion. Les pertes d'énergie par collisions élastiques sont déterminées uniquement à l'aide du paramètre d'impact  $b$  et l'énergie  $E$  du projectile.

En prenant un potentiel coulombien pur, la probabilité de transférer, une énergie  $T$  à un atome de la cible est donnée par la relation (I-5) en remplaçant  $q_2$  la charge du noyau par  $Z_2e$ . La perte d'énergie par chocs nucléaires est donnée par

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{nucl} = NZ_2^2 \left(\frac{q_1 e}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \frac{2\pi}{M_2 V_1^2} \ln \frac{T_{max}}{T_{min}} \quad (I-7)$$

$T_{max}$  est donnée par l'expression (I-4).

Dans le cas où la distance d'approche de l'ion incident et du noyau cible devient plus importante par rapport au rayon d'écran, la répulsion des couches électroniques diminue le potentiel d'interaction. Le potentiel de Thomas-Fermi tient compte de cet écrantage [3]. L'étude de la perte d'énergie nucléaire, dans ce cas est développée dans la référence [4].

### I-4. La perte d'énergie électronique

La perte d'énergie par excitation électronique résulte principalement des chocs inélastiques entre l'ion incident et les électrons de la cible. Ce mécanisme est prédominant pour des énergies incidentes supérieures à 100 keV/u.

En fait, l'ion atteint un équilibre de charges, qui est fonction de sa vitesse. En première approximation, tous les électrons dont la vitesse orbitale est inférieure à celle de l'ion sont éjectés. Il faut donc définir un paramètre  $Z_1^*e$  qui est la charge effective de l'ion dans la matière [5]. Lorsque la vitesse de l'ion incident est inférieure à la vitesse orbitale des électrons les moins liés, l'ion cesse d'interagir majoritairement avec les électrons de la cible et commence à interagir avec les atomes de la cible via des potentiels écrantés.

Pour distinguer les différents domaines du ralentissement, nous aurons à comparer la vitesse  $V_1$  du projectile à la vitesse  $V_2 = V_e$ , la vitesse orbitale des électrons de la cible au sens de Bohr.

**I-4-a. Domaine de grandes vitesses  $V_1 \gg V_e$**

L'ion incident est complètement dépouillé de ses électrons. Dans ce cas, sa charge effective est égale à  $Z_1e$ . Il interagit avec les électrons de la cible par un potentiel coulombien.

Quand les particules incidentes ont une énergie très supérieure à l'énergie de liaison des électrons atomiques et si les chocs donnent lieu à des transferts d'énergie bien plus grands que l'énergie de liaison, les électrons de la cible peuvent en première approximation être considérés comme libres et indépendants. Ceci revient à traiter les chocs inélastiques comme des chocs élastiques avec les électrons.

Cette étude fait l'hypothèse que l'interaction de l'ion incident avec les électrons de la cible est seulement constituée de collisions binaires. Ces collisions locales, qui sont attribuées aux interactions coulombiennes à courte portée, correspondent à des grands transferts d'énergie provoquant l'ionisation des atomes cibles.

La section efficace des collisions, correspondant à un transfert d'énergie  $T$  à un électron par un ion d'énergie  $E$  est décrite par la formule de Rutherford. Dans le cas des électrons de la cible la section efficace de Rutherford (I-5) devient, en remplaçant  $T_{\max}$  (I-4) et  $p$  (I-3) par leurs expressions:

$$d\sigma(E, T) = \pi \left( \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{M_1}{m_e} \frac{1}{E} \frac{dT}{T^2}$$

La perte d'énergie par interaction électronique est donnée par :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = N_1 \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T d\sigma(E, T)$$

avec  $N_1 = Z_2 N$  où  $N_1$  représente la densité électronique de la cible et  $N$  sa densité atomique.  $T_{\min}$  est l'énergie d'ionisation  $I$  des atomes de la cible.

$$T_{\max} = \frac{4m_e M_1 E}{(M_1 + m_e)^2} \cong 2m_e V_1^2$$

Finalement, on obtient pour le pouvoir d'arrêt électronique la formule suivante en remplaçant  $q_1$  par  $Z_1 e$  et  $Z_2$  par  $e$ ,  $e$  étant la charge de l'électron :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 m_e V_1^2} N \frac{1}{2} Z_2 \ln\left(\frac{2m_e V_1^2}{I}\right) \quad (\text{I-8})$$

En fait, nous avons négligé dans cette étude la contribution des phénomènes d'excitation de la cible à la perte d'énergie électronique. Pour tenir compte de ces derniers, Bethe [7] a mené des calculs, en prenant en compte les interactions inélastiques qui conduisent à des phénomènes d'excitations (en plus des ionisations). L'expression suivante a été déduite :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 m_e V_1^2} N Z_2 \ln\left(\frac{2m_e V_1^2}{\hat{i}}\right) \quad (\text{I-9})$$

Le terme  $\hat{i}$  est l'énergie d'excitation moyenne des atomes dans la cible. Pour sa détermination, il est proposé la formule semi-empirique :  $\hat{i}$  (eV) = 10  $Z_2$  ( $Z_2$  numéro atomique de la cible).

Nous remarquons qu'en remplaçant l'énergie d'ionisation  $I$  dans la formule (I-8) par l'énergie d'excitation moyenne  $\hat{i}$ , nous obtenons une relation qui est égale à la moitié de (I-9)

Ces phénomènes d'excitations correspondent à des collisions non locales avec l'atome cible. Ces collisions sont régies par l'action des forces coulombiennes à grande distance et correspondent à des transferts d'énergie assez faibles. Dans ce cas, nous avons une excitation collective des électrons cibles par opposition aux excitations électroniques simples dues aux chocs binaires. Ainsi la formule de Bethe est fondée sur la règle d'équipartition qui stipule que les excitations électroniques contribuent autant au dépôt d'énergie que les phénomènes d'ionisations.

#### ***I-4-a. Domaine de vitesse $V_1 \sim V_0 Z_2^{2/3}$***

Lorsque la vitesse  $V_1$  diminue et devient de l'ordre de  $V_0 Z_2^{2/3}$ , il n'existe aucune théorie exacte dans ce domaine de vitesse. La charge effective  $Z_1^* e$  de l'ion incident diminue [5] et les électrons des couches profondes des atomes de la cible cessent progressivement de contribuer à la perte d'énergie. Ainsi des corrections ont été apportées à la formule de Bethe qui devient alors :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = \frac{4\pi (Z_1^* e)^2 e^2}{(4\pi\epsilon_0)^2 m_e V_1^2} N Z_2 \left[ \ln \frac{2m_e V_1^2}{\hat{i}} - \frac{C}{Z_2} \right]$$

Le terme correctif  $\frac{C}{Z_2}$  a été calculé en détail par Anderson et Ziegler [8]. Il existe

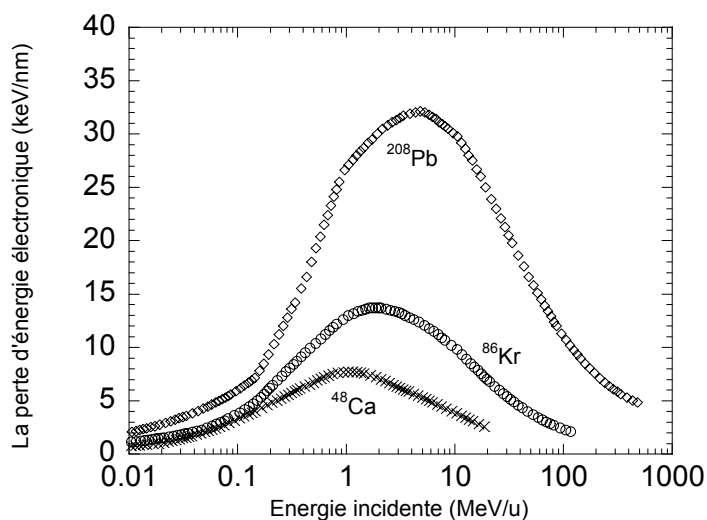
plusieurs expressions de la charge effective. Une expression simple [9] de l'état de charge de l'ion (bilan : capture-perte des électrons) peut être donnée par:

$$Z_1^* e = \frac{Z_1^{1/3} e V_1}{V_0}.$$

La perte d'énergie électronique se comporte donc comme  $\ln E$ , car l'expression de la charge effective dépend de la vitesse du projectile  $V_1$ , et non plus comme  $\ln E/E$  (comportement de Bethe). Ainsi aux vitesses intermédiaires, le dépôt d'énergie passe par un maximum (pic de Bragg) et décroît lorsque la particule est ralentie.

La figure I-3 montre l'évolution du pouvoir d'arrêt électronique dans le  $\text{CaF}_2$  en fonction de l'énergie de la particule incidente de différents ions.

A plus basse vitesse ( $V_1 \ll V_e$ ) au cours d'une collision entre l'ion projectile A, entouré de  $(Z_1 - Z_1^*)$  électrons avant la collision et un atome cible B, nous avons l'interpénétration des deux nuages électroniques, ce qui rend le calcul du potentiel d'interaction compliqué. Pour des ions de faible énergie il existe deux théories phénoménologiques qui calculent la perte d'énergie électronique [3] et [4].



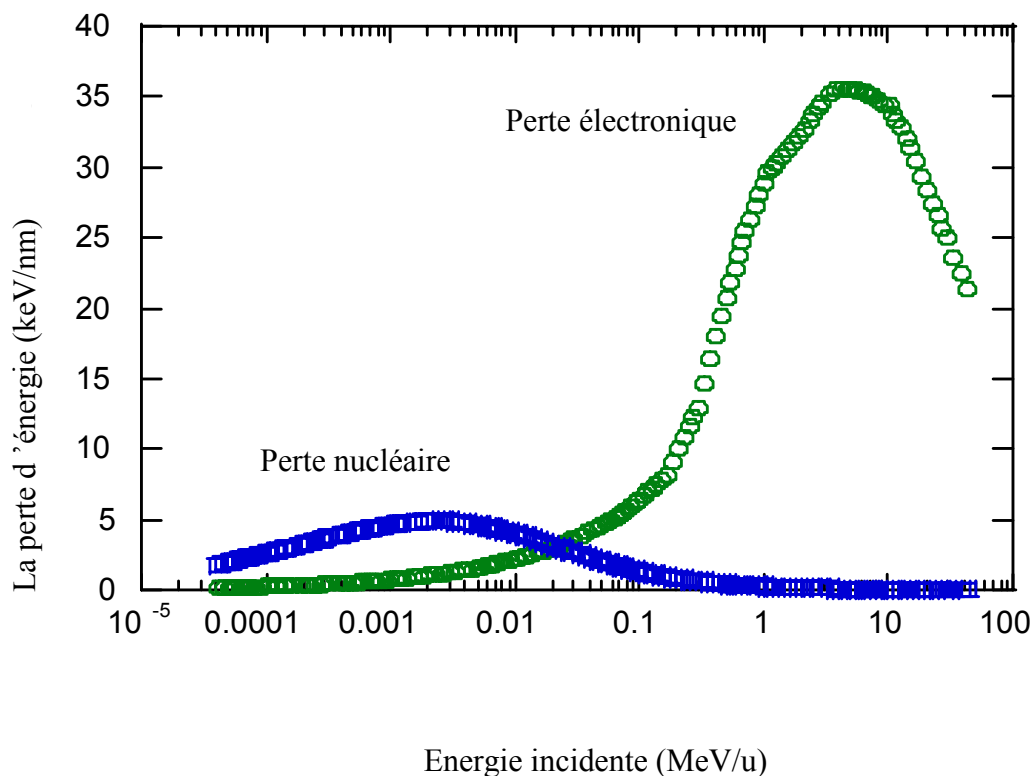
**Figure I-3 :** Evolution de la perte d'énergie électronique en fonction de l'énergie des différents ions incidents dans le  $\text{CaF}_2$ . Les courbes ont été déduites du code de calcul TRIM 95 [13].

## I-5. Comparaison entre la perte d'énergie électronique et nucléaire

Dans le domaine des vitesses  $V_1 \gg V_0$ , si nous négligeons la variation logarithmique des relations (I-7) et (I-8), le rapport entre la perte d'énergie nucléaire et la perte d'énergie

électronique peut s'écrire: 
$$\frac{-(\frac{dE}{dx})_n}{-(\frac{dE}{dx})_e} = \frac{Z_2 m_e}{M_2}, \text{ voisin de } \frac{m_e}{2m_p} \approx \frac{1}{3500}$$

La perte d'énergie par collision Rutherford avec les noyaux de la cible est donc négligeable devant la perte d'énergie électronique, pour des énergies incidentes supérieures à 0.1 MeV/u (figure I-4). Compte tenu que notre étude concerne les ions lourds de grande énergie, supérieures à quelques MeV/u, le transfert d'énergie se fait majoritairement par collisions inélastiques. Par conséquent la perte d'énergie électronique sera notée  $dE/dx$ .



**Figure I-4 :** La comparaison entre la perte d'énergie nucléaire et électronique dans le cas des ions d'uranium [13].



## I-6. Création de défauts par la perte d'énergie nucléaire

La particule incidente communique l'énergie  $T$  à un noyau cible qui peut se déplacer, si cette énergie est supérieure à une valeur seuil  $E_s$  comprise entre 10 et 60 eV. Le nombre  $N_d$  d'atomes déplacés par un noyau primaire ayant reçu l'énergie  $T$  suit la loi de Kinchin et Pease. Trois différents cas se présentent [10].

Si  $T < E_s$ ,  $N_d = 0$ . Le noyau cible n'est pas déplacé, ce transfert d'énergie provoque une agitation thermique du noyau.

Si  $E_s < T < 2E_s$ ,  $N_d = 1$ . Le noyau cible se déplace en position interstitielle laissant ainsi sa place à une lacune. L'ensemble interstitiel-lacune constitue une paire de Frenkel.

Si  $T > 2E_s$ ,  $N_d = \frac{E_1}{2E_s}$ . Le noyau cible est déplacé et devient à son tour un projectile

appelé primaire. On assiste à une cascade de déplacements.

La section efficace de création de défauts a été calculée dans [11]

$$\sigma_{dpa}(E_1) = \int_{E_s}^{T_{\max}} N_d(T) d\sigma(E, T)$$

Le nombre moyen d'atomes déplacés  $N_D$  par collision d'un ion primaire est :

$$N_D = \frac{\sigma_{dpa}(E_1)}{\int_{E_s}^{T_{\max}} d\sigma(E, T)}$$

Aux énergies du GANIL, plusieurs MeV/u, l'ion incident crée de petites cascades individuelles [12] : le nombre moyen d'atomes déplacés varie de 5 à 10 et le libre parcours moyens entre deux collisions élastiques varie de 10 à 100 nm, il n'y a donc pas d'interaction entre les cascades.

## **I-7. Terminologie**

### ***I-7-a. Définition de défauts ponctuels***

Par défaut ponctuel, nous entendons toute rupture locale de la périodicité du réseau cristallin, il s'agit de défauts intrinsèques (lacunes ou interstitiels), extrinsèques (impuretés interstitielles ou substitutionnelles) ou une combinaison de défauts intrinsèques et extrinsèques (défauts complexes). Les défauts ponctuels dans les halogénures alcalins peuvent être détectés par différentes techniques, en particulier par absorption optique. Dans ce cas, on observe des bandes d'absorption optiques dans l'infrarouge, le visible ou l'ultraviolet. La présence de bandes dans le visible est responsable de la coloration des cristaux. C'est cet effet qui historiquement a donné lieu au terme de « centres colorés » pour nommer les défauts ponctuels dans les cristaux.

### ***I-7-b. Centre F***

Dans un cristal quand un électron remplace un anion, on parle de formation de centre F.

### ***I-7-c. Définition des défauts étendus***

Les défauts étendus peuvent être assimilés à un ensemble de défauts ponctuels. Dans le cas de l'irradiation des matériaux par des ions lourds, on peut avoir la formation de dislocations, de colloïdes métalliques (ensemble de centre F) ou un volume totalement amorphe.

### ***I-7-d. Définition d'excitons autopiégés***

Un exciton auto piégé se forme suite à la liaison d'un électron avec un trou (exciton). Cet exciton ainsi formé peut être piégé dans sa propre déformation de réseau. Ce processus d'auto-piégeage se produit dans les matériaux de fort couplage électron-phonon.

### ***I-7-e. Matériaux radiolysables***

Les matériaux sensibles à la radiolyse sont des matériaux qui s'endommagent lorsqu'ils sont soumis à une irradiation ionisante du type rayons X ou  $\gamma$ . Parmi les matériaux sensibles à la radiolyse on trouve les cristaux ioniques et les matériaux organiques. L'endommagement des solides radiolysables comme les cristaux ioniques, intègrent, en plus de la sensibilité à la radiolyse classique, les effets spécifiques des fortes pertes d'énergie électronique lorsqu'ils sont soumis aux ions lourds rapides.

### ***I-7-f. Matériaux non radiolysables***

Ces matériaux ne s'endommagent pas quand ils sont soumis aux rayons x et  $\gamma$ , ils regroupent essentiellement les métaux, les semi-conducteurs et la plupart des oxydes. Ces

matériaux ne sont pas sensibles sous irradiation à faible perte d'énergie électronique, mais peuvent le devenir sous irradiation à forte perte d'énergie électronique.

## **I-8. Références :**

- [1] W. Neurwith, U. Hausser, E. Kuhn , Z. Phys. 220,241, (1969)
- [2] E. Rutherford, E. Phil. Mag. 21, 669, (1911)
- [3] O.B. Firsov, J. Exp. Theor. Phys. (USSR) 34, 447, (1958)
- [4] J. Lindhard, M. Scharff, Phys. Rev. 124, 128, (1961)
- [5] S. Datz "Radiation damage processes in material" ed C.H.S Dupay Noordhorff 119, (1973)
- [6] F. Seitz, Disc. Far. Soc. 5, 271, (1949)
- [7] H.A. Bethe, Ann Phys. Rev89. 1256, (1953)
- [8] H.H. Anderson et J.F. Ziegler in "The stopping power and ranges of ions in matter"edited by J.F. Ziegler, Pergamon (1970)
- [9] N. Bohr, Mat, Fys. Medd. Dan. Selk, 18, n° 8, (1948)
- [10] G. Kinchin, R. Pease, Rep. Prog. Phys. 18, 1, (1955)
- [11] J.P.Biersack, G. Haggmark, Nucl. Instr. and Meth. 174, 257, (1980)
- [12] G. Fuchs, Thèse de l'université de Caen France (1985)
- [13] J.P. Biersack and L. G. Haggmark, Nucl. Instr. Meth. B 174, 12457, (1994)



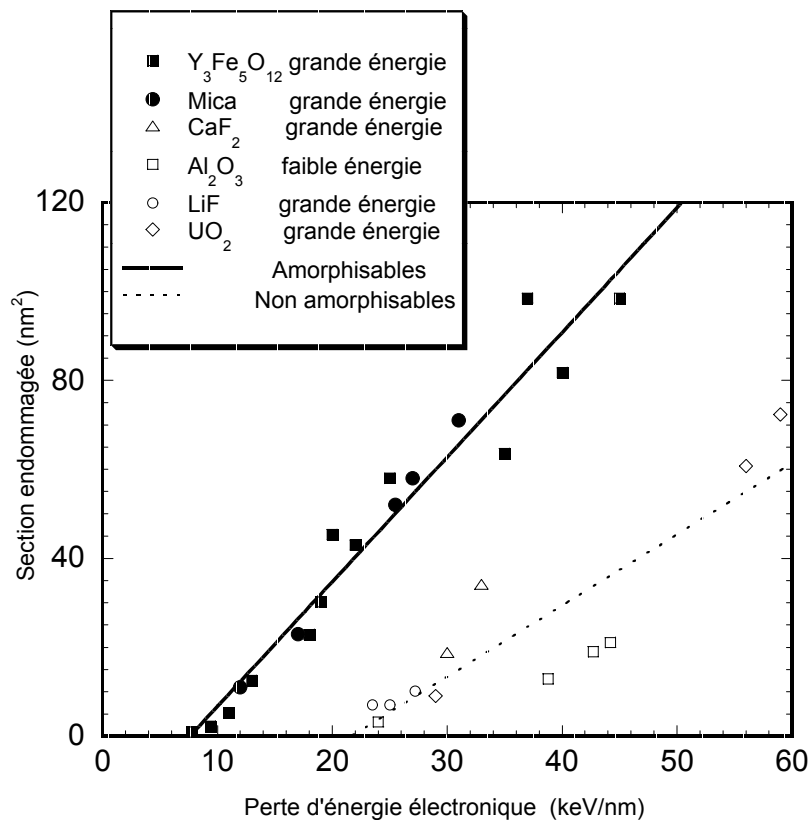
***Chapitre II : Etat de connaissance sur les isolants  
soumis aux excitations électroniques intenses***



## II. Introduction

Aujourd'hui, il est bien connu que les ions lourds d'énergie supérieure à 1 MeV/u induisent dans les isolants des modifications structurales dans le volume [1] et à la surface [2] qu'on appelle trace latente.

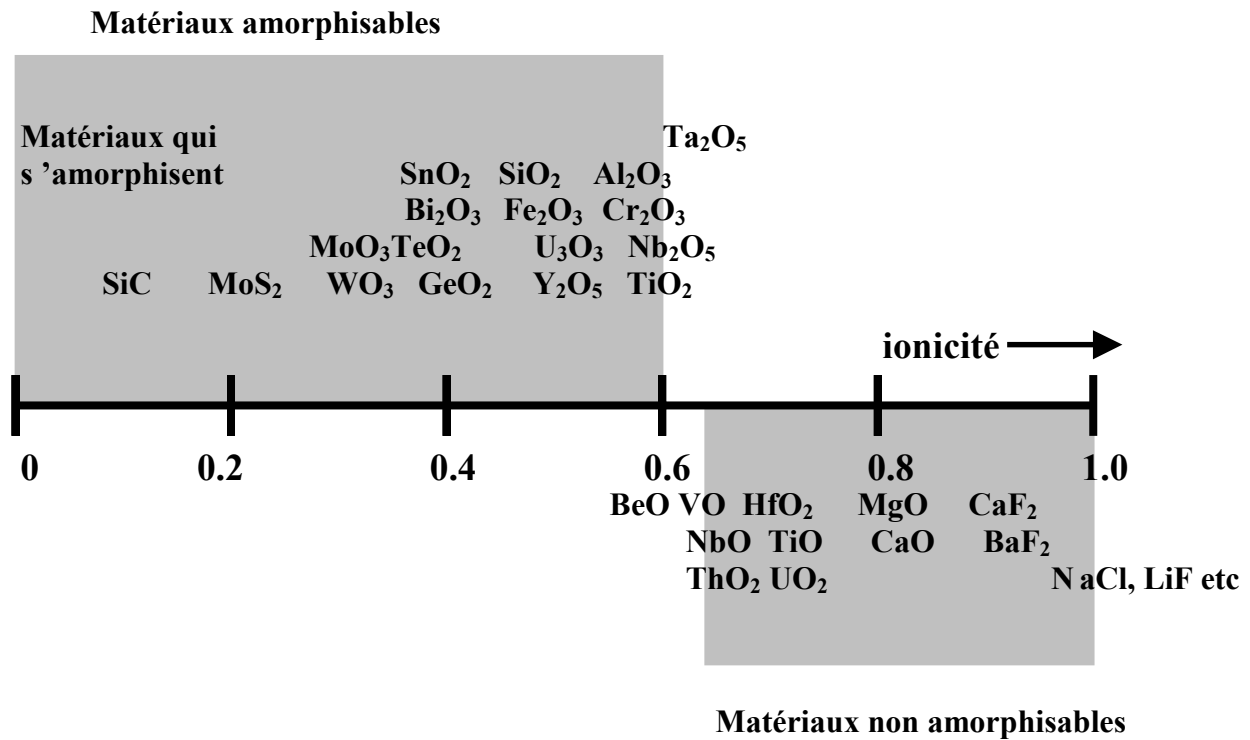
L'étude expérimentales de ces défauts, induits dans les isolants, par irradiation avec des ions lourds, a fait l'objet de plusieurs investigations, depuis les premières observations faites par microscopie électronique à transmission en 1959 par Silk et Barnes [3] de traces induites par les fragments de fission d'uranium dans le mica. L'ensemble des études effectuées à ce jour permet d'établir une classification des isolants en deux catégories en fonction de leurs réponses vis à vis de l'excitation électronique (figure II-1) : Les matériaux amorphisables qui s'amorphisent suite à une irradiation, c'est à dire la structure initiale du matériau est totalement désordonnée, et les matériaux non amorphisables qui se manifestent suite à une excitation électronique par la création de défauts sans perte de la structure initiale.



**Figure II-1** : Les sections endommagées pour la création de défauts observées dans la masse pour différents isolants en fonction de la perte d'énergie électronique. (Mica [4], Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> [5], Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [6], CaF<sub>2</sub> [7], LiF [8], UO<sub>2</sub> [9]), les droites présentent un ajustement linéaire.



Il est à noter que ce classement a été déjà établi par Naguib et Kelly [10] qui considèrent qu'un matériau s'amorphise sous irradiation lorsque son ionicité est inférieure ou égale à 0.47, la stabilité structurale étant conservée lorsque l'ionicité est supérieure à 0.60 (figure II- 2)



**Figure II-2** : Classement des isolants en fonction de leur caractère ionique, indiquant la relation entre amorphisation et ionicité [10].

### II-1. Les matériaux amorphisables

Les matériaux amorphisables regroupent les isolants magnétiques [5], mica [4]... Ces matériaux ont été intensivement étudiés par plusieurs techniques de caractérisation. Ce sont des matériaux très sensibles aux excitations électroniques collectives induites par les ions lourds car ils présentent un seuil de sensibilité en dE/dx autour de quelques keV/nm (figure II-1). Ces études ont permis d'étudier la structure et la morphologie de la trace latente [11] ainsi que la mise en évidence de l'effet de vitesse [5].

### ***II-1-a. La structure et la morphologie de la trace latente***

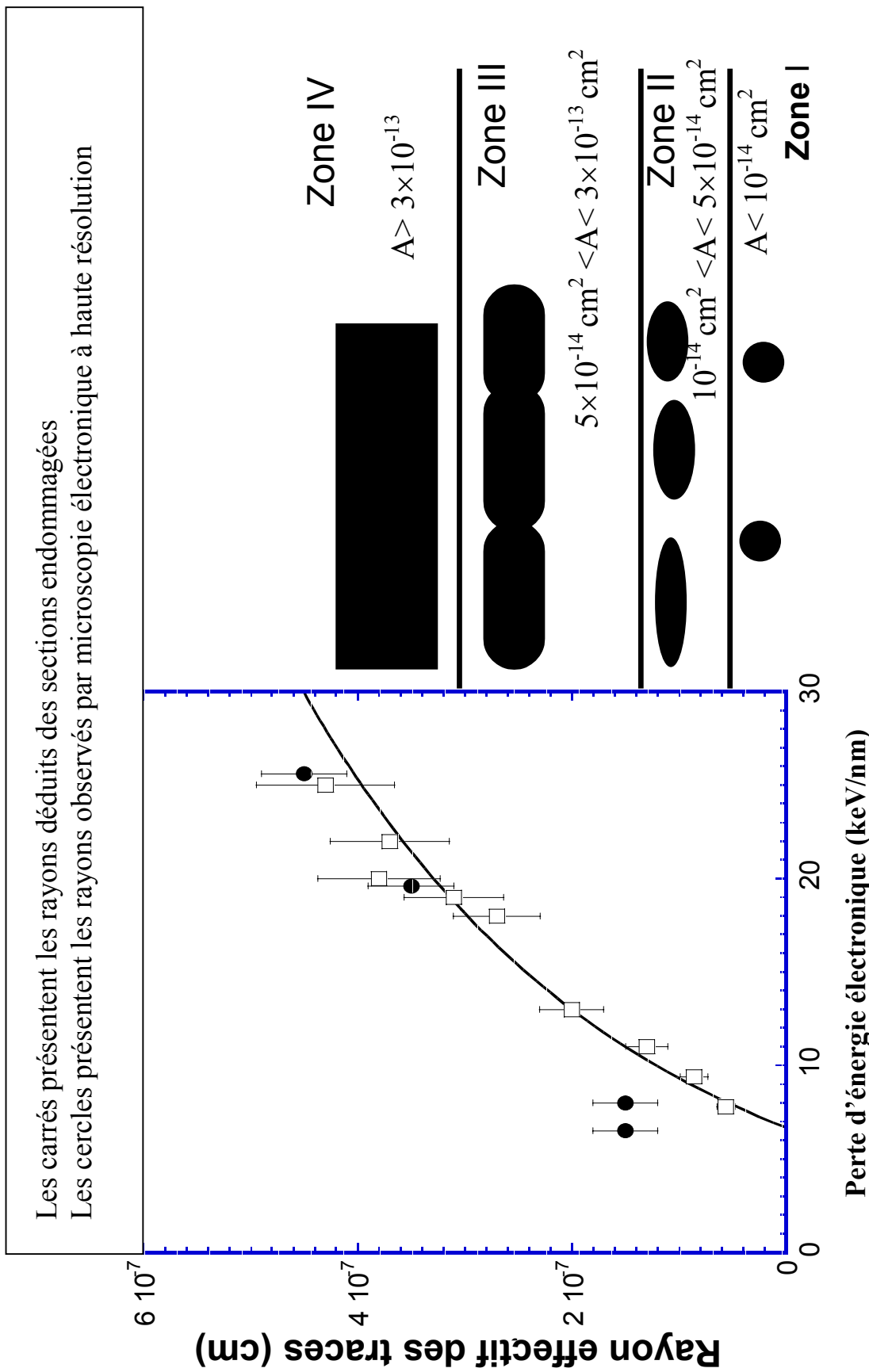
L'observation des traces latentes dans les oxydes magnétiques tels que le grenat  $Y_3Fe_5O_{12}$ , l'hexaferrite de baryum  $BaFe_{12}O_{19}$  a fait l'objet de nombreuses investigations conduisant à une description détaillée de leur morphologie [1]. Plusieurs méthodes de caractérisation ont été utilisées lors de ces travaux, comme la spectrométrie Mössbauer en transmission, la rétrodiffusion Rutherford en canalisation et la microscopie électronique à haute résolution. Cette dernière technique permet de mesurer directement le rayon de la trace observée, alors que la spectrométrie Mössbauer en transmission et la rétrodiffusion Rutherford en canalisation déterminent une section endommagée  $A$  qui est déduite de la proportion de désordre par unité de surface. Elle est extraite en utilisant la loi de Poisson  $F_d = 1 - \exp(-A \cdot \phi \cdot t)$  où  $F_d$  est la fraction endommagée ou désordonnée,  $\phi$  et  $t$  sont respectivement le flux et le temps d'irradiation. Le rayon de trace effectif  $R_e$  (rayon du cylindre dans lequel est concentré la matière désordonnée) est déduit à partir de la section endommagée  $R_e = \sqrt{\frac{A}{\pi}}$

Les rayons de traces ainsi mesurés ont été comparés aux rayons observés par microscopie électronique à moyenne et haute résolution. Ces études ont permis d'établir une relation entre la valeur du rayon  $R_e$  et la morphologie des défauts et ceci indépendamment de l'effet de vitesse.

Cette relation observée dans ces isolants magnétiques est en accord avec les observations faites dans les alliages métalliques cristallins [12]. Cet ensemble de résultats montre que la morphologie des traces (quelque soit le matériau) évolue en fonction du rayon effectif  $R_e$ , ce dernier évolue en fonction de la perte d'énergie électronique et de la vitesse du projectile. La morphologie de traces peut être décrite suivant quatre zones distinctes (figure II-3).

Dans la zone I, les défauts sont un alignement de sphères dont le rayon effectif est inférieur à 0.5 nm. Lorsque  $R_e$  augmente, les défauts deviennent des ellipsoïdes de plus en plus allongées (zone II). Dans la zone III, la percolation des ellipsoïdes donne des traces cylindriques continues, qui cependant ne deviennent continues et homogènes que dans la zone IV à partir d'une valeur du rayon effectif égal à 3 nm. Il est à signaler que les rayons ayant des valeurs supérieures ou égales à 1.5 nm, sont aux erreurs expérimentales près, en accord avec les rayons effectifs déterminés à partir des sections endommagées. Alors que pour des rayons inférieurs à 1.5 nm, la microscopie électronique en transmission donne le même rayon, lorsque le  $dE/dx$  diminue. Par contre le rayon effectif déterminé à partir de la section endommagée diminue avec la diminution du  $dE/dx$  (figure II-3). Nous avons bien pris soin de

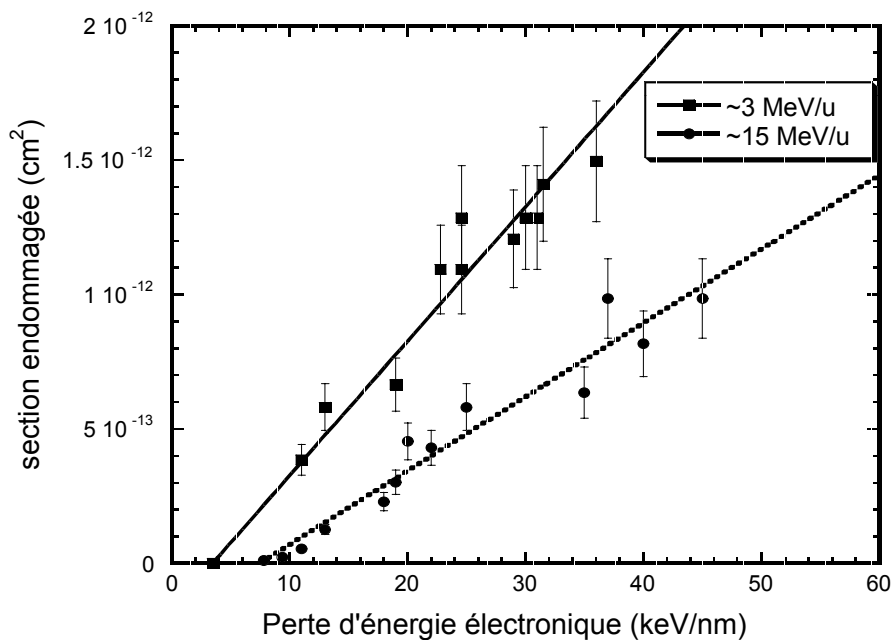
ne déterminer que les sections endommagées pour lesquelles les valeurs des rayons sont supérieures ou égales à 1.5 nm, pour les techniques qui permettent d'accéder directement au rayon, comme la microscopie électronique et la diffusion X aux grands angles.



**Figure II-3** : Rayon effectif de traces pour  $Y_3Fe_5O_{12}$  ainsi que la morphologie des traces correspondantes ( $A$  représente la section endommagée mesurée) [5]. Les expériences ont été faites avec des faisceaux d'énergie de l'ordre de 15 MeV /u.

### II-1-b. Effet de vitesse

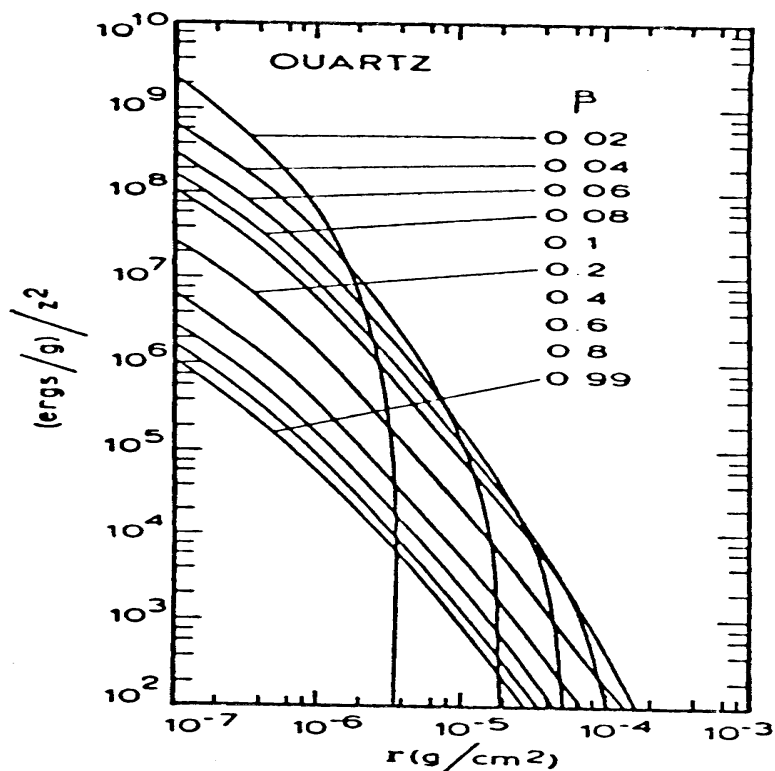
Les modifications induites dans les matériaux sont la plupart du temps étudiées en fonction du seul paramètre : la perte d'énergie, alors qu'expérimentalement, il a été démontré que cette quantité n'était pas suffisante pour caractériser une irradiation aux ions quand la vitesse des ions varie sur une grande échelle. Dans le grenat  $Y_3Fe_5O_{12}$ , Meftah et al. [5] ont montré que pour la même perte d'énergie, le dommage est plus important avec des ions de faible vitesse qu'avec des ions de grande vitesse (figure II-4).



**Figure II-4 :** Présentation des sections endommagées dans le  $Y_3Fe_5O_{12}$  en fonction de la perte d'énergie électronique pour deux régimes de vitesses donnés sur la figure [5].

Ceci peut s'expliquer par l'extension radiale de la distribution spatiale du dépôt d'énergie. Des simulations Monte-Carlo effectués par Gervais et al. [13] ont montré que pour une même valeur de  $dE/dx$ , l'extension radiale du dépôt d'énergie autour de la trajectoire de l'ion augmente quand la vitesse augmente. Par conséquent, la quantité d'énergie déposée par unité de volume près de la trajectoire de l'ion est plus grande dans le régime basse vitesse.

Ces simulations Monte Carlo ont également permis de montrer que la quantité d'énergie déposée dans les isolants suit, au delà du cœur de la trace une loi en  $r^{-2}$  (figure II-3),  $r$  étant la distance radiale [13,14,15].



**Figure II-5** : Energie déposée radialement autour du passage de l'ion incident en fonction du rayon  $r$  de l'axe de trajectoire de l'ion incident. ( $\beta = V_1/c$ ,  $V_1$  : vitesse du projectile,  $c$  est la vitesse de la lumière) [15].

## II-2. Les matériaux non amorphisables

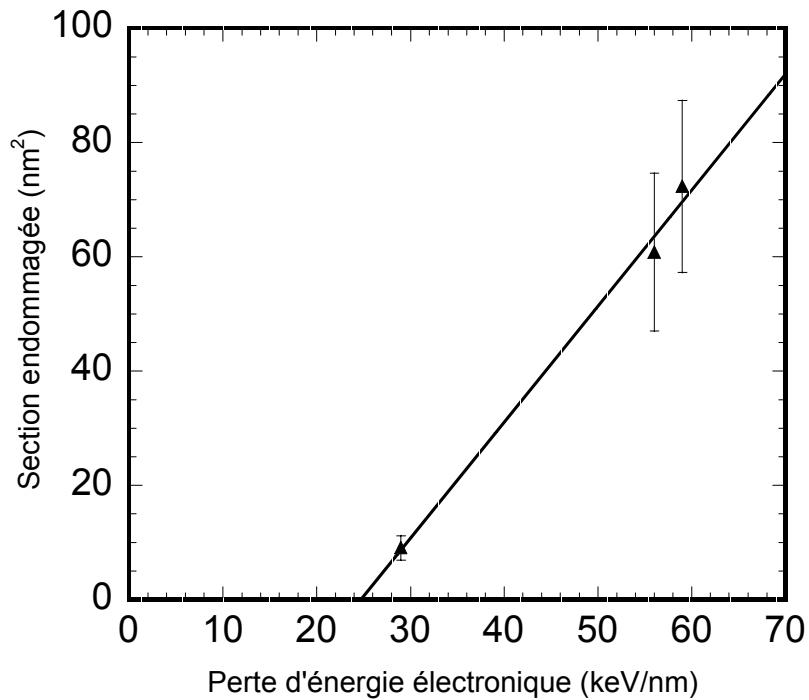
Parmi les matériaux non amorphisables, on trouve le  $\text{CaF}_2$  [7],  $\text{LiF}$  [8],  $\text{UO}_2$  [9]... La sensibilité de ces matériaux en  $dE/dx$  pour l'observation de traces latentes est faible, en moyenne le seuil d'observation de traces est autour de 20 keV/nm pour cette catégorie de matériaux (figure II-1).

Afin d'essayer de comprendre le comportement de ces matériaux sous irradiations, nous avons choisi de présenter les résultats expérimentaux des trois matériaux suivants :  $\text{UO}_2$ ,  $\text{LiF}$  et  $\text{CaF}_2$ .

### II-2-a. $\text{UO}_2$

Les travaux effectués sur l'endommagement du dioxyde d'uranium par des ions lourds dans le domaine d'énergie de l'ordre du GeV [9,16,17,18] mettent en évidence deux types de phénomènes :

- **La polygonisation** : qui est un processus de division des grains en grains de plus petite taille qui restent cristallins. Ce phénomène a été observé par Matzke [17] dans le cas d'irradiation avec des ions de  $^{129}\text{Xe}$  de 340 MeV, pour une perte d'énergie électronique de 35 keV/nm.
- **La création de traces** : Des traces ont été observées par microscopie électronique à transmission par Matzke et al. [18] pour des pertes d'énergie électronique supérieures ou égales à 29 keV/nm. Cependant pour les fragments de fission, ayant des pertes d'énergies entre 18 et 22 keV/nm, les traces de fission n'ont jamais été observées dans le volume, bien qu'elles existent à la surface. Ces observations ont conduit Wiss et al. [9] à conclure que le seuil de création de traces dans le  $\text{UO}_2$  se trouve entre 22 et 29 keV/nm d'après la courbe (figure II-6) le seuil de création de traces se trouve autour de 25 keV/nm. L'amorphisation du  $\text{UO}_2$  n'a jamais été observée.



**Figure II-6 :** Evolution des rayons de traces dans  $UO_2$ , observées par microscopie électronique à transmission [9] en fonction du pouvoir d'arrêt électronique.

### **II-2-b. LiF**

Le LiF fait partie des halogénures alcalins. Une étude détaillée de la structure des défauts et de leur morphologie a été établie par Trautmann et al. [19]. Afin de réaliser cette étude plusieurs techniques de caractérisation complémentaires ont été utilisées, chacune d'elle donne un certain nombre d'informations sur les défauts ainsi créés par les ions lourds.

**L'absorption optique** a permis de mettre en évidence la formation de centres colorés. Leurs processus de formation est basé sur la formation des excitons auto-piégés à température ambiante. Le type de défaut le plus stable est le centre F qui consiste en une lacune d'un ion halogénure avec un électron piégé. Cette technique a permis de déterminer les rayons des cylindres dans lesquels sont créés les centres colorés par les ions lourds. Ces rayons varient de 5 à 30 nm.

Cependant les rayons de traces déterminés par la **diffusion X aux petits angles** varient de 0.9 à 1.8 nm. Cette technique est bien adaptée pour détecter les défauts étendus si ceux-ci présentent une différence significative de la densité électronique comparée à celle de la



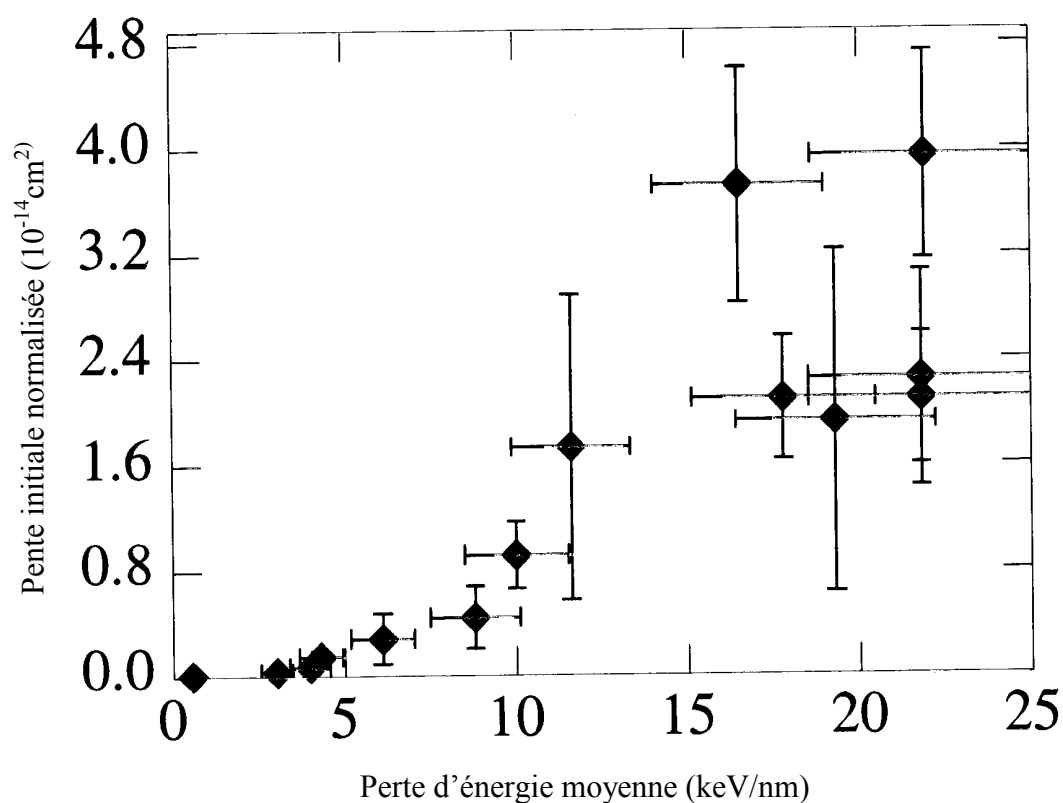
matrice. La diffusion X aux petits angles révèle un autre type de création de défauts qui se situe au cœur de la trace. Les centres F ne sont pas détectés par cette technique.

Il est surprenant d'observer que les rayons de traces dans le LiF déterminés par cette technique sont presque trois fois plus petits que les rayons observés dans le cas des matériaux amorphisables comme le mica [4,20],  $Y_3Fe_5O_{12}$  [5] déterminés avec la même technique.

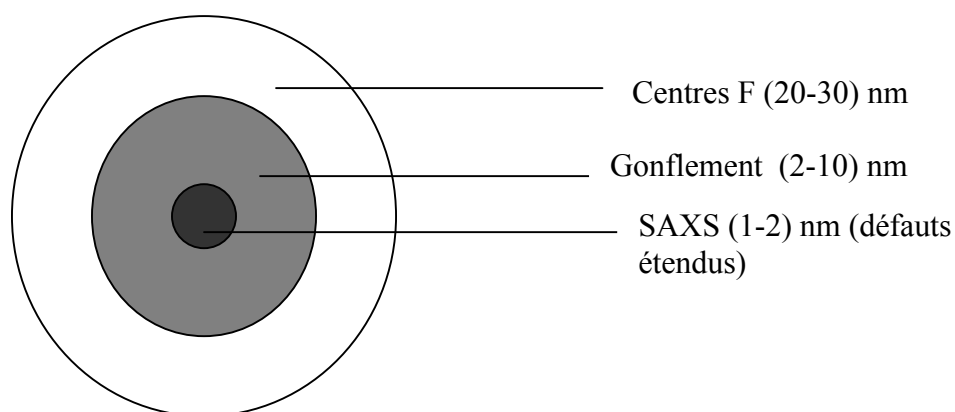
Les études **d'attaque chimique** dans LiF [19] ont permis de déterminer un seuil d'attaque chimique à 10 keV/nm pour des ions de vitesse autour de 2 MeV/u, alors que ce seuil se trouve à 15 keV/nm pour des ions avec des vitesses de 10 MeV/u.

La technique de **gonflement** qui donne accès à la variation de la densité du matériau suite à l'irradiation, a montré l'existence d'un seuil égal à  $4.2 \pm 1.4$  keV/nm (figure II-7) [21]. Les rayons des traces déterminés par la technique de gonflement varient de 2 à 10 nm. Ils se trouvent dans la zone intermédiaire entre les rayons liés à la création de centre F et les rayons déterminés par la diffusion X à petits angles.

Nous constatons que les résultats obtenus indépendamment par les trois techniques : la diffusion de rayons X aux petits angles, gonflement et l'absorption optique indiquent que la zone de création de défauts autour de la trajectoire de l'ion, peut être caractérisée par une petite région de cœur (1-2) nm, formée probablement avec des défauts complexes entourée par deux zones, la première est une zone intermédiaire responsable du gonflement et finalement par un halo beaucoup plus grand contenant principalement des centres colorés (figure II-8).



**Figure II-7** : La présentation de la pente initiale dans le cas du LiF déduite des mesures de gonflement [21]



**Figure II-8** : La structure de traces dans LiF d'après Trautmann et al. [22]. Une région de cœur responsable de la diffusion X aux petits angles, une zone intermédiaire contribuant au gonflement et un halo constitué principalement de centres F.

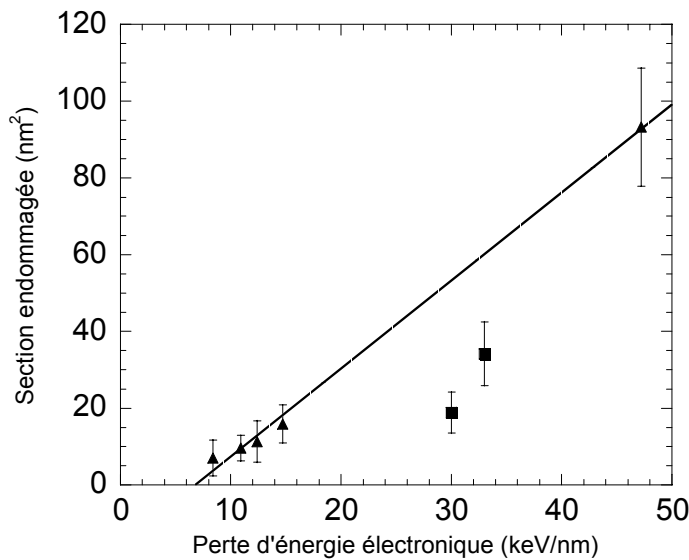
### *II-2-c. CaF<sub>2</sub>*

Le CaF<sub>2</sub> est un solide ionique qui est très sensible aux excitations électroniques. Ces dernières années, le CaF<sub>2</sub> a été le centre d'intérêt de plusieurs études afin de comprendre les processus de formation de défauts, car il s'est révélé un bon candidat pour l'étude de l'endommagement induit par les ions lourds. En effet ce matériau peut être aisément analysé par la plupart des techniques physiques utilisées pour caractériser les matériaux amorphisables.

Le CaF<sub>2</sub> a été irradié à 300 K avec des clusters [23] (Au<sub>4</sub>, C<sub>10</sub>, C<sub>60</sub>) ayant des énergies qui varient entre (0.03-0.3) MeV/u correspondant à des pertes d'énergies électroniques comprises entre 8 et 50 keV/nm. Après l'irradiation, les échantillons ont été observés par microscopie électronique à transmission. Durant les observations les échantillons étaient mis à une température de 100 K. Cette température aide à stabiliser le CaF<sub>2</sub> sous le faisceau d'électrons. Seule la microscopie à haute résolution, qui nécessite des courants très élevés, s'avère destructive et doit être effectuée à très basse température pour éviter tout endommagement de l'échantillon.

Les résultats de ces observations montrent l'existence de traces qui sont stables sous le faisceau d'électrons. Les traces sont sous formes de petites inclusions (des colloïdes de calcium) dont la configuration est en accord avec les inclusions observées par Johnson et al. [24] sous irradiations aux électrons, c'est à dire une structure orienté selon la direction <100>, soit des cylindres quasi continus pour les agrégats de C<sub>60</sub>. Comme cette étude a été faite à une température favorisant la mobilité des défauts, il est impossible de déterminer si ces inclusions ont directement été créées par l'irradiation ou si elles sont la conséquence de l'agrégation des défauts initiaux.

L'irradiation complémentaire du CaF<sub>2</sub> par des ions de bismuth et d'uranium d'énergie respective de 10.3 et 2.34 MeV/u, a permis d'observer l'effet de vitesse sur la création de trace dans ce matériau. Dans la figure II-9, les sections endommagées obtenues avec les clusters (avec de faibles vitesses) sont plus grandes que celles observées avec les ions lourds.

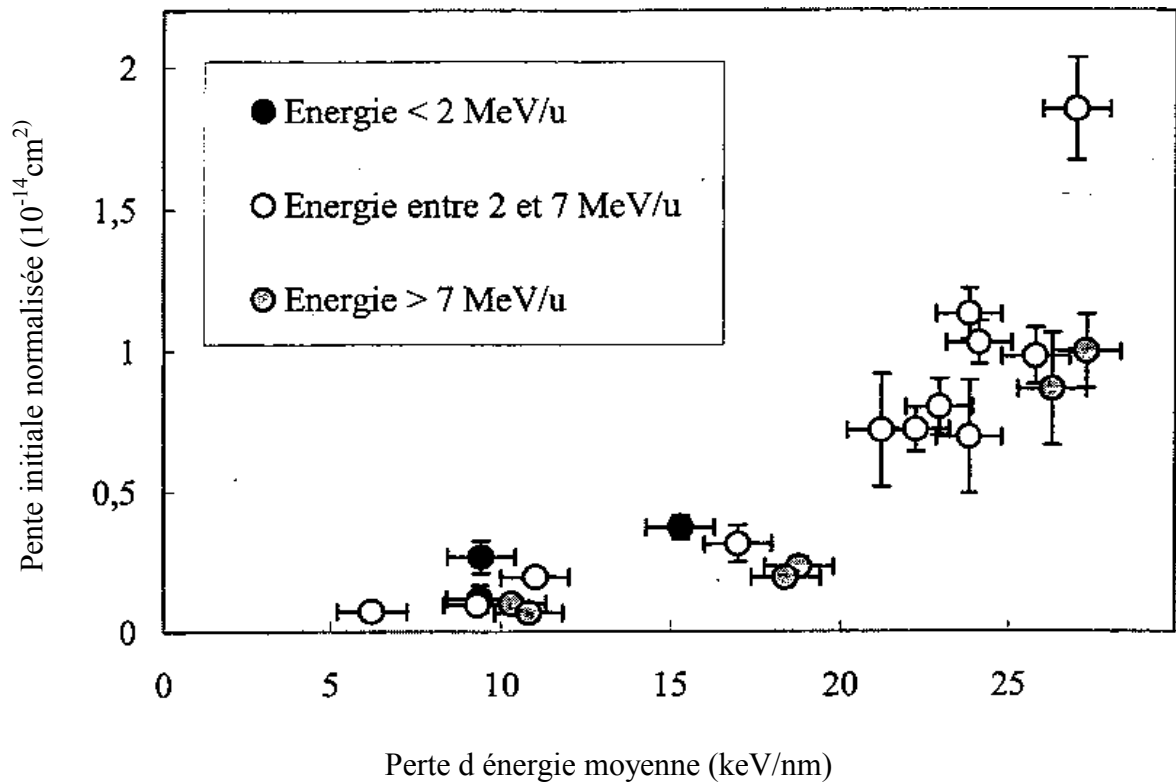


**Figure II-9** : La section efficace de traces dans le  $\text{CaF}_2$  en fonction de la perte d'énergie électronique. Les triangles présentent les irradiations faites avec les clusters, alors que les carrés présentent les irradiations faites avec les ions lourds. La ligne tracée dans le cas des données des clusters est là pour guider les yeux [25].

Une autre étude a été faite par Boccanfuso et al. [26]. Cette dernière a été réalisée avec des ions lourds, ayant des énergies qui varient entre 1 et 12 MeV/u. En utilisant les techniques suivantes : **la spectroscopie d'absorption optique, gonflement et la diffraction de rayons X aux grands angles**, cette étude, a permis de mettre en évidence l'existence de trois réponses distinctes du  $\text{CaF}_2$ .

La spectroscopie d'absorption optique indique que toutes les irradiations créent les mêmes types de défauts, indépendamment de la fluence utilisée, du parcours et de la perte d'énergie des ions. Aucun seuil n'a été mis en évidence. Ces défauts sont des colloïdes qui semblent provenir du regroupement de centres ponctuels (centre F).

Pour des pertes d'énergie électronique supérieures à 5 keV/nm (figure II-10), un gonflement de 0.27 % du matériau est observé [27]. Un troisième mécanisme d'endommagement est occasionné au dessus de 13 keV/nm et se traduit par une perte de la structure cristalline d'origine. En revanche, aucune variation significative du paramètre de maille n'a pu être observée.



**Figure II-10 :** Efficacité d'apparition du gonflement normalisé au parcours en fonction de la perte d'énergie moyenne [27].

### II-3. Autres matériaux non amorphisables

D'autres effets des irradiations aux ions lourds ont été observés dans d'autres matériaux non amorphisables. Par exemple ces effets d'irradiation se manifestent dans l'oxyde de l'étain  $\text{SnO}_2$  [28] par la création de trous avec un seuil compris entre 10 et 23 keV/nm, la cassure de grain dans ce matériau n'est observé qu'avec les irradiations au plomb [29,30]. Cette étude a permis aussi de mettre en évidence un effet de taille des grains : les observations en microscopie électronique à transmission ont montré que les grains ayant une taille inférieure à 20 nm disparaissent totalement lors de l'irradiation, alors que les grains de tailles plus grandes changent de forme [31].

Un autre effet de taille a été constaté par Hémon et al. [32], ils ont démontré que le monocristal de l'oxyde d'yttrium,  $Y_2O_3$  est insensible au pouvoir d'arrêt électronique, alors que les poudres de grains présentent une transition de la phase cubique vers la phase monocliniques caractérisée par la diffraction de rayon X [33]. Ce changement de phase cristalline a également été observé par Benyagoub et al. [34] dans la zircone pure  $ZrO_2$  qui présente une transition de la phase monoclinique vers la phase quadratique sous irradiation, lorsque la perte d'énergie dépasse 12 keV/nm, sans apparition d'une phase amorphe.

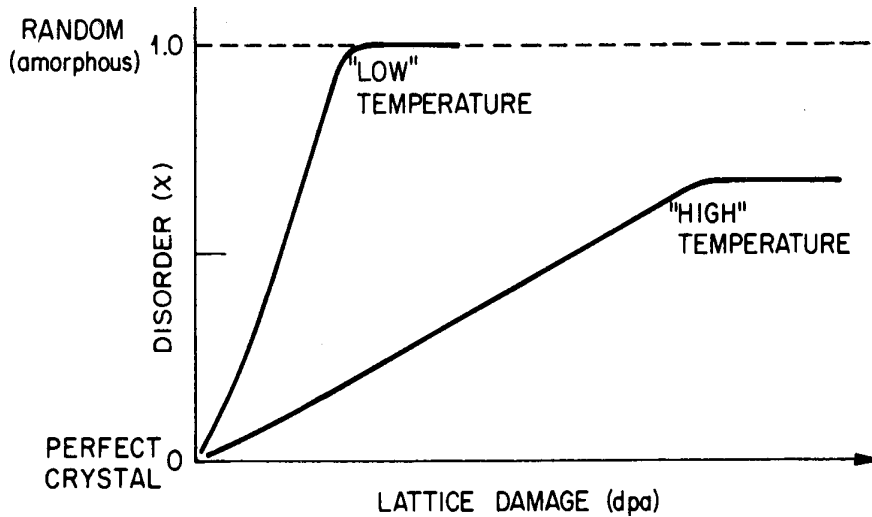
## **II-4. Comportement du saphir**

### ***II-4-a. Introduction***

L'oxyde d'aluminium  $Al_2O_3$  présente des propriétés physico-chimiques caractéristiques tel que : sa dureté, son insensibilité chimique et son transparence sur une grande longueur d'onde (0.2-0.6  $\mu m$ ). Ces propriétés particulières lui ont attribué un grand intérêt concernant son comportement aux différents types d'irradiations.

### ***II-4-b. Collisions nucléaires***

La création de centres colorés a été obtenue par l'irradiation avec des électrons, des neutrons et par bombardement par faisceau d'ions. Avec l'irradiation par des électrons, les défauts sont principalement isolés, alors qu'avec le bombardement par des neutrons les défauts peuvent former des agrégats et par l'implantation ionique une dense cascade de défauts est obtenue [35]. McHargue et al. [36] ont montré, en utilisant la rétrodiffusion de Rutherford (RBS) en canalisation, que le saphir ne s'amorphise pas par implantation avec des ions de  $Xe^+$  jusqu'à une fluence de  $4 \times 10^{16}$  ions  $cm^{-2}$ . De plus après l'implantation par des ions  $Kr^+$ , le désordre du matériau, mesuré par Naguib et al. [37], atteint la valeur de 80%. Des travaux plus approfondis effectués par White et al. [38] dans le régime de perte d'énergie nucléaire ont montré qu'il existe un effet de température concernant l'amorphisation du saphir dans le régime de collisions nucléaires. En effet la température affecte la dynamique de recouvrement des défauts induits par l'irradiation ainsi que le taux d'accumulation de l'endommagement. Ils ont montré que pour atteindre l'amorphisation complète du saphir dans ce régime, ce dernier doit être irradié à la température de l'azote liquide (figureII-11).



**Figure II-11** : Représentation schématique du désordre créé en fonction de la dose et de la température [38]

A température ambiante la dynamique de recuit de défauts empêche l'accumulation de défauts. Le matériau (saphir) peut contenir une grande quantité de défauts sans devenir complètement amorphe. Cet effet a été également mentionné par Parkin et al. [39]. Ils ont noté, que même à grandes fluences ( $10^{17}$  ions/cm<sup>2</sup>), l'amorphisation du saphir en général n'est pas observé, elle n'existe que pour les implantations à basse température [40,41].

Nous constatons que la sensibilité du saphir aux pertes d'énergie nucléaire est bien connue. Cependant sa sensibilité aux excitations électroniques est moins bien connue. Il était pendant très longtemps réputé insensible aux excitations électroniques. Selon Clinard et Hobbs [42], la création des défauts stables dans le réseau d'oxygène par des processus inélastiques nécessite une énergie d'excitation comparable à l'énergie de déplacement d'un atome d'oxygène. Ce critère n'est pas satisfait dans le cas du saphir, car son énergie de bande interdite = 8 eV est beaucoup plus faible que l'énergie de déplacement d'un atome oxygène (75 eV).

### *II-4-c. Collisions électroniques*

Il a été constaté depuis plusieurs années que les excitations collectives résultantes des irradiations des ions lourds peuvent créer des endommagements dans une grande variété de matériaux. En utilisant l'attaque chimique dans plusieurs oxydes, Sigrist et Balzer [43] ont montré l'existence d'un seuil dans le régime de perte d'énergie électronique, caractéristique de chaque matériau, pour la révélation de traces latentes. Une corrélation a été constatée entre la diffusivité thermique de la cible et le seuil de la perte d'énergie électronique correspondant. La révélation de traces n'était pas observée dans le cas du  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Dans les années quatre vingt des expériences d'irradiations ont été effectuées dans le régime de perte d'énergie électronique dans tous les types de matériaux, en utilisant des faisceaux de grandes énergies (énergie de l'ordre du GeV). L'influence de la perte d'énergie électronique a été sans ambiguïté mise en évidence.

Les premiers travaux effectués sur le saphir dans le régime de perte d'énergie électronique en utilisant des ions de plomb à 11 MeV/u à GSI (Darmstadt) [44], caractérisé par la rétrodiffusion de Rutherford en canalisation, a révélé que le fort pouvoir d'arrêt électronique n'induit pas un désordre dans le saphir. Des irradiations supplémentaires avec des ions O, Kr, et Xe d'énergie autour de 10 MeV/u effectué au GANIL [45] ont permis de déceler une faible modification dans les premières couches de la surface par la spectroscopie de photoélectron (XPS) dans le cas de l'irradiation avec le xénon.

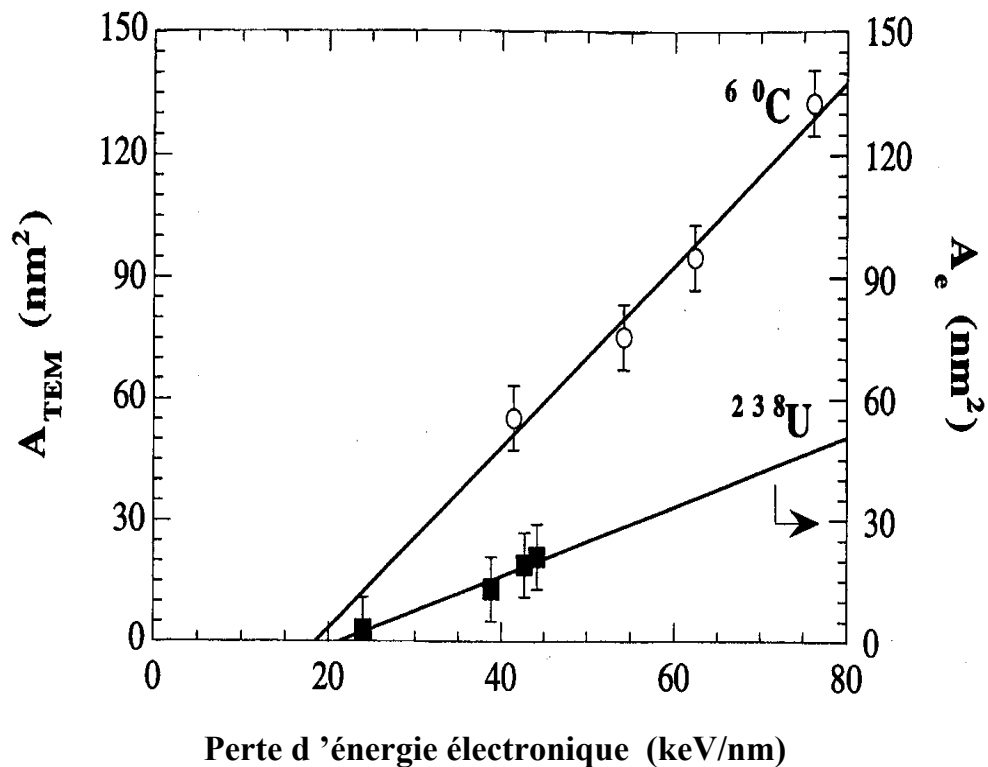
Quelques années après, Canut et al. [46,47,48,49] ont repris l'étude du saphir en effectuant des irradiations avec des ions de Pb, U d'énergies comprises entre 0.48 et 3.5 MeV/u et avec des clusters de  $\text{C}_{60}$ , ayant des énergies comprises entre (0.01 et 0.04) MeV/u. La caractérisation des échantillons a été faite par la rétrodiffusion de Rutherford en canalisation, l'absorption optique et la microscopie électronique à transmission. Ces travaux ont montré que l'irradiation du saphir induit des défauts ponctuels et étendus avec les ions ainsi que l'amorphisation avec les clusters.

L'analyse par la rétro-diffusion de Rutherford en canalisation [46], en étudiant la dépendance d'énergie de la section efficace de décanalisation, a permis d'établir la formation des défauts étendus dans le saphir. Quand aux analyses d'absorption optique ont montré que les centres F (défauts ponctuels) créés par l'irradiation du saphir sont créés par des processus nucléaires à la fin du parcours de l'ion.

Les irradiations avec les clusters de  $\text{C}_{60}$ , ayant des pouvoirs d'arrêt électronique de l'ordre de 76 keV/nm, ont permis d'observer à l'aide de la microscopie électronique à transmission des traces cylindriques amorphes le long de la trajectoire de l'ion. Il est à noter



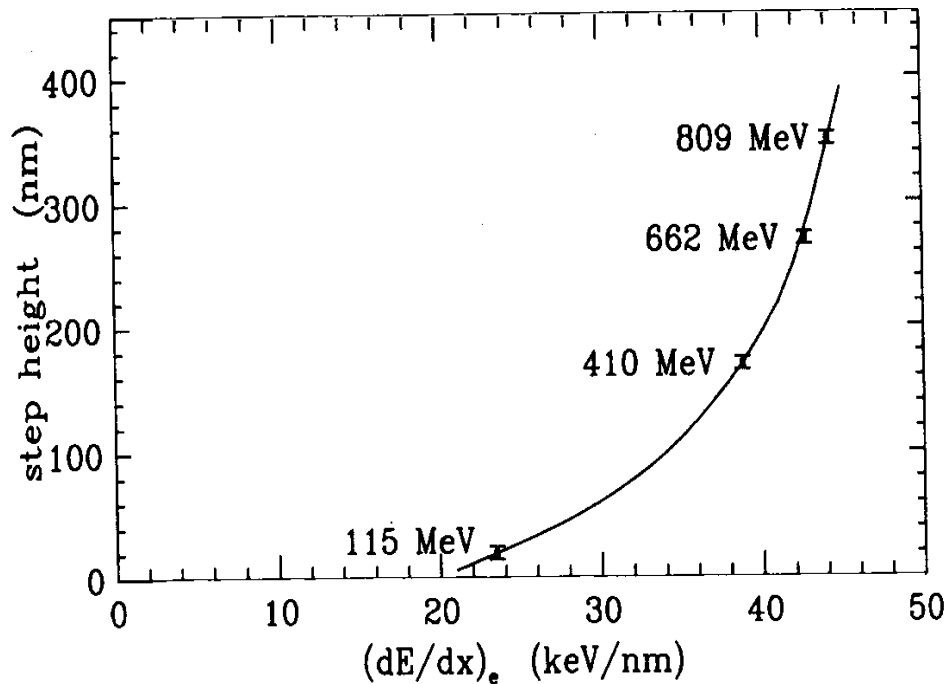
que dans le cas de l'irradiation avec les clusters de  $C_{60}$  d'énergie de 0.014 MeV/u correspondant à un  $dE/dx$  de 41.4 keV/nm, des traces amorphes ont été observées par microscopie électronique à transmission, alors qu'avec des ions d'uranium ayant approximativement la même perte d'énergie (42.7 keV/nm), la formation de traces amorphes n'a pas été observée [49].



**Figure II-12 :** La section d'endommagement ( $A_{TEM}$ : déterminée par microscopie électronique à transmission,  $A_e$ : déterminée par RBS) en fonction de la perte d'énergie électronique dans le cas des ion d'uranium et des clusters  $C_{60}$  [49].

Ceci a été lié à l'effet de vitesse, car dans le cas des clusters la densité d'énergie déposée est beaucoup plus localisée que celle induite par les ions d'uranium d'énergie égale à 2.78 MeV/u. Un seuil de sensibilité du saphir autour de 21 keV/nm a été déduit avec les irradiations avec les ions et un autre seuil autour de 18 keV/nm, déduit par l'irradiation avec les clusters comme le montre la figure II-12.

Une étude complémentaire réalisée par Brenier et al. [50] sur le saphir, en utilisant des ions d'uranium d'énergie allant de 0.5 MeV/u à 3.4 MeV/u, a montré que la création de défauts est accompagnée par un gonflement, le seuil de gonflement est autour de 20 keV/nm (figureII-13).



**Figure II-13** : La variation de la hauteur de la marche avec la perte d'énergie électronique  $(dE/dx)_e$  dans le cas des ions d'uranium dans le cas d'une fluence de  $2.4 \times 10^{12}$  ions/cm<sup>2</sup> [50].

Le travail le plus récent sur le comportement du saphir sous irradiation dans le domaine de perte d'énergie électronique a été réalisé par Aruga et al. [51], en utilisant des ions d'iode d'énergie de 0.7 MeV/u. La microscopie en transmission a montré une amorphisation du matériau jusqu'à une profondeur de 4.5  $\mu\text{m}$  pour une fluence de  $2.8 \times 10^{14}$  ions/cm<sup>2</sup>. Alors que l'irradiation avec une fluence plus faible de valeur de  $1.8 \times 10^{14}$  ions/cm<sup>2</sup> n'a pas permis d'observer l'amorphisation.

## II-5. Discussion et but du présent travail

Dans la classification expérimentale sous irradiation par des ions lourds rapides proposée au début du chapitre,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  qui est un matériau difficilement amorphisable, se trouve parmi les matériaux non amorphisable. Cette classification pose évidemment la question concernant le processus de création de défauts dans les isolants : y a-t-il deux mécanismes différents de mise en mouvement des atomes selon que le matériau est amorphisable ou non.

Afin d'étudier le comportement spécifique du saphir sous irradiation de manière systématique à la surface ainsi que dans le volume, trois techniques différentes de caractérisations vont être utilisées : La microscopie à force atomique pour l'étude des défauts surfaciques, la profilométrie de surface pour caractériser l'endommagement créé dans la masse du matériau et enfin la rétro-diffusion de Rutherford pour sonder les dégâts de l'irradiation proche de la surface. L'étude sera complétée à titre comparatif sur deux autres matériaux l'un amorphisable ( $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ) et l'autre non amorphisable ( $\text{CaF}_2$ ).

## II-6. Modèle de formation de traces :

Le mécanisme de création de l'endommagement dans les isolants sous irradiations par des ions lourds, est un processus compliqué qui n'est pas complètement compris. Plusieurs mécanismes par lesquels l'énergie d'excitation électronique est convertie à une énergie générant le désordre du réseau ont été proposés. Jusqu'à présent aucun de ces modèle n'a réussi à expliquer l'ensemble des résultats expérimentaux existants et donc de prédire l'évolution de matériaux sous irradiations.

Les processus conduisant à la formation de traces peuvent être attribués à

- 1- L'inhomogénéité de la distribution de charge conduisant à l'explosion coulombienne [54]
- 2- L'effet de pointe thermique qui provient de la dissipation de l'énergie des électrons secondaires sous forme de chaleur [55,56].

- 3- La transformation de l'énergie d'excitation en mouvement atomique par un couplage direct électron-réseau. Le mécanisme des excitons auto-piégés a été identifiés dans les halogénures alcalins et le SiO<sub>2</sub> quartz [57,58].

### ***II-6-a Modèle de l'explosion coulombienne :***

Ce modèle a été proposé en 1965 par Fleicher, Price et Walker [54,59] pour rendre compte de la sensibilité d'un matériau à la révélation chimique des traces. Ce modèle est basé sur le fait qu'un ion de grande énergie, en pénétrant dans la matière laisse dans son sillage une zone dans laquelle les atomes sont fortement ionisés. Cette accumulation de charges positives entraîne une forte répulsion électrostatique entre les ions, pouvant conduire à une véritable explosion locale écrantée par le retour des électrons (dû à la force de rappel créée par le champ électrique).

Si le temps de retour des électrons est supérieur au temps caractéristique d'une vibration atomique ( $10^{-13}$ s) et si la force de répulsion entre les ions dépasse un certain seuil dépendant des constantes élastiques du matériau, il peut se produire une mise en mouvement des atomes. Pour ces raisons, la densité d'électrons libres et leur mobilité doivent être relativement faibles, comme c'est le cas dans les isolants. Les atomes éjectés de leurs sites originels forment des défauts lacunaires et interstitiels. Après la relaxation de la zone perturbée, il subsiste une zone désordonnée moins dense que le matériau initial.

Ce modèle a été mis en question par Ritchie et Claussen [60] qui pensent qu'il n'y a probablement pas un temps suffisant pour que les ions positifs s'accélèrent de manière appréciable avant le retour des électrons et la neutralisation de la charge ionique préalablement créée. Cependant ils proposent que les électrons qui retournent, créent un plasma dans la région du cœur. Dans le plasma il y a un temps suffisant pour que les ions soient chauffés par les électrons, causant ainsi un transfert d'énergie et de moment à la région qui entoure le cœur.

Ce modèle d'explosion coulombienne a également été repris et généralisé par Lesueur et al. [61] aux matériaux métalliques qui présentent un endommagement par excitation électronique, en prenant en compte la simultanéité des répulsions. Le champ électrique local associé à la forte densité d'ionisation induit une force radiale sur les atomes ionisés, qui se traduit par une onde de choc. Cette onde de choc peut déstabiliser les matériaux qui présentent une transition à haute pression.

Plusieurs modèles dérivent du mécanisme de l'explosion coulombienne : tel que le modèle des potentiels inter-atomiques modifiés [62], dans ce cas on considère la

perturbation des potentiels inter-atomiques de l'ensemble des atomes ionisés le long du parcours du projectile. A cause de ces potentiels perturbés, les atomes vont relaxer vers une autre position d'équilibre. Il en résulte une expansion du réseau, qui produit une contrainte interne. Si cette contrainte n'est pas isotrope, des déplacements atomiques peuvent être induits. L'existence de ces potentiels modifiés peut également abaisser l'énergie de seuil de déplacement élastique des atomes.

#### ***II-6-b. Modèle de la pointe thermique***

Ce modèle fut proposé en 1923 par Desauer [63] et appliqué pour la première fois aux métaux par Seitz et Koehler en 1959 [64]. Il consiste à supposer que l'énergie de l'ion incident, cédée aux atomes du réseau via l'interaction électron phonon est convertie en énergie thermique. Le fort dépôt d'énergie autour de la trajectoire du projectile peut ainsi provoquer la fusion d'une région cylindrique le long du parcours de l'ion. Cette fusion étant suivie d'une trempe ultra rapide, le matériau peut être gelé dans une structure amorphe. Ce modèle a été développé de façon quantitative dans les amorphes métalliques, dans les semi-conducteurs amorphes [56], dans les isolants et dans les matériaux métalliques [65,66]. La principale difficulté de ce modèle est la non connaissance de l'interaction électron phonon dans le cas des isolants. Ce paramètre est déduit de l'ajustement des résultats de calculs aux résultats expérimentaux. De plus les constantes physiques des matériaux et les équations de diffusion de chaleur employées sont celles d'un système macroscopique à l'équilibre thermique alors que l'on veut décrire un système à l'échelle microscopique qui se trouve hors équilibre thermodynamique.

#### ***II-6-c. Modèle des excitons autopiégés***

Les mécanismes cités plus haut font appel aux effets secondaires de l'excitation électronique tel que la redistribution de la charge dans la trace et de l'augmentation de la température globale.

L'interaction primaire entre la radiation ionisante et le solide produit des électrons, des trous et des excitons. L'exciton est créé par l'interaction électrostatique mutuelle entre l'électron et le trou. Tous les excitons sont instables vis-à-vis du processus de recombinaison de la paire électron-trou. La forte interaction entre les porteurs et le réseau est à l'origine du piégeage quasi systématique des excitons. Les excitons autopiégés peuvent être vu comme des défauts métastables ayant une longue durée de vie. Le caractère collectif de ce modèle vient du fait que si la concentration d'excitons autopiégés est assez élevée, leur présence change les propriétés des solides et leur comportement peut jouer un rôle important dans la détermination des propriétés des solides sous des

excitations électroniques denses, comme c'est le cas dans une trace. Les excitons autopiégés retiennent une quantité d'énergie d'excitation électronique considérable et sont ainsi capables de transférer leur énergie au réseau pour former des défauts. Cette localisation de l'énergie d'excitation électronique cause une distorsion du réseau.

Les modèles présentés ne sont pas incompatibles, par exemple le modèle excitonique n'exclue pas la possibilité que la pointe thermique et l'explosion coulombienne soient responsables de la formation de traces. De plus le modèle de l'explosion coulombienne et le modèle de la pointe thermique opèrent à des échelles de temps différentes. De plus le modèle de l'explosion coulombienne est un modèle non quantitatif et non prédictif, alors que le modèle de la pointe thermique est quantitatif et prédictif.

## II-7. Références :

---

- [1] M. Toulemonde, S. Bouffard, F. Studer , Nucl. Instr. Meth. B 91, 108, (1994)
- [2] S. Bouffard, J. Cousty, Y. Penneec and F. Thibaudau, Radiat. Eff. Def. Sol. 126, 225 (1993)
- [3] E. C. M. Silk, R.S. Barnes, Phil. Mag. 970, 4, (1959)
- [4] J. Vetter, R. Scholz, D. Dobrev, L. Nistor, Nucl. Instr. Meth. B 141, 747, (1998)
- [5] A. Meftah, F. Brisard, J. M. Costantini, M. Hage-Ali, J.P. Stoquert and M. Toulemonde, Phys. Rev. B 48, 920, (1993)
- [6] B. Canut, A. Benyagoub, G. Marest, A. Meftah, N. Moncoffre, S.M.M. Ramos, F. Studer, P. Thevenard, M. Toulemonde, Phys. Rev. B 51, 12194, (1995)
- [7] J. Jensen, A. Dunlop, S. Della Negra, Nucl. Instr. Meth. B 141, 753, (1998)
- [8] K. Schwartz, C. Trautmann, T. Steckenreiter, O. Geiss, M. Krämer, Phys. Rev. B 58, 11232, (1998)
- [9] T. Wiss, Hj. Matzke, C. Trautmann, M. Toulemonde, S. Klaumünzer, Nucl. Instr. Meth B 122, 583, (1997)
- [10] H.M. Naguib, R. Kelly, Radiat. Eff. 25, 1, (1975)
- [11] C. Houpert, F. Studer, H. Pascard, Jin Yun Fan, M. Toulemonde, Nucl. Tra. Radiat. Meas. 19, 85, (1991)
- [12] A. Barbu, A. Dunlop, D. Lesueur, R.S. Averbach, Europhys. Lett. 15, 37 (1991)
- [13] B. Gervais, thèse de Doctorat de l'université de Caen (1993)
- [14] E. J. Kobetich, R. Katz, Rays. Phys. Rev 170, 391, (1968)
- [15] M.P. R. Waligorski, R.N. Hamm, R. Katz, Nucl. Track. Radiat. Meas. 11, 309 (1986)
- [16] F. Garrido, C. Choffel, J.C. Dran, L. Thomé, L. Nowicki, A. Turos, Nucl. Instr. Meth B 91, 108 (1994)
- [17] Hj. Matzke, Nucl. Instr. Meth B 116, 121, (1996)
- [18] Hj. Matzke, P.G. Lucuta, T. Wiss, Nucl. Instr. Meth B 166-167, 920, (2000)
- [19] C. Trautmann, M. Toulemonde, K. Schwartz, J.M. Costantini, A. Müller, Nucl. Instr. Meth B 164-165, 365, (2000)
- [20] D. Albrecht, P. Armbruster, R. Spohr, M. Roth, K. Schaupt, H. Stuhmann, Appl. Phys. A 37, 37, (1985)
- [21] C. Trautmann, M. Toulemonde, J.M. Costantini, J.J. Grob, K. Schwartz, Phys. Rev. B 62, 13, (2000)

- 
- [22] C. Trautmann, J.M. Costantini, A. Meftah, K. Schwartz, J.P. Stoquert, M. Toulemonde, MRS Symposia Proceedings 504, 123, (1998)
- [23] J. Jensen, A. Dunlop, S. Della Negra, Nucl. Instr. Meth B 146, 399, (1998)
- [24] E. Johnson, L.T. Chadderton, Radiation Effects 79, 183 (1983)
- [25] J. Jensen, Thèse de l'université d'Odense (Danemark) (1999)
- [26] M. Boccanfuso, Thèse de l'université de Caen France (2001)
- [27] M. Boccanfuso, A. Benyagoub, K. Schwartz, M. Toulemonde, C. Trautmann, Nucl. Ener. 38, 271, (2001)
- [28] A. Berthelot, Thèse de l'université de Caen France (2000)
- [29] S. Hémon, F. Gourbilleau, C. Dufour, E. Paumier, E. Dooryhee, A. Rouanet, Nucl. Instr. Meth B 122, 526, (1998)
- [30] A. Berthelot, S. Hémon, F. Gourbilleau, C. Dufour, B. Domengès, E. Paumier, Phil. Mag A, Vol. 80, 10, 2257, (2000)
- [31] A. Berthelot, S. Hémon, F. Gourbilleau, C. Dufour, E. Dooryhee, E. Paumier, Nucl. Instr. Meth B 146, 437, (1998)
- [32] S. Hémon, C. Dufour, F. Gourbilleau, E. Paumier, E. Dooryhee, S. Bégin-Colin, Nucl. Instr. Meth B 146, 443, (1998)
- [33] S. Hémon, V. Chailley, E. Dooryhee, C. Dufour, F. Gourbilleau, F. Levesque, E. Paumier, Nucl. Instr. Meth B 122, 563, (1997)
- [34] A. Benyagoub, F. Couvreur, S. Bouffard, F. Lesvesque, C. Dufour, E. Paumier, Nucl. Instr. Meth B 175-177, (2001)
- [35] F. Agullo Lopez, C.R.A. Catlow, P.D. Townsend, Point Defects in Materials (Academic Press, London, 1988)
- [36] C.J. McHargue, G.C. Farlow, C.W. White, B.R. Appleton, P. Angelini, and H. Naramoto, NIMB 10/11, 569, (1985)
- [37] H.M. Naguib, J.F. Singleton, W.A. Grant and G. Carter, J. Mater. Sci. 8, 1633, (1973)
- [38] C.W. White, C.J. McHargue, P.S. Sklad, L.A. Boatner, G.C. Farlow Material-Science-Reports, 4(2-3), 41, July (1989)
- [39] D.M. Parkin and C.A. Coulter, J. Nucl. Mater. 101, 261, (1981)
- [40] C.J. McHargue, Nucl. Instr. Meth B 19/20, 787, (1987)
- [41] G.C. Farlow, C.W. White, C.J. McHargue, B.R. Appleton, Mater. Res. Soc. Symp. 27, 395 (1984)



- 
- [42] F. Clinard, L.W. Hobbs, in physics of radiation Effects in Crystals, edited by R.A. Johnson, A.N. Orlov, Chap. 7, (Elsevier, Amsterdam, 1986),
- [43] A. Sigrist, R. Balzer, *Helv. Phys. Acta.* 50, 49, (1977)
- [44] J. Borg, E. Dooryhee, Y. Langevin, GSI Darmstadt, Scientific Report 2, p. 227, (1986)
- [45] F. Jollet, J.P. Duraud, C. Noguera, E. Dooryhee, Y. Langevin, *Nucl. Instr. Meth B* 46, 125, (1990)
- [46] B. Canut, A. Benyagoub, G. Marest, A. Meftah, N. Moncoffre, S.M.M. Ramos, F. Studer, P. Thevenard, M. Toulemonde, *Phys Rev B* 51, 12194, (1995)
- [47] B. Canut, S.M.M. Ramos, P. Thevenard, N. Moncoffre, A. Benyagoub, G. Marest, A. Meftah, M. Toulemonde, F. Studer, *Nucl. Instr. Meth. B80/81*, 1114, (1993)
- [48] S.M.M. Ramos, N. Bonardi, B. Canut, S. Della-Negra, *Phys Rev B* 57, 189, (1998)
- [49] S.M.M. Ramos, N. Bonardi, B. Canut, S. Bouffard, S. Della-Negra, *Nucl. Instr. Meth. B143*, 319, (1998)
- [50] R. Brenier, B. Canut, S.M.M. Ramos and P. Thevenard, *Nucl. Instr. Meth. B* 90, 339, (1994)
- [51] T. Aruga, Y. Katano, T. Ohmichi, S. Okayasu, Y. Kazumata, *Nucl. Instr. Meth. B* 166-167, 913, (2000)
- [52] C. Trautmann, J.M. Costantini, A. Meftah, K. Schwartz, J.P. Stoquert, M. Toulemonde, *Atomistic Mechanisms in Beam Synthesis and irradiation of Materials*, 8, 123, (1999)
- [53] C. Müller, M. Cranney, A. El-Said, N. Ishikawa, A. Iwase, M. Lang. R. Neumann, *Nucl. Instr. and Meth. B* 191, 246, (2002)
- [54] R.L. Fleicher, P.B. Price, R.M. Walker, *J. Appl. Phys.* 36, 3645, (1965)
- [55] L.T. Chadderton, I.M. Torrens, Methuen & Co Ltd, London (1969)
- [56] M. Toulemonde, C. Dufour, E. Paumier, *Phys. Rev. B* 46, 14362, (1992)
- [57] N. Itoh, T. Nakayama, *Nucl. Instr. Meth. B* 13, 550, (1986)
- [58] N. Itoh, *Nucl. Instr. Meth. B* 116, 33, (1996)
- [59] R.L. Fleicher, P.B. Price, R.M. Walker, *Nuclear Tracks in Solids*, (University of California Press, Berkely 1975)
- [60] R.H. Ritchie, C. Claussen, *Nucl. Instr. Meth. B* 198, 133, (1982)
- [61] D. Lesueur, A. Dunlop, *Radiat. Eff.* 126, 163, (1993)
- [62] C.C. Watson, T.A. Tombrello, *Radiat. Eff.* 89, 263, (1985)
- [63] F. Desauer, *Z. Physik* 38, 12, (1923)
- [64] F. Seitz, J.S. Koehler, *Solid State Physics* 2, 305, (1956)

---

[65] A. Meftah, J.M. Costantini, M. Djebara, N. Khalfaoui, J.P. Stoquert, F. Studer, M. Toulemonde, Nucl. Instr. Meth. B 122, 470, (1997)

[66] C. Dufour, A. Audouard, F. Beuneu, J.P. Girard, A. Hairie, M. Levalois, E. Paumier, M. Toulemonde, J. Phys. : Condens. Matter, 5, 4573, (1993)



***Chapitre III : Dispositifs d'irradiation et techniques  
d'analyse***



### **III. Introduction**

Les irradiations réalisées dans le cadre de cette thèse ont été effectuées sur différents sites. Les irradiations avec des ions calcium, nickel, krypton, xénon, plomb ont été faites au GANIL (Caen), l'irradiation avec les ions bismuth et uranium a été réalisée à GSI (Darmstadt) et enfin les irradiations avec les ions or à l'IRES à Strasbourg. Toutes nos irradiations ont été réalisées en contrôlant uniquement la fluence reçue par les échantillons, à température ambiante, et avec des ions en équilibre de charge. Les matériaux après irradiation sont étudiés par trois caractérisations physiques différentes : la microscopie à force atomique, la rétrodiffusion de Rutherford en canalisation et par la mesure du gonflement. Dans ce chapitre, nous allons décrire les trois dispositifs d'irradiation ainsi que les outils utilisés pour étudier les effets des irradiations.

#### **III-1. Les dispositifs d'irradiation**

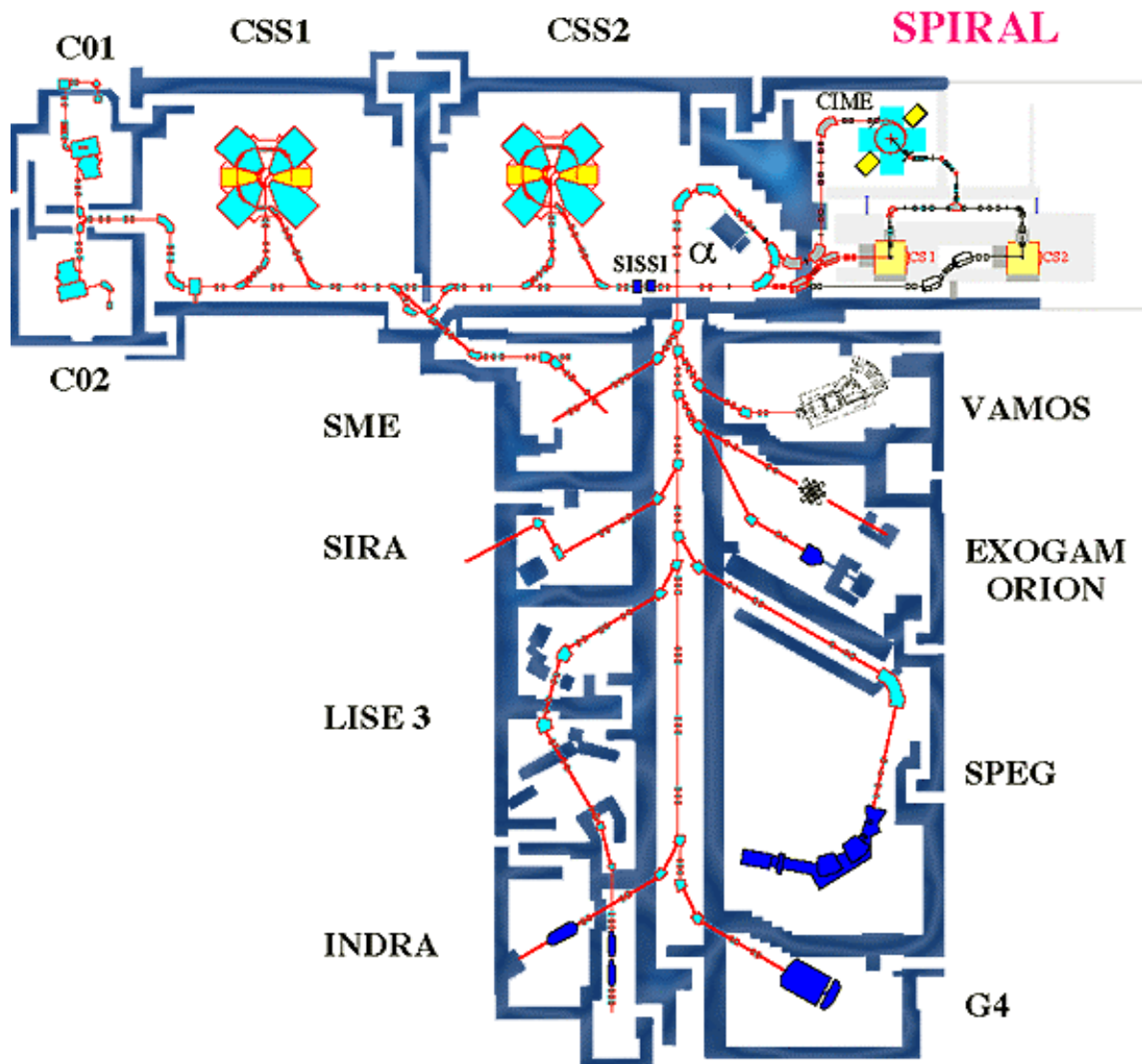
##### ***III-1-a. Le GANIL***

Le GANIL (Grand Accélérateur National d'Ions Lourds) est un accélérateur au service de la physique nucléaire. Cependant, 10 % du temps de faisceau de la haute énergie est accordé à la physique de l'atome et de la matière condensée. De plus, profitant de l'accélération en cascade des ions par deux cyclotrons, le CIRIL a construit la Sortie Moyenne Energie (SME) pour augmenter le nombre d'expériences effectuées.

Les faisceaux d'ions multichargés sont produits dans les sources ECR (Electron Cyclotron Resonance) à partir d'une vapeur provenant d'une cible gazeuse ou solide, ionisée par un faisceau d'électrons. Une fois les faisceaux extraits de la source, ils sont accélérés par les cyclotrons injecteurs C01 ou C02. Ils sont ensuite envoyés dans le premier Cyclotron à Secteurs Séparés CSS1, qui accélère les ions à une énergie de l'ordre de 10 MeV/u. A la sortie du CSS1, les ions traversent l'éplucheur (une feuille de carbone) qui a pour effet d'augmenter la charge des ions. Les ions, portant l'état de charge  $q$ , sont guidés dans salle D1 et sont dits des ions de Moyenne Energie. Ceux d'une charge supérieure sont dirigés vers le deuxième Cyclotron à Secteur Séparés CSS2, leur énergie à la sortie de CSS2 est de l'ordre de plusieurs dizaines de MeV/u. Le spectromètre magnétique  $\alpha$  de haute résolution sélectionne l'énergie désirée et le faisceau est conduit vers les salles d'expériences.

Par ce dispositif, le GANIL (figure III-1) produit des faisceaux d'ions allant du carbone à l'uranium, d'énergie pouvant atteindre respectivement 90 MeV/u et 24 MeV/u, avec un flux variant entre  $10^{13}$  et  $10^8$  ions. $s^{-1}.cm^{-2}$ .

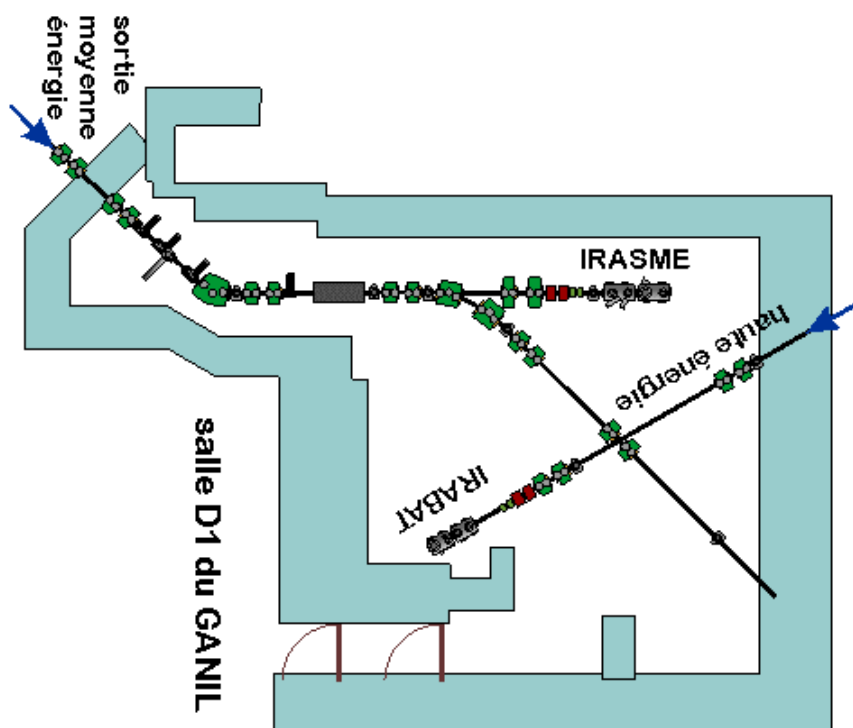
Une nouvelle ligne IRRSUD a été construite au GANIL spécialement pour délivrer des ions accélérés par les cyclotrons injecteurs du GANIL dans la gamme du carbone à l'uranium (0.25 à 1 MeV/u), dans un domaine d'énergie correspondant à celui des produits de fission. Elle est équipée avec une chambre d'irradiation qui permettra en particulier d'étudier les effets induits dans des matériaux envisagés pour le stockage à long terme des déchets nucléaires



*Figure III-1 : Aires expérimentales du GANIL*

### ***III-1-a-1. La salle D1***

La salle D1 dans laquelle nous avons travaillé (figure III-2) est constituée de trois lignes d'irradiation : Deux d'entre elles utilisent le faisceau d'ions de Sortie Moyenne Energie qui sort de CSS1. Il s'agit de la ligne IraSME (Irradiation en Sortie Moyenne Energie) destinée aux expériences de la matière condensée et la ligne dite de physique atomique. La troisième ligne est issue du spectromètre  $\alpha$ , qui délivre des ions de haute énergie vers le dispositif IRABAT (Irradiation à basses températures). Les irradiations qui ont été réalisées, ont été faites dans le dispositif IraSME en incidence normale.

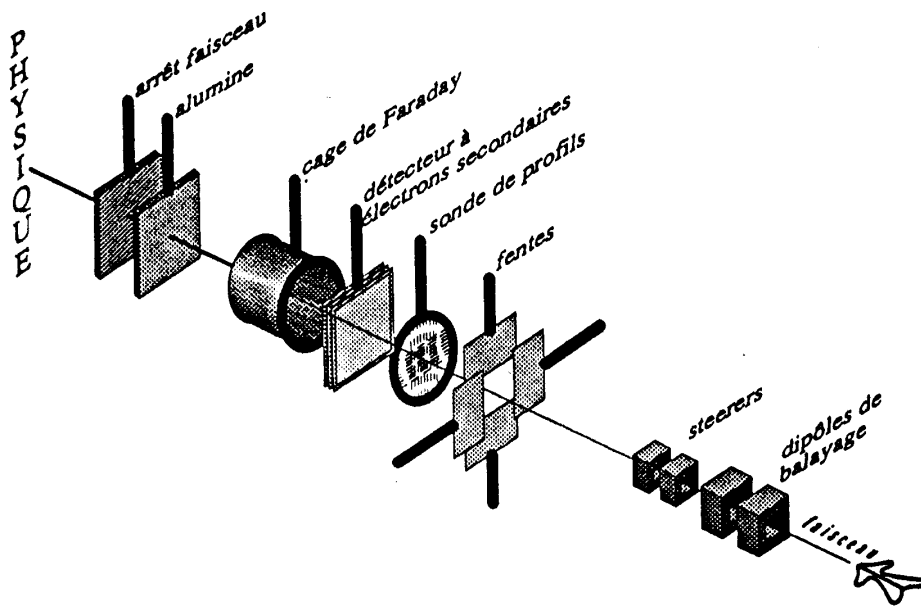


***Figure III-2 : La salle D1***



### III-1-a-2. Les paramètres d'irradiation

La figure III-3, montre les différents éléments de réglage et de caractérisation du faisceau, installés dans IraSME.



**Figure III-3** : Schéma des dispositifs de définition de faisceau dans IRABAT et IraSME.

Les dipôles de balayage permettent d'irradier une surface homogène. Les steerers positionnent le balayage en un point choisi. Un système de fentes définit la taille de la surface irradiée ( $5 \times 5 \text{ cm}^2$ ). La sonde de profil, constituée de deux réseaux perpendiculaires de fils conducteurs, permet d'analyser le profil en intensité du faisceau. Le détecteur à électrons secondaires, constitué de trois feuilles métalliques ( $0.8 \mu\text{m Al} / 1 \mu\text{m Ti} / 0.8 \mu\text{m Al}$ ), permet de mesurer l'intensité du faisceau pendant l'irradiation. Le principe de cette mesure a été développé par Bouffard et al. [1]. Une cage de Faraday escamotable mesure le flux d'ions incidents pendant le réglage du faisceau et permet de calibrer le détecteur à électrons secondaires. Le faisceau est visualisé grâce à une alumine, luminescente sous irradiation, se trouvant avant ou sur le porte échantillon. Les différents échantillons, de surface ne dépassant pas  $1 \text{ cm}^2$ , étaient fixés sur des supports en aluminium placés verticalement et perpendiculaire au faisceau. Quelque fois les échantillons sont recouverts par des feuilles d'aluminium ou de

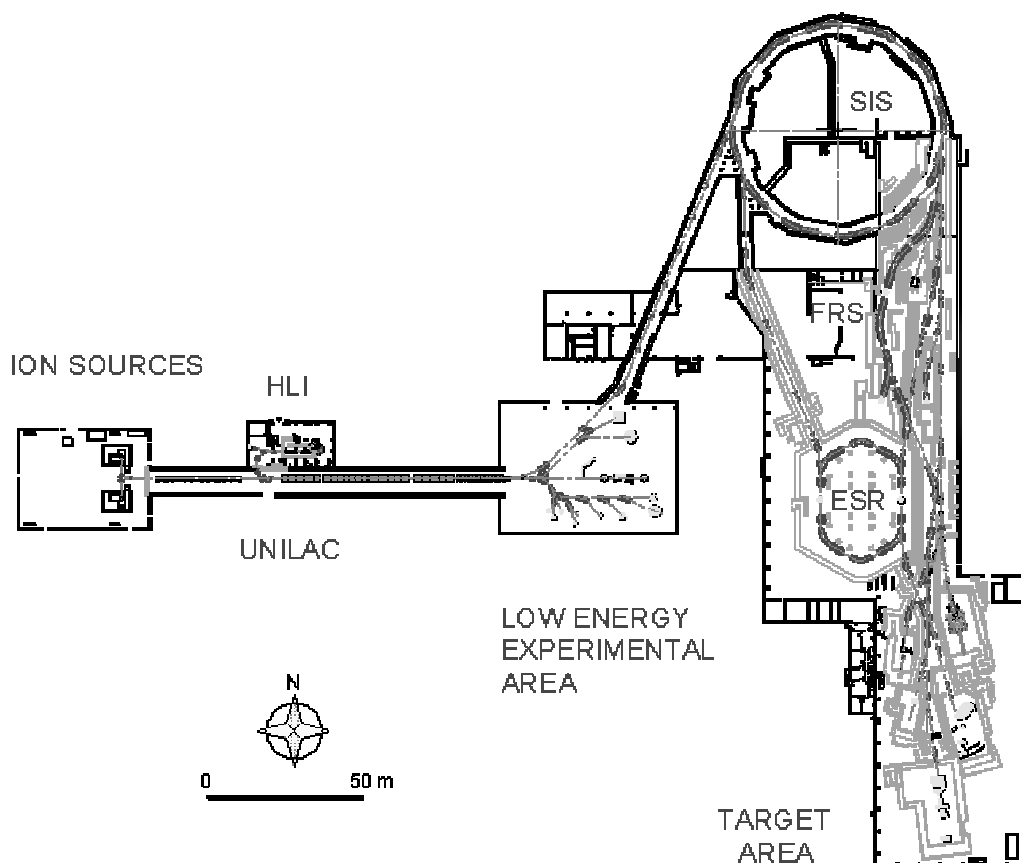
cuivre afin de diminuer l'énergie initiale du faisceau. L'épaisseur de ces feuilles de ralentissement fut choisie en fonction du pouvoir d'arrêt électronique souhaité.

### ***III-1-b. L'UNILAC de GSI***

L'accélérateur de GSI (Gesellschaft für SchwerIonenforschung) se trouve à Darmstadt, (Allemagne) il est constitué d'un accélérateur linéaire (Universal Linear Accelerator (UNILAC)) et d'un synchrotron de 60 mètres de diamètre (Synchrotron for heavy Ions (SIS)), qui permet d'accélérer des ions jusqu'à une énergie cinétique entre 1 et 2 GeV par unité de masse atomique, selon l'élément mis en jeu. Il possède également un séparateur de fragments (Fragment Separator (FRS)) et un anneau de stockage (Experimental Storage Ring (ESR)), où le faisceau d'ions est refroidi par un faisceau d'électrons.

En 1999, l'UNILAC a été amélioré par la mise en place d'un injecteur à haute intensité (HLI) qui est constitué d'un accélérateur quadripôle de radio fréquence, dans le but d'atteindre la limite de la charge d'espace du (SIS), pour toutes les espèces jusqu'à l'uranium.

La ligne utilisée dans le domaine de la recherche sur les interactions ions-matière commence évidemment à partir de la source jusqu'à l'aire expérimentale de basse énergie (LOW ENERGY EXPERIMENTAL AREA) (figure III-4). Dans cette ligne, l'énergie atteinte est de 11.4 MeV/u pour l'ensemble des ions. Les flux peuvent atteindre  $10^8$ - $10^9$  particule/s/cm<sup>2</sup>, selon la nature de l'ion.



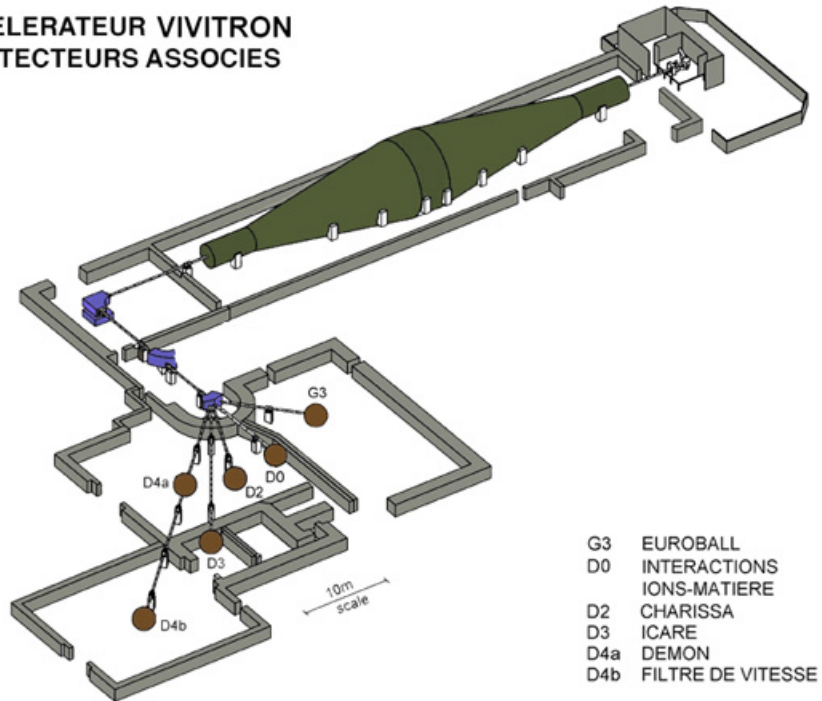
*Figure III-4 : Vue générale de l'accélérateur de GSI. Les différentes aires expérimentales sont représentées.*

### III-1-c. Le Vivitron de l'IRES à Strasbourg

Le Vivitron se trouve à l'institut de recherches subatomiques (IRES). C'est un accélérateur électrostatique Van de Graaff de type tandem. La tension limite d'accélération du Vivitron est de 18,5 MV. L'intensité des faisceaux ainsi produits varie, suivant la nature de l'ion et la tension de l'accélérateur, de 1 à 50 nA particules, soit  $0,6$  à  $3 \times 10^{11}$  particules/s. Il est constitué d'un injecteur dont le rôle est de fournir des ions négatifs à l'accélérateur, à des énergies comprises entre 100 et 330 keV. Il comprend trois voies, équipées chacune d'une source d'ions pouvant être alternativement activée. A la sortie de l'accélérateur, le faisceau est analysé en énergie par un aimant à  $90^\circ$  à fort pouvoir séparateur. Puis le faisceau pénètre dans un aimant d'aiguillage chargé de le diriger vers les postes d'expériences. La chambre D0 est

utilisée pour les études relatives aux interactions ions lourds-matière. Cette ligne est équipée d'un système de balayage XY, permettant l'irradiation des échantillons.

**ACCELERATEUR VIVITRON  
& DETECTEURS ASSOCIES**



*Figure III-5 : Une vue d'ensemble de Vivitron*

## **III-2. Les techniques de caractérisation**

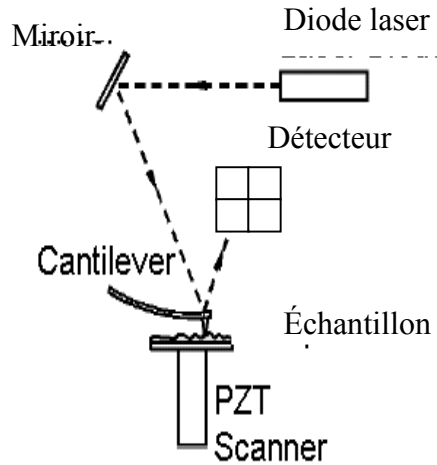
### **III-2-a. Les Microscopes à champ proche**

Les microscopies à sonde locale sont apparues au début des années quatre-vingts avec le développement par Binnig et Rohrer du microscope à effet tunnel (STM) [2]. Cette découverte a valu à ses auteurs le prix Nobel en 1986. Depuis, de nombreuses autres microscopies sont apparues : la microscopie de force atomique [3] et de nombreuses techniques dérivées, microscopie de force de friction, microscopie de force magnétique, etc.

Ces microscopies ont pris une importance de plus en plus grande en science des matériaux. Cet essor est notamment dû à la capacité de ces techniques d'imager la morphologie et la microstructure des surfaces depuis l'échelle micrométrique jusqu'à l'échelle moléculaire ou atomique. Mais leur succès est surtout lié à leur capacité de mesurer et d'imager à l'échelle nanométrique des propriétés qui ne peuvent pas l'être par d'autres techniques. Ainsi, la spectroscopie à effet tunnel permet de mesurer localement la structure électronique de surface des matériaux. Les microscopies de force atomique permettent de mesurer et d'imager de nombreuses propriétés locales, telles que les modules élastiques et viscoélastiques, les propriétés d'adhésion, la composition chimique, les charges électrostatiques, etc....

#### **III-2-a –1. Présentation du microscope à force atomique 'AFM'**

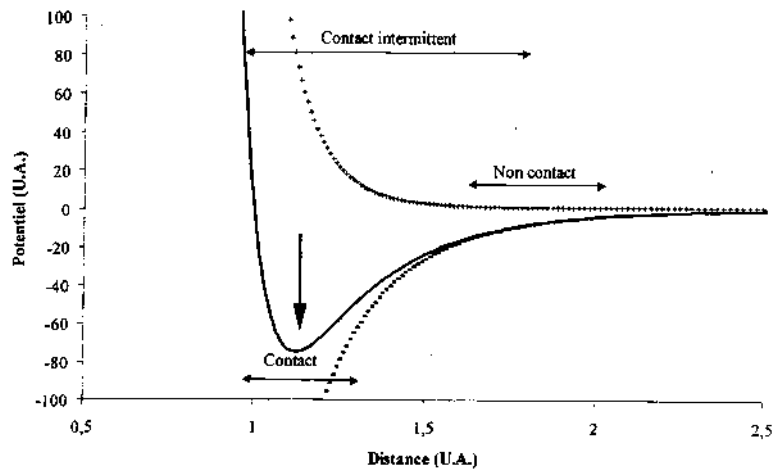
Le principe des microscopies à sonde locale est dans son concept général très simple. Il consiste à déplacer une sonde fine à proximité de la surface, à mesurer les interactions locales entre les atomes de la surface et les atomes de la sonde (pointe), par l'intermédiaire du mouvement de cette pointe, en utilisant un système de détection optique (figure III-6). Ce sont les forces d'interaction entre la pointe et l'échantillon qui sont à la base du fonctionnement de l'instrument.



**Figure III-6 :** Principe du fonctionnement du microscope à force atomique

### III-2-a –2. Les Forces

En général, l'interaction pointe-échantillon peut être décrite en utilisant des potentiels empiriques comme le potentiel de Lennard-Jones. Ce potentiel se compose d'une loi de puissance de  $1/r^6$  pour décrire les interactions attractives à grandes distances et une loi de puissance en  $1/r^{12}$  pour décrire la répulsion ionique à petites distances (figure III-7).



**Figure III-7 :** Potentiel de Lennard Jones. L'interaction totale (courbe pleine) est la somme d'un potentiel attractif (courbe-) et d'un potentiel répulsif (courbe+). A courte distance, le potentiel est répulsif. Au delà de la distance d'équilibre interatomique (indiquée par une flèche), le potentiel est attractif.

Dans le domaine de la microscopie à force atomique, la connaissance des interactions entre la pointe et l'échantillon est nécessaire pour interpréter les données correctement. Plusieurs forces contribuent aux mouvements de la pointe. Les différentes forces qui sont principalement utilisées pour imager sont les forces répulsives interatomiques, électrostatique, magnétiques, Van der Waals et les forces de friction. De plus, les forces capillaires sont présentes quand on image l'échantillon dans l'air.

### **III-2-a –2-a. Les forces de Van der Waals**

L'origine des forces de van der Waals est due au fait que dans chaque atome il y a création d'un moment dipolaire instantané du fait que le centre de gravité des charges positives du noyau ne coïncide pas avec le centre de gravité du nuage électronique de l'atome. Dans un solide, les forces qui sont générées par l'interaction de ces dipôles électriques, sont appelées les forces de van der Waals.

Dans le cas d'une sphère sur une surface plate, la géométrie qui est fréquemment utilisée pour approximer la pointe et l'échantillon, les forces de van der Waals sont données par l'expression suivante [4].

$$F = -\frac{AR_c}{6d^2}$$

A : est la constante de Hamaker

R<sub>c</sub> : est le rayon de courbure de la pointe

d : est la distance de séparation pointe-échantillon

Les forces de van der Waals sont des forces attractives de longue portée, elles sont efficaces à partir de quelques Angstroms jusqu'à des distances supérieures à quelques dizaines de nanomètres.

### **III-2-a –2-b. Les Forces répulsives**

Dans le cas où la distance pointe-échantillon est inférieure de quelques Angstroms, les forces interatomiques entre la pointe et la surface de l'échantillon sont répulsives. A cette échelle spatiale, le principe de Pauli interdit le recouvrement des nuages électroniques, ce qui empêche la pointe de pénétrer dans l'échantillon.

### III-2-a –2-c. Les forces de capillarité

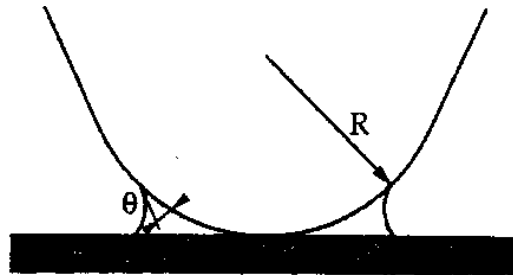
Dans les conditions ambiantes, il y a formation d'un microménisque liquide sur les surfaces. Ce microménisque maintient les objets en contact. La pointe pénètre à travers cette couche pour approcher la surface de l'échantillon. Au microcontact pointe-échantillon, une force attractive agit sur la pointe. En assimilant le contact pointe surface à un contact sphère plan, l'écriture de la pression de Laplace dans le liquide donne l'expression de la force capillaire attractive [5,6]

$$F = 4\pi R\gamma \cos\theta$$

R est le rayon de la sphère

$\gamma$  est la tension de surface du liquide

$\theta$  est l'angle de contact. Lorsque la pointe quitte la surface,  $\theta$  est égale à zéro (figure III-7) .



**Figure III-8** : Ménisque capillaire à l'interface pointe-surface

Les forces capillaires peuvent avoir des valeurs de plus de  $10^{-7}$  Newton. Pour les échantillons mous, tels que les membranes biologiques, de telles forces vont souvent déformer la surface de l'échantillon. Les forces capillaires peuvent être évitées en effectuant les mesures dans le vide.



### **III-2-a –2-d. Les forces de friction**

Si la pointe et l'échantillon sont en contact et se déplacent l'un par rapport à l'autre, les forces de friction peuvent se produire. Cette force est représentée par la composante de la force agissant sur la pointe parallèlement à la surface de l'échantillon causant ainsi une torsion du cantilever qui peut être mesurée [7]. Les forces de friction peuvent être très grandes, et dans certains cas plus grandes que la composante normale de la force. Elles dépendent du potentiel de surface. Puisque les différents matériaux présentent des potentiels de surfaces différents, la variation de la force de friction peut être attribuée aux différences liées à la structure et la composition chimique de la surface.

### **III-2-a –2-e. Les forces magnétiques et électriques**

La force électrostatique et magnétique en comparaison avec la plupart des forces décrites plus hauts sont des forces de longues portées.

Le piégeage des charges électrostatique dans les isolants donne naissance à une force électrique. De plus si on est en présence des matériaux magnétiques, ceci donne naissance à une force magnétique.

### **III-2-a-3. Les différents modes d'imagerie**

Il existe plusieurs mode de fonctionnement du microscope à force atomique suivant que la pointe touche ou ne touche pas la surface, que l'on travaille à fréquence nulle ou à la fréquence de résonance du cantilever. Les informations recueillies sont alors de nature variées : topographique, électrique, magnétique.

#### **III-2-a-3-a. Le mode contact**

Dans ce mode d'imagerie la pointe est en contact répulsif avec la surface. Lorsque la pointe balaye la surface, les forces répulsives vont provoquer la flexion du cantilever. Pour obtenir une image topographique de la surface, il suffit de mesurer la déflexion du cantilever, c'est à dire la position verticale de la pointe  $Z$ , en fonction de la position horizontales  $(X,Y)$  de l'échantillon. Dans ce mode la pointe interagit avec la surface de l'échantillon dans le domaine des forces répulsives (figure III-7). Deux modes d'imagerie sont alors possibles pour imager la surface.

### III-2-a-3-a-1. Le mode d'imagerie à force constante

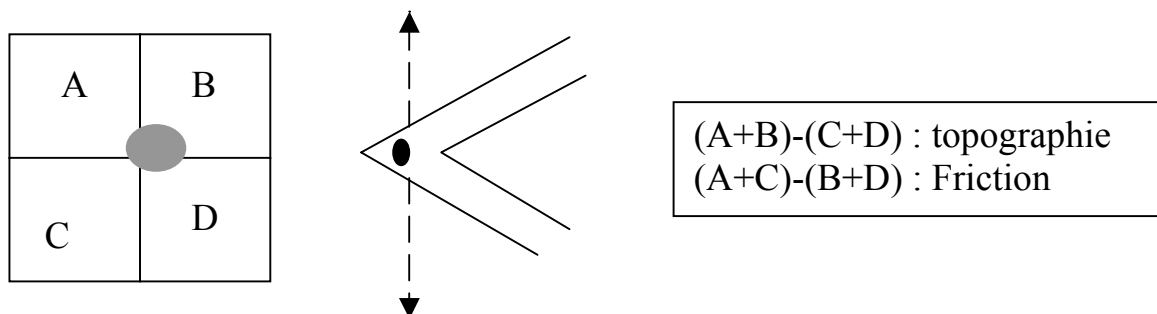
C'est le mode opérationnel le plus important de la microscopie à force atomique. La condition de force constante est réalisée en gardant la déflexion du cantilever constante ( $F=k.Z$ ,  $k$  étant la constante de raideur du cantilever). Le signal  $U_Z$  qui ajuste la position verticale de l'échantillon pour avoir une déflexion constante (force constante) peut être enregistré comme une fonction des coordonnées  $(X,Y)$  qui sont déterminées par leur tension correspondante  $U_X$  et  $U_Y$  appliquées au piezo  $X$  et  $Y$ . Le signal obtenu  $U_Z(U_X,U_Y)$  peut finalement être transposé à la topographie  $Z(X,Y)$

### III-2-a-3-a-2. L'imagerie à déflexion variable

Dans ce mode, la déflexion verticale n'est pas maintenue constante. Elle est mesurée en fonction des déplacements latéraux de l'échantillon. En pratique il est utilisé pour réaliser des images atomique ou moléculaire sur des échantillons cristallins.

### III-2-a-3-a-3. La microscopie de force latérale

Dans le mode contact, la force de friction latérale induit une torsion du levier qui provoque elle même une déflexion latérale du faisceau laser. Ayant une diode photodéetectrice à quatre quadrants, il est possible de mesurer simultanément les déflexions verticales et latérales du levier et donc de cartographier simultanément la topographie de la surface d'un échantillon et les variations de la force de friction pointe surface (figure III-9)



**Figure III-9** : Mesure de la topographie de la surface et de la friction en mode contact.

### **III-2-a-3-b. Le mode non contact**

Le mode non contact a été développé afin d'éviter la déformation et la dégradation de la surface des échantillons mous comme les polymères et les matériaux biologiques. En effet, en mode contact, les forces de friction pointe surface induisent souvent des modifications de surface. Le mode non contact consiste à faire vibrer le cantilever à une petite amplitude de manière à rester dans le domaine attractif sans saut au mode contact [8]. Dans ce mode une petite céramique piezo électrique est fixée au niveau de l'encastrement du cantilever (levier) afin de le faire vibrer.

Dans le mode non contact (NC-AFM), la fréquence de travail est légèrement supérieure à la fréquence de résonance. Le champ attractif près de la surface de l'échantillon provoque une légère diminution de la fréquence de résonance et donc une diminution de l'amplitude de vibration à la fréquence de travail.

Au cours du balayage au dessus de la surface de l'échantillon, la hauteur de l'échantillon par rapport à la pointe va être modifié pour maintenir l'amplitude de vibration constante, permettant ainsi de créer une image topographique de la surface grâce aux forces de van der Waals. Ce mode d'imagerie est surtout réalisé sous vide pour éviter les couches absorbées d'eau ou d'autres polluants. Il peut être étendu à la mesure des forces magnétiques (à l'aide d'une pointe magnétique) ou de la capacité électrique entre la pointe et la surface en appliquant un potentiel électrique entre la surface et la pointe.

### **III-2-a-3-c. Le mode contact par tapotement ou « tapping »**

Dans le mode non contact, la pointe vibre proche de la surface avec une faible énergie car les forces de van der Waals sont relativement faibles. Cependant le déplacement de la pointe proche de la surface augmente la probabilité d'avoir la pointe attirée et collée dans la couche d'eau qui couvre la surface de tous les échantillons se trouvant dans l'air. Afin de surmonter cette difficulté Digital Instrument a développé une nouvelle technique. Dans cette technique le cantilever vibre à des amplitudes plus grandes que celles utilisées dans le mode non contact. A chaque cycle, la pointe vient effleurer le mur répulsif de la surface afin de la toucher. Dans ce cas la fréquence de travail est généralement légèrement inférieure à la fréquence de résonance. Ce mode est très utilisé pour connaître la topographie des

échantillons. Le temps de contact, étant très court, permet de ne pas induire de forces de frottement sur l'échantillon. On évite ainsi les déformations de certains échantillons. De plus, à cause de la brièveté du contact, l'adhésion n'a pas le temps de se développer.

L'amplitude de vibration est amortie quand la pointe touche la couche d'eau et la surface de l'échantillon, mais la grande amplitude de vibration donne au cantilever (levier) une énergie suffisante pour surmonter la tension de surface de la couche d'eau.

Le mode tapping permet aux échantillons fragiles d'être imagés sans les déformer. Dans le cas du mode tapping, il n'y a pas une forme analytique pour calculer la force normale exercée sur l'échantillon. Cette force a été calculée, en déterminant le temps de contact, qui est le temps où la pointe interagit avec la surface avec une interaction répulsive. Cette force est entre 10 et 40 nN [9].

Comme en mode non contact, le balayage à amplitude de vibration constante permet d'obtenir une image topographique de la surface.

Le mode contact par tapotement est généralement associé au mode contraste de phase. Quand la hauteur de l'échantillon est asservie à une amplitude constante, la phase du système est caractéristique des dissipations énergétiques du système. Ce mode d'imagerie (phase) consiste à mesurer la différence de phase entre le signal d'excitation et la réponse du cantilever. Il est apparu que ce signal dépend fortement des interactions entre la pointe et la surface (forces attractives, élasticité de la surface) et de la topographie de la surface [10].

Comme le mode tapping est le mode le plus utilisé dans cette thèse, nous allons tenter de donner un aperçu sur l'aspect théorique de ce mode.

Le cantilever est une poutre encadrée, c'est un bon oscillateur mécanique dont les dissipations sont faibles. Elles sont principalement liées à la viscosité du milieu. Dans la plupart des cas, le spectre de résonance du cantilever loin de la surface est pratiquement confondu avec celui d'un oscillateur harmonique, caractérisée par une fréquence de résonance  $f$  et un facteur de qualité ( $Q = \Delta f/f$ ).

### **III-2-a-3-c-1. Principe général**

Le problème général à résoudre, pour décrire le fonctionnement des modes résonnants, est celui des modes de vibration d'une poutre semi encadrée dont l'extrémité est soumise à un champ de forces. Les forts coefficients de qualité expérimentalement observés permettent de

restreindre l'analyse à un seul mode pour lequel l'équation du mouvement se ramène avec une très bonne approximation à celle d'un oscillateur harmonique soumis à un champ de forces.

L'équation qui rend compte du système s'écrit donc :

$$d^2z/dt^2 + 2\beta dz/dt + \omega_0^2 z = \gamma \cos \omega t + f(D,t)/m$$

$z$  est la coordonnée de position de l'oscillateur, ici l'écartement de la pointe par rapport à sa position d'équilibre,  $\omega_0$  est la fréquence de résonance de l'oscillateur,  $\gamma$  représente l'amplitude de l'excitation à la fréquence angulaire  $\omega$ ,  $\beta$  est un terme de dissipation de l'énergie,  $m$  est une masse effective pour l'oscillateur ( $\omega_0 = \sqrt{k/m}$ , ou  $k$  est la constante de raideur du cantilever).

$f(D,t)$  est la force d'interaction pointe échantillon où  $D$  est la distance entre la surface et la position de la pointe quand le cantilever n'est pas défléchi.

On cherche une solution permanente sous la forme  $z=A \cos(\omega t-\varphi)$ . Dans ce cas l'interaction pointe surface est une fonction périodique du temps que l'on représente par son développement en série de Fourier.

L'harmonicité de la réponse conduit à ne conserver que les termes du premier ordre :

$$F(D,t)=\phi(D,A)\cos(\omega t-\varphi)+\psi(D,A)\sin(\omega t-\varphi)$$

$$\text{Où } \phi(D,A)+i\psi(D,A)=\omega/\pi \int_0^{2\pi/\omega} f(D,t)e^{i(\omega t-\varphi)} dt$$

Après insertion de cette forme pour l'interaction et la solution recherchée, l'identification des termes en sinus et cosinus conduit aux relations :

$$A(\omega_0^2 - \omega^2) = \gamma \cos \varphi + \phi(D,A)/m$$

$$2A\beta\omega = \gamma \sin \varphi - \psi(D,A)/m$$

Pour un modèle d'interaction et des conditions d'excitation données, ces relations déterminent l'amplitude et la phase de la réponse.

### Interaction non dissipative :

L'énergie dissipée par l'interaction au cours d'un cycle,  $U_{diss} = \oint f(D,t)dz$ , peut s'exprimer comme  $U_{diss} = -A\omega \int_0^{2\pi/\omega} f(D,t) \sin(\omega t - \varphi) dt$

$$\text{Soit encore } U_{diss} = \pi A m \gamma \left( \frac{2A\beta\omega}{\gamma} - \sin \varphi \right)$$

Cette relation exprime que si l'amplitude est maintenue constante au cours du balayage d'une image à excitation fixe, le déphasage présente une forme de la dissipation locale de l'énergie

Les images de phase recèlent une information en général assez riche. Sur les deux paramètres qui décrivent le fonctionnement de l'oscillateur, (l'amplitude et la phase), l'amplitude est maintenue constante grâce à la boucle d'asservissement et caractérise plutôt la topographie, l'autre (la phase) évolue en fonction des paramètres physiques de l'interaction (viscoélasticité, présence de contamination, adhésion), l'origine précise des contrastes de phase reste en général inconnue.

### III-2-a-3-c-2. La résolution latérale et verticale du tapping

La microscopie à force atomique génère des images à trois dimensions de la surface de l'échantillon. Par conséquent deux types de résolution peuvent être distingués : la résolution verticale et latérale. La résolution verticale est limitée par le bruit généré par le système de détection et les fluctuations thermiques du cantilever. En général, le bruit thermique du cantilever est la plus grande source du bruit dans l'AFM. Si l'amplitude d'oscillation est mesurée avec une méthode d'optique de déflexion, le bruit thermique est donnée par l'expression suivante [11]

$$Z = \sqrt{4k_B T / 3k}$$

$k_B$  la est constant de Boltzmann

T la température

k est la constante de raideur du levier

La valeur du bruit thermique est égale à 0.01 nm. De plus en tenant compte du système de détection, la résolution verticale est donnée en général autour de 0.1nm.

La résolution latérale dans le mode tapping est comparable à celle du mode contact car la grande fréquence de vibration du cantilever permet à la pointe de toucher la surface à chaque point. Par conséquent, la taille et la forme de la pointe définissent la résolution latérale dans le mode tapping comme dans le cas du mode contact.

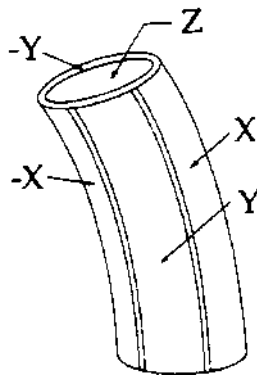
### III-2-a-4. Les différents éléments du microscope

#### III-2-a-4-a. La céramique piézo-électrique

Le système de positionnement utilise une céramique piézo-électrique. Elle est fabriquée à partir de fer de zirconium et de titane (PZT). Elle permet de déplacer l'échantillon dans les trois directions de l'espace avec des résolutions inférieures au nanomètre et possède l'avantage de se dilater ou de se contracter de manière proportionnelle à la différence de potentiel qui lui est appliquée. Sa tension est contrôlée verticalement pour l'asservissement et horizontalement pour le balayage.

Binnig et Smith [12] ont développé des tubes piézo-électrique mobiles dans les trois directions de l'espace composés de cinq électrodes constituant le tube piezo (figure III-10).

Ils permettent des débattements horizontaux de plusieurs dizaines de micromètres et des dilatations verticales d'une dizaine de micromètres.

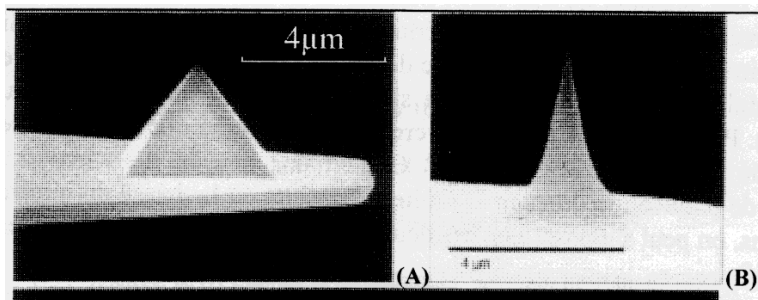


**Figure III-10 :** Tube piézo-électrique

### III-2-a-4-b. Le cantilever et la pointe

Généralement les pointes d'AFM sont intégrées aux cantilevers. Pour atteindre des hautes résolutions, la pointe doit être suffisamment dure pour ne pas se déformer et avoir à l'extrémité une courbure la plus petite possible. Les pointes et les cantilevers les plus couramment utilisés sont en nitrure de silicium  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ou en silicium. La fréquence de résonance du cantilever doit être suffisamment haute pour être peu sensible au balayage piezo-électrique et aux vibrations extérieures. Pour les modes oscillants, le cantilever doit avoir une grande raideur normale pour éviter les sauts au contact dans le mode non contact et pouvoir traverser la barrière de potentiel dans le cas du mode intermittent (tapping).

Les pointes de nitrure de silicium  $\text{Si}_3\text{N}_4$  sont utilisées dans le mode de fonctionnement du microscope en mode contact. Les pointes sont de forme pyramidale (figure II-11A), avec un angle d'ouverture de 35 degrés et un rayon de courbure à l'extrémité variant entre 30 et 50 nm.



**Figure III-11** : Les cantilevers AFM : A : les cantilevers en nitrure de silicium possédant une pointe pyramidale, B : les cantilevers en silicium de forme conique.

Les pointes de silicium sont généralement dopées. La haute conductivité du silicium dopé évite le chargement électrostatique des pointes. Elles ont des formes coniques dans la partie la plus mince, elle présentent un angle d'ouverture plus faible et un rayon de courbure plus petit (que celles en nitrure de silicium), afin d'avoir une meilleure résolution latérale. L'angle d'ouverture des pointes est moins de 20 degrés, le rayon de courbure est inférieur à



10 nm. Un exemple de pointe en silicium est présenté sur la figure III-11B. Ces pointes sont utilisées pour les modes vibrants.

D'autres pointes destinées à des applications plus spécifiques existent : des pointes métalliques afin de les rendre conductrices pour la microscopie de force électrostatique ou magnétiques pour la microscopie de force magnétique.

Les caractérisations physiques et mécaniques des cantilevers utilisés dans notre étude sont données dans le tableau suivant :

Les données techniques	Les valeurs typiques	La gamme typique
Epaisseur ( $\mu\text{m}$ )	4	3.5-4.5
Largeur moyenne ( $\mu\text{m}$ )	30	25-35
Longueur ( $\mu\text{m}$ )	125	120-130
La constante de raideur (N/m)	42	21-78
Fréquence de résonance (kHz)	330	260-410

*Tableau III-1 : Caractérisations physiques et mécaniques des cantilevers utilisés*

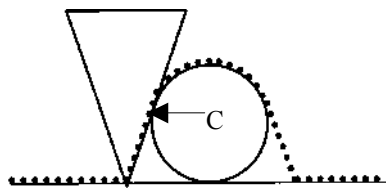
### **III-2-a-5. Mode de mesure de la déflexion du cantilever**

La mesure de la déflexion du cantilever s'effectue par la mesure de la déviation d'un faisceau lumineux émis par une diode laser et réfléchi par l'extrémité du cantilever. En pratique, on détermine la position de la tache laser grâce à une diode photoélectrique segmentée : la connaissance de l'éclairement reçu par les différents cadrans, pour une géométrie donnée, donne accès à la déflexion et à la torsion à l'extrémité du cantilever (figure III-9).

### **III-2-a-6. Etude de l'effet de pointe**

Dans le cas des images de microscopie à force atomique obtenues en mode tapping, à amplitude constante, la topographie de la surface est décrite [13]. A l'échelle mésoscopique c'est-à-dire entre une dizaine de nanomètres et un micromètre, en considérant des échantillons durs indéformables, la formation des images obtenues contient des dilatations causées par la dimension de la pointe [14,15]. Les images topographiques de microscopie à force atomique

doivent être interprétée comme une combinaison de la morphologie de la surface et de la géométrie de la pointe. Une illustration de cet effet de pointe peut être schématisée sur la figure III-12 où nous observons le trajet de la pointe au cours du balayage pour décrire par exemple un cluster d'or déposé sur une surface. Nous constatons que des informations de l'objet initial peuvent être complètement perdues par le mécanisme d'imagerie. En effet la pointe ne verra jamais la partie de la sphère en dessous du point de contact c (figure III-12).



**Figure III-12 :** Effet de la pointe sur le processus d'imagerie d'un cluster d'or déposé sur une surface.

Les travaux qui existent dans la littérature montrent que si la forme de la pointe est connue, l'image de microscopie à force atomique peut être partiellement corrigée par des programmes mathématiques basés sur le principe de dilatation qui essayent de reproduire une image assez proche de la surface réelle de l'échantillon [16]. Il faut noter que la connaissance exacte de la forme de la pointe et de son rayon de courbure sont difficiles à obtenir. Cependant, il existe des tentatives pour caractériser la forme et le rayon de courbure de la pointe. La microscopie électronique à transmission permet la détermination des caractéristiques de la pointe, cette technique est lourde à utiliser, de plus cette technique peut modifier la pointe. Actuellement il existe des méthodes mathématiques qui permettent à partir des images de microscopie à force atomique d'extraire la forme de la pointe en utilisant des surfaces spécifiques à imager [17].

Il est à remarquer qu'à petite échelle on ne peut plus considérer les matériaux constituant la pointe et l'échantillon comme indéformable. L'existence des images avec des résolutions atomiques enregistrées en mode contact (exemple du mica) peut apparaître paradoxale. Comment une pointe avec un rayon de contact que l'on peut estimer de l'ordre du

nanomètre arrive à imager des atomes distant du dixième de cette valeur ? En fait le mécanisme d'imagerie à cette échelle semble différent de celui d'un palpeur que nous avons décrit plus haut. La présence d'un frottement saccadé à l'échelle de la maille du cristal serait responsable de la périodicité des contrastes observés.

### **III-2-a-7. Préparation des échantillons pour la microscopie à force atomique**

Comme toutes techniques instrumentales destinées aux études de surface, la qualité des résultats et des images obtenues par microscopie, réside dans l'état de surface de l'échantillon à analyser. La microscopie à force atomique (AFM) plus que toutes autres techniques est extrêmement dépendante de cet état de surface. Un bon état de surface peut s'obtenir par des traitements de surface appropriés comme des recuits en température et en atmosphère contrôlées.

Dans notre étude nous avons utilisé trois isolants  $Y_3Fe_5O_{12}$ ,  $CaF_2$ ,  $Al_2O_3$ .

**$Y_3Fe_5O_{12}$**  : n'a nécessité aucun traitement de surface, il présente une surface plane facile à observer par microscopie à force atomique.

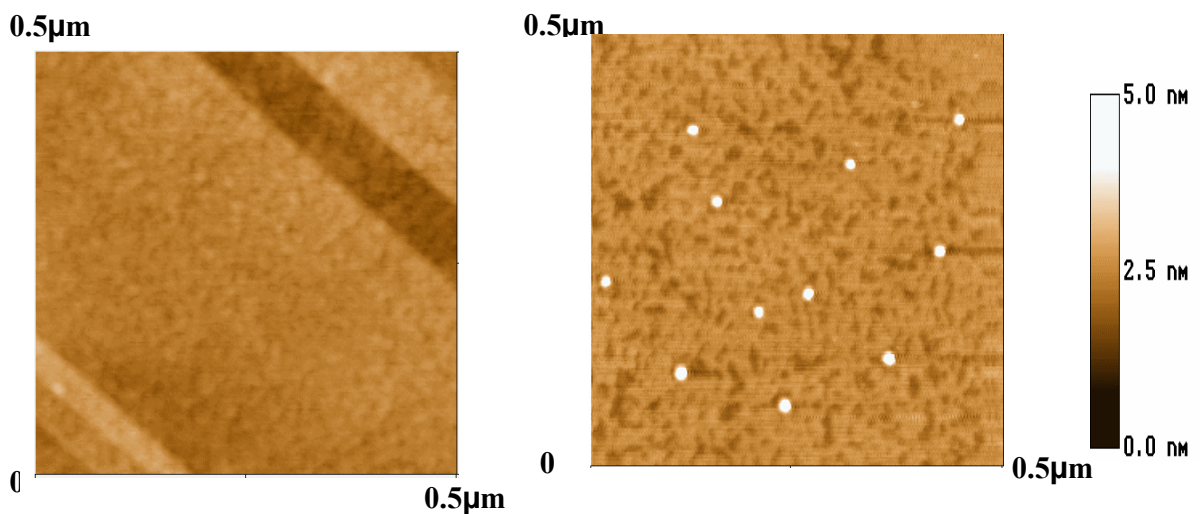
**$CaF_2$**  : Pour l'étude de la microscopie à force atomique, nous avons utilisé des échantillons clivés le long de l'axe (111), parfois ces échantillons ont subi un traitement par ultrasons afin d'avoir des surfaces propres.

**$Al_2O_3$**  : Nous avons utilisé des échantillons de saphir du type c (0001) dont les deux faces sont polies. Nous n'avons pas pu observer la surface des échantillons du saphir par AFM qui n'avaient pas subi un traitement thermique. Pour s'affranchir de cette difficulté les échantillons du saphir ont subi un recuit thermique à une température de  $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$  pendant 6 heures. Après ce traitement et l'utilisation des ultrasons, il était possible d'observer des surfaces propres du saphir.

*Le  $CaF_2$  a été pris comme exemple pour effectuer l'étude par microscopie à force atomique*

### III-2-a-8. Etude du $\text{CaF}_2$ irradié par microscopie à force atomique

En comparant un échantillon irradié du fluorure de calcium avec un échantillon vierge de fluorure de calcium (figure III-13), nous observons que sur le matériau irradié chaque tache blanche correspond à l'impact d'un ion projectile. Les images de microscopies à force atomique sont réalisées à amplitude de vibration du cantilever constante. L'image obtenue renseigne ainsi sur la topographie de l'échantillon. Le point blanc correspond à une bosse induite par le passage de l'ion incident.



**Figure III-13** : Image de  $\text{CaF}_2$  vierge (à gauche) et irradié (à droite) avec des ions xénon d'énergie de  $6.4 \text{ MeV/u}$  et une fluence de  $5 \times 10^9 \text{ ions/cm}^2$ .

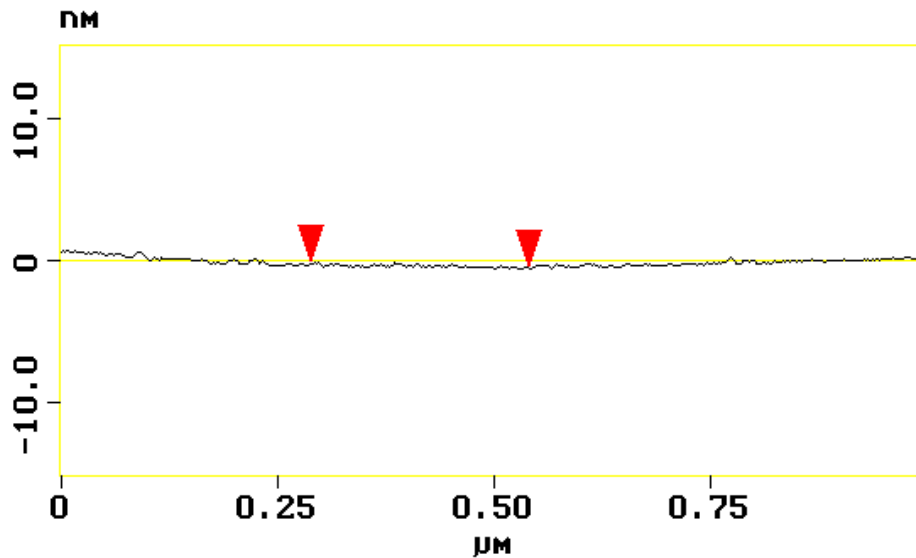
Les fluences utilisées lors de nos irradiations sont suffisamment faibles pour permettre la visualisation individuelle des traces induites par le passage des ions, c'est à dire sans recouvrement.

### III-2-a-9. Procédure à suivre pour l'obtention d'une image

Lors de notre étude nous avons utilisé les échantillons de fluorure de calcium  $\text{CaF}_2$  afin de caractériser notre microscope à force atomique. Le  $\text{CaF}_2$  présente un bon état de surface c'est à dire des surfaces planes avec une rugosité de l'ordre de  $0.2 \text{ nm}$  (figure III-14).

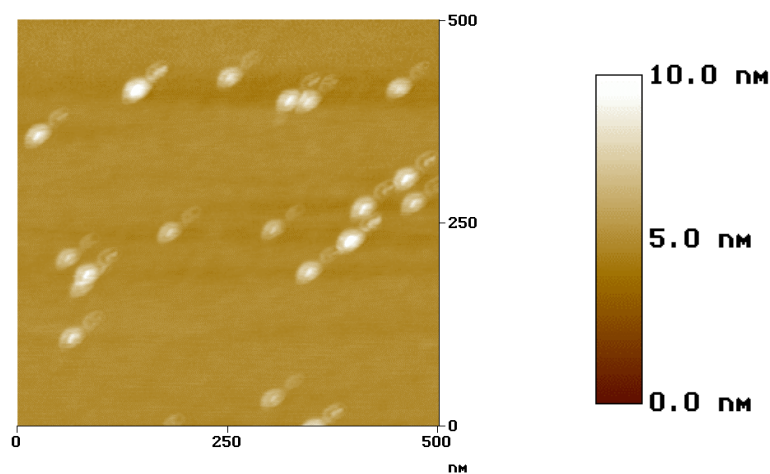
Les images ont été effectuées dans l'air avec le microscope Nanoscope III de Digital Instruments utilisé en tapping mode.

La qualité de l'image obtenue est fortement liée à la propreté de la surface, à la forme de la pointe ainsi qu'aux paramètres de fonctionnement du microscope. Dans ce qui suit, nous allons présenter l'effet de l'ensemble de ces paramètres sur les images obtenues.



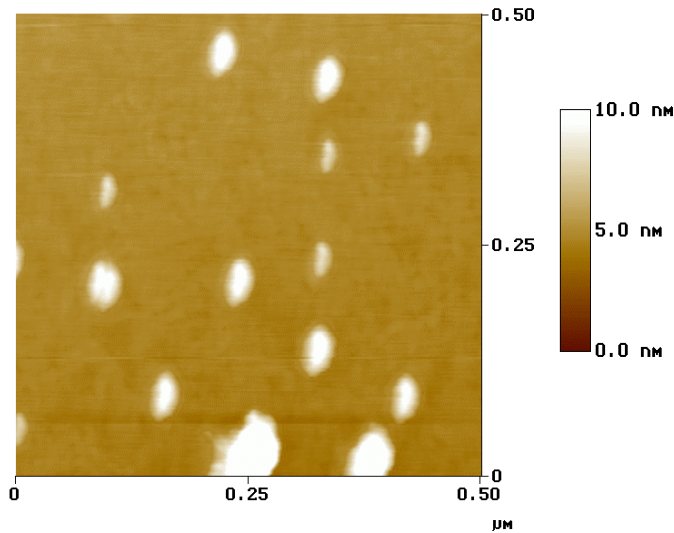
*Figure III-14 : le profil de surface du CaF<sub>2</sub> vierge*

Lorsque nous observons des objets dédoublés qui ont approximativement une forme triangulaire (figure III-15), ceci est dû au fait que la pointe est cassée, la preuve de ceci résulte du fait que le même échantillon imagé avec une autre pointe (figure III-13) présente des objets circulaires.

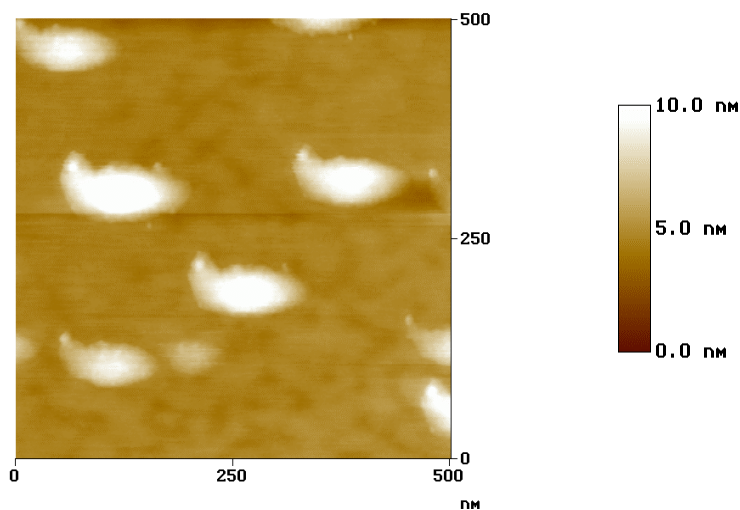


*Figure III-15 : CaF<sub>2</sub> irradié avec du xénon à une énergie de 6.4 MeV/u, une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>, imagée avec une pointe cassée.*

Parfois les images obtenues présentent les impacts avec des dimensions relativement grandes (figure III-16,17), nous pensons que cet effet est lié au rayon de courbure de la pointe qui est relativement grand, dans ce cas, la pointe n'est pas adaptée à notre mesure et nécessite d'être changée. Ces images montrent en réalité la nécessité d'avoir une bonne pointe.

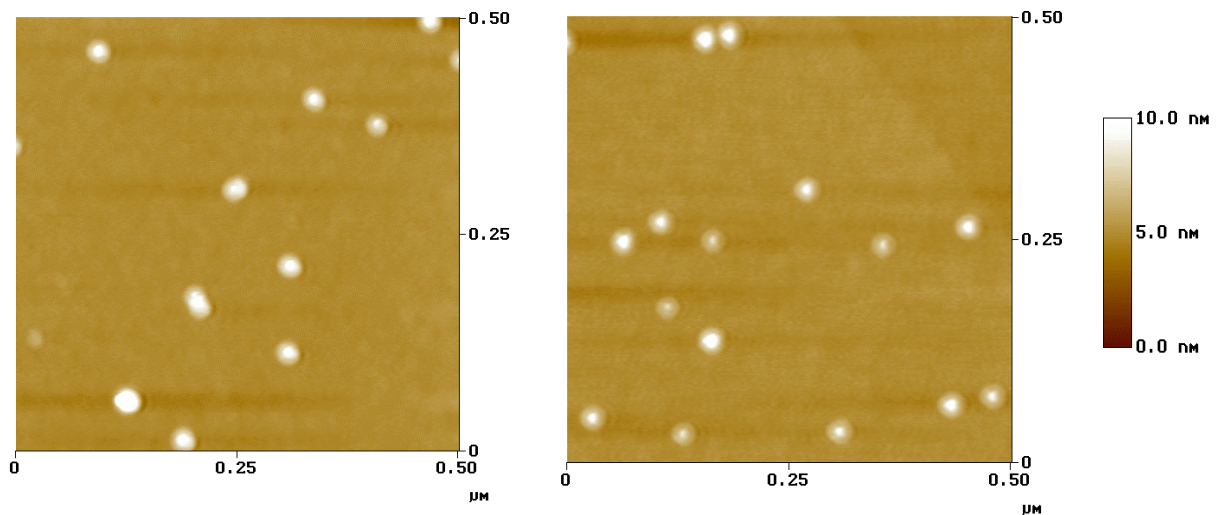


**Figure III-16** :  $\text{CaF}_2$  irradié avec du xénon à une énergie de 6.4 MeV/u, une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup> les impacts d'irradiations sont gros, ceci est lié au rayon de courbure de la pointe.



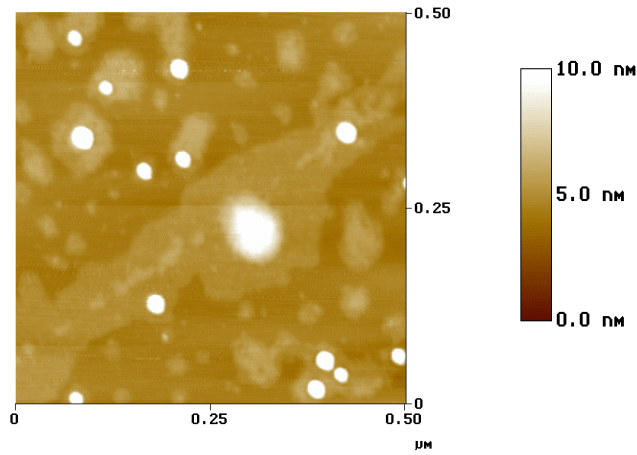
**Figure III-17** :  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions xénon à une énergie de 6.4 MeV/u, une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>, la forme des impacts d'ions est grande dû à l'effet de la pointe.

Une bonne pointe peut être utilisée toute une journée sans se casser, si elle n'accroche aucune impureté sur la surface de fluorure de calcium, les caractéristiques quantitatives des images restent pratiquement inchangés (figure III-18).

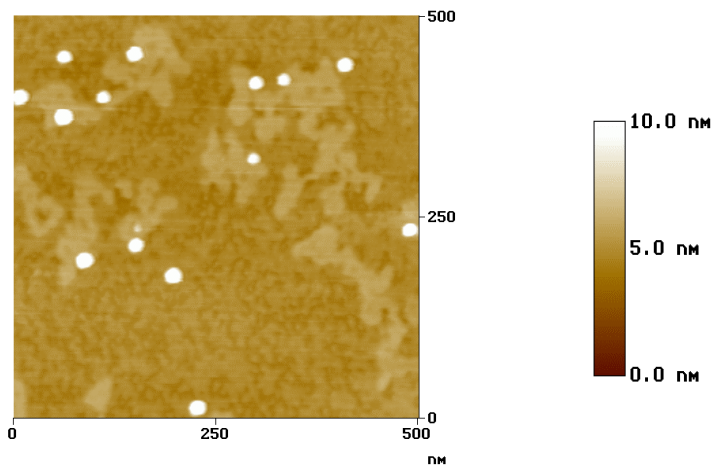


**Figure III-18 :** L'image à gauche présente l'image obtenue au début de la journée (9 heure du matin) et l'image à droite présente une image prise vers 18 h avec la même pointe qui a imagé l'échantillon pendant toute une journée, dans le cas du  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions xénon à une énergie de 6.4 MeV/u, une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>.

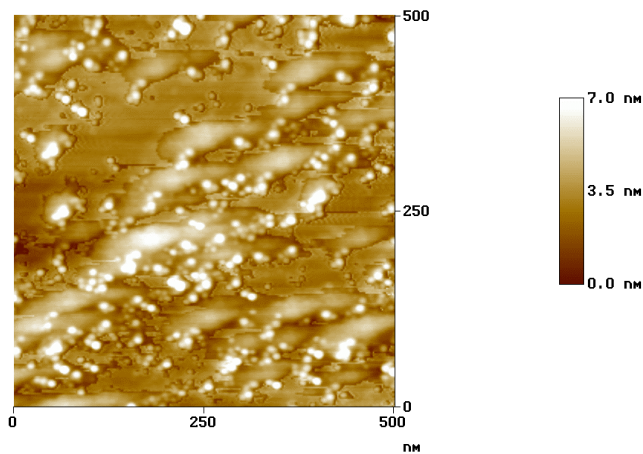
La nature et la propreté de la surface joue également sur la qualité de l'image. Comme nous observons sur la figure III-19, l'existence des petites tâches qui résulte de l'irradiation ainsi que de grosses tâches. Le nettoyage de cette surface par les ultrasons permet l'élimination de ces grosses tâches (figure III-20) qui sont probablement des poussières déposées sur la surface de l'échantillon. Parfois la surface de l'échantillon est tellement mauvaise que le lavage aux ultrasons ne change absolument rien à la qualité de l'image obtenue (figure III-21).



**Figure III-19** :  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions xénon à une énergie de 6.4 MeV/u, une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>, existence des impuretés sur la surface de l'échantillon



**Figure III-20** : La surface précédente après nettoyage par les ultrasons : élimination de la grosse tâche, dans le cas du  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions xénon à une énergie de 6.4 MeV/u, une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>.

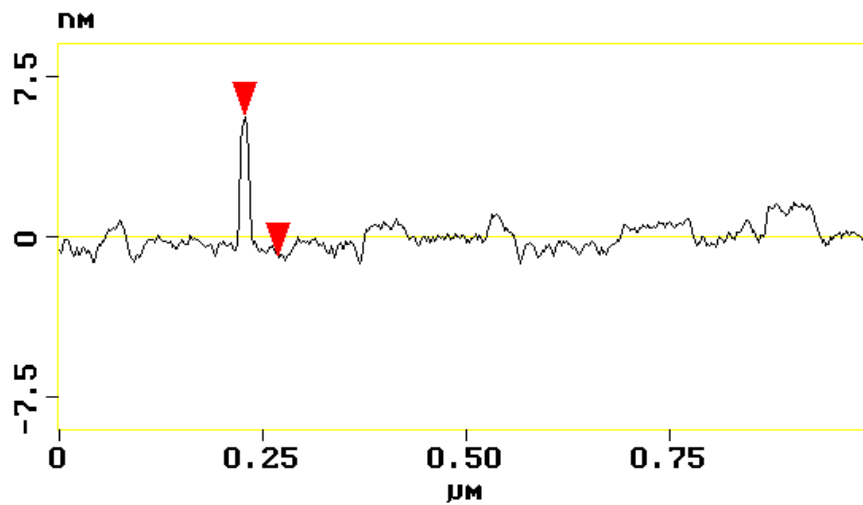


**Figure III-21** : Le nettoyage de la surface ne change rien.

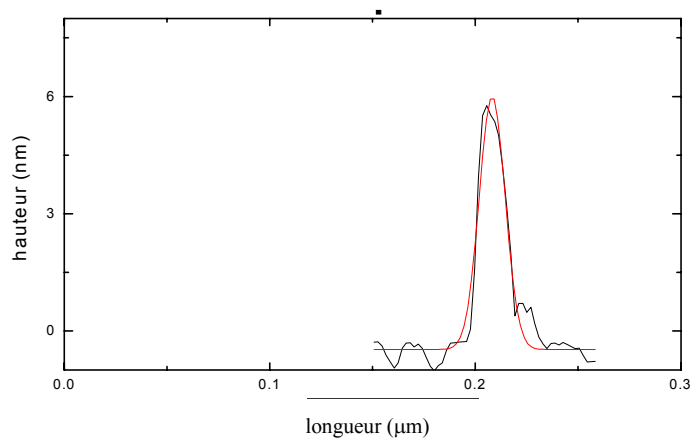


### III-2-a-10. Extraction des données

La caractérisation des traces occasionnées par l'irradiation est effectuée par l'analyse du nombre d'impacts par unité d'aire et par la distribution des hauteurs et des diamètres de ces traces. Cette dernière est obtenue en ajustant la forme de la bosse (figure III-22), par une gaussienne (figure III-23), qui permet d'extraire la hauteur et le diamètre qui correspond à la largeur à mi hauteur de la gaussienne.

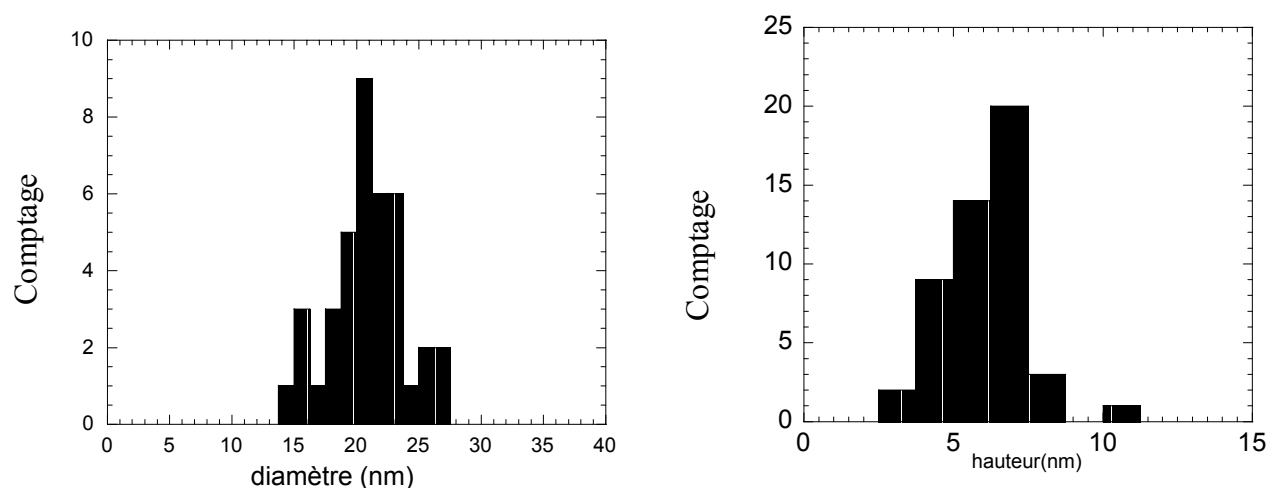


*Figure III-22 : profil de surface dans le cas d'un impact résultant de l'irradiation du  $\text{CaF}_2$  par du xénon à une énergie égale 6.4 MeV/u.*



*Figure III-23 : ajustement d'un impact par une gaussienne.*

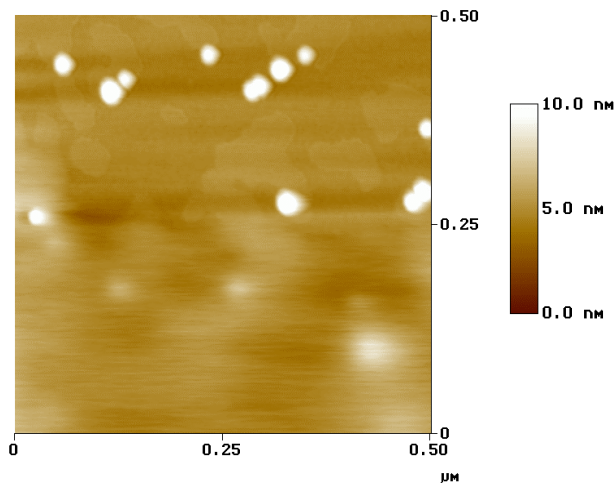
Dans ce cas la distribution des hauteurs et des diamètres (figure III-24) permet d'extraire les valeurs suivantes :  $d = 20.8 \pm 2.9$  nm et  $h = 6.0 \pm 0.6$  nm. L'erreur présente la déviation standard.



**Figure III-24 :** Distribution des diamètres et des hauteurs des bosses dans le cas d'irradiation avec du Xe à une énergie de 6.4 MeV/u et une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm.<sup>2</sup>

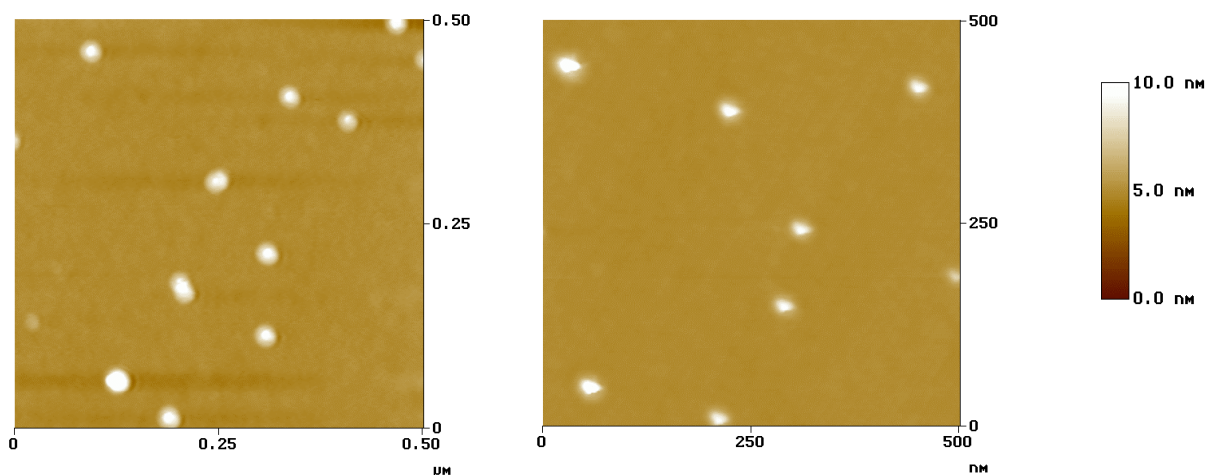
### III-2-a-11. Influence des paramètres de fonctionnement du microscope sur les caractéristiques des bosses

Comme il a été décrit plus haut, dans le mode tapping, le cantilever vibre librement à une amplitude donnée et une fréquence légèrement inférieure à sa fréquence de résonance. Quand la pointe approche la surface à sonder, l'amortissement de l'amplitude d'oscillation est maintenue à la valeur minimum qui permet d'obtenir une image stable de la surface. Comme nous pouvons constater sur cette image (figure III-25), la valeur du set point utilisée (la valeur du set point correspond à l'amplitude de vibration de la pointe, quand celle-ci touche la surface) assez faible, c'est pour cela que la pointe ne touche plus la surface après un certain nombre de balayage.



**Figure III-25 :** Utilisation d'une valeur du set point qui n'est pas assez faible pour faire l'image.

Afin d'étudier l'effet du set point sur les caractéristiques des bosses nous avons fait varier ce paramètre entre la valeur qui permet d'obtenir une image stable 1.8 V et la valeur de 0.4 V. Les images obtenues sont présentées sur la figure III-26. Nous ne raisonnons que sur la hauteur car nous savons que la largeur des bosses est affectée par le rayon de courbure de la pointe. Le tableau III-1 résume les résultats obtenus (la relation de calibration du piezo z est  $\Delta z/\Delta v=9\text{nm/V}$ ).



**Figure III-26 :** Effet de la variation du set point sur l'image. L'image à gauche a été prise avec un set point = 1.8 V, alors que l'image droite a été prise avec un set point = 0.4 V.

La valeur du set point (V)	La hauteur (nm)
1.8	6.8±1.6
1.6	6.9±0.9
1.2	6.6±0.8
0.6	5.88±1.7
0.4	5.52±1.6

**Tableau III-2 :** *L'influence de la variation de la hauteur de la bosse en fonction du set point.*

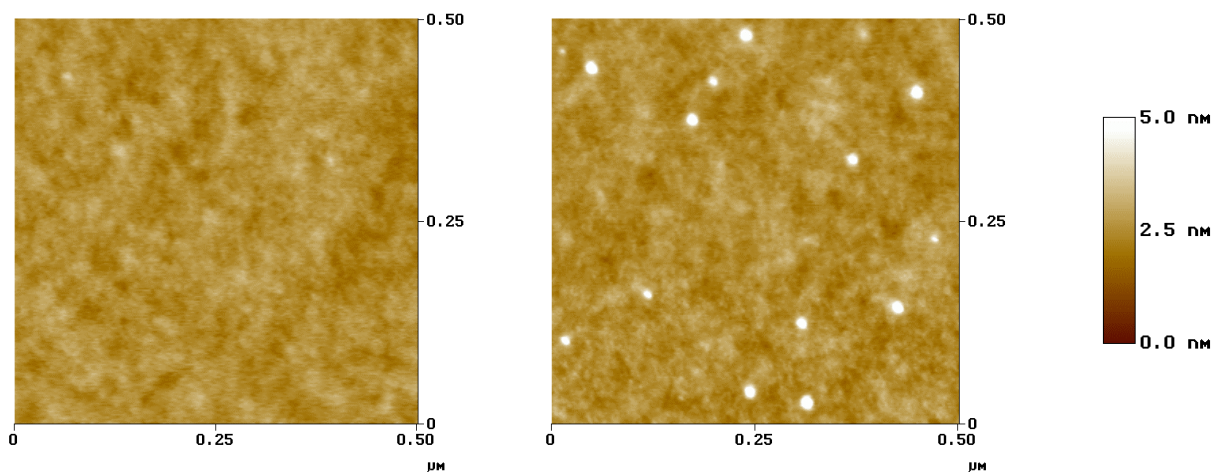
Nous constatons qu'une variation du set point de 80% induit une variation de la hauteur de 20%. Cette variation est du même ordre de grandeur que la dispersion des mesures de la hauteur. Nous pouvons conclure que la valeur du set point n'influe pas significativement sur les valeurs des hauteurs des bosses. De plus pour la valeur du set point de 0.4 V, la forme des impacts n'est plus circulaire, d'où la nécessité d'utiliser la valeur du set point la plus grande possible pour obtenir une image stable.

### **III-2-a-12. Calibration du microscope en mode tapping par des clusters d'or**

Les clusters d'or déposés sur une surface plane, fournissent le matériau idéal de calibration. L'image de microscopie à force atomique de ces clusters d'or, permet la mesure de leur hauteur.

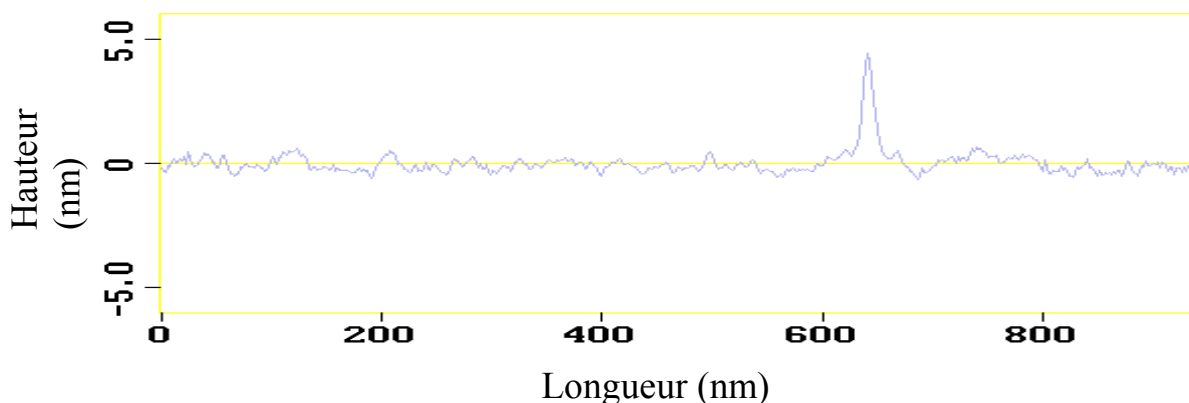
Nous avons utilisé des clusters d'or déposés sur une surface de SiO<sub>2</sub> amorphe fournis par l'équipe russe de Baranov (*Institut de V.G. Khlopin Radium, St. Petersburg (Russia)*). La microscopie électronique à transmission a permis de déterminer leur diamètre qui est égal à (4.4±1.3) nm. Le choix de cette dimension des clusters d'or n'est pas arbitraire. En fait on trouve dans la littérature des diamètres de traces dans le volume du matériau qui sont de cet ordre de grandeur.

Les résultats de microscopie à force atomique en tapping mode sont présentés sur la figure III-27.



**Figure III-27 :** L'image de gauche présente une surface du  $\text{SiO}_2$  amorphe vierge, celle de droite présente la même surface sur laquelle des clusters d'or ont été déposés (tâches blanches).

Chaque cluster a été ajusté par une gaussienne comme dans le cas des impacts des ions lourds. La figure III-28 présente une section du profil d'un cluster d'or.



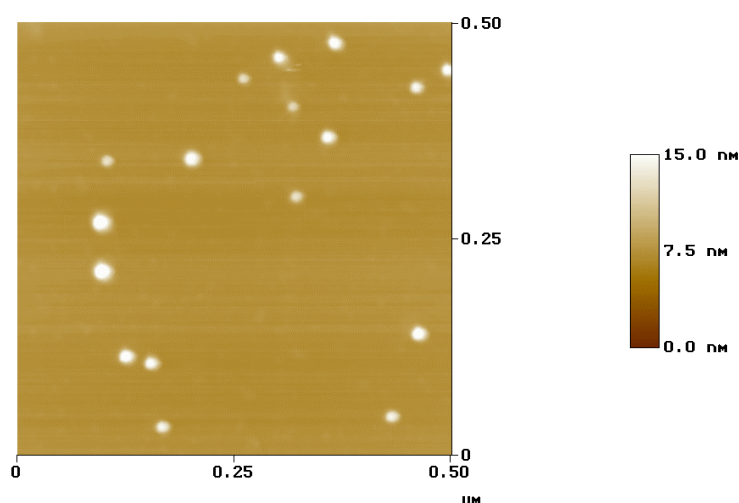
**Figure III-28 :** Profil d'un cluster d'or

La hauteur moyenne des clusters d'or est égale à  $(5.0 \pm 0.9)$  nm, la largeur à mi hauteur fluctue entre 13.5 nm et 18 nm. L'exemple des clusters d'or illustre la dilatation des images de microscopie à force atomique (AFM), c'est-à-dire l'élargissement des clusters d'or par AFM. Cet exemple montre bien que la hauteur déterminée par AFM est, aux erreurs expérimentales près, la même que le diamètre déterminé par microscopie électronique à transmission en supposant que les clusters d'or sont sphériques.

### III-2-a-13. Comparaison de la hauteur des bosses en utilisant différents modes de fonctionnement d'AFM

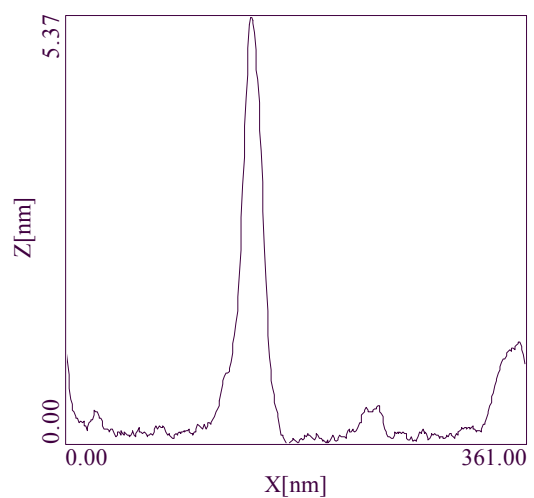
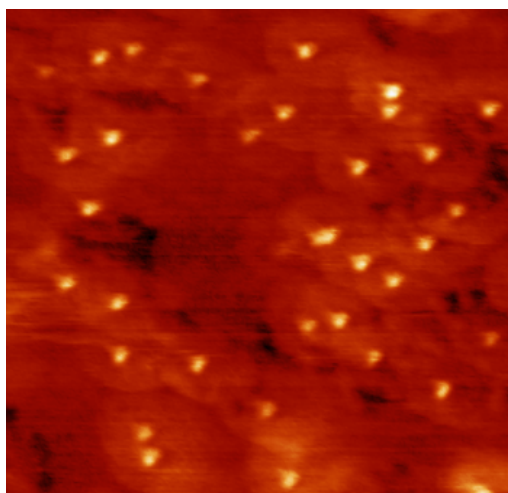
Nous avons utilisé la microscopie à force atomique dans différents modes et dans différents milieux afin de comparer seulement les hauteurs des bosses créées par les ions lourds. La largeur des bosses imagée par microscopie à force atomique dépend fortement de la pointe et du mode de fonctionnement du microscope utilisés. Pour réaliser cette étude, nous avons utilisé un échantillon irradié au bismuth à une énergie de 11.1 MeV/u et une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>.

L'image réalisée en mode tapping dans l'air est présentée sur la figure III-29. L'analyse des hauteurs donne une valeur moyenne de  $(11.2 \pm 2.3)$  nm.

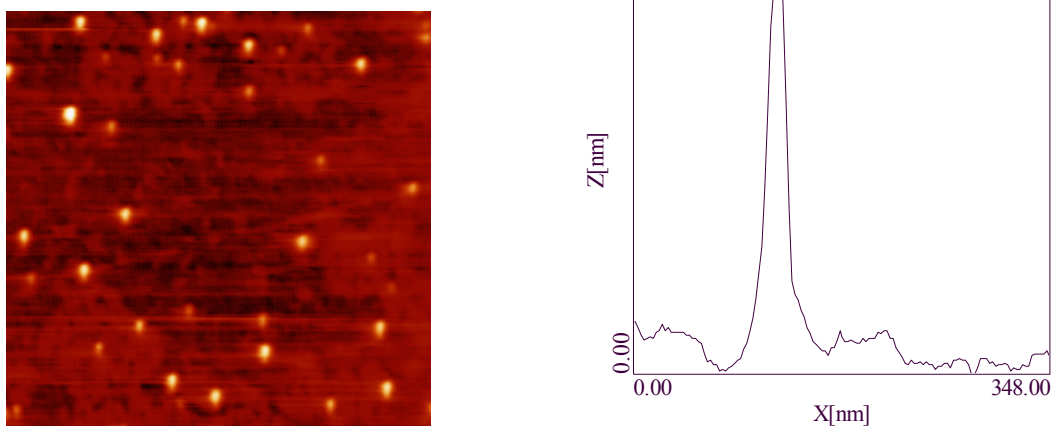


**Figure III-29** : image de surface du  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions de bismuth à une énergie de 11.1 MeV/u et une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>, dans l'air en mode tapping.

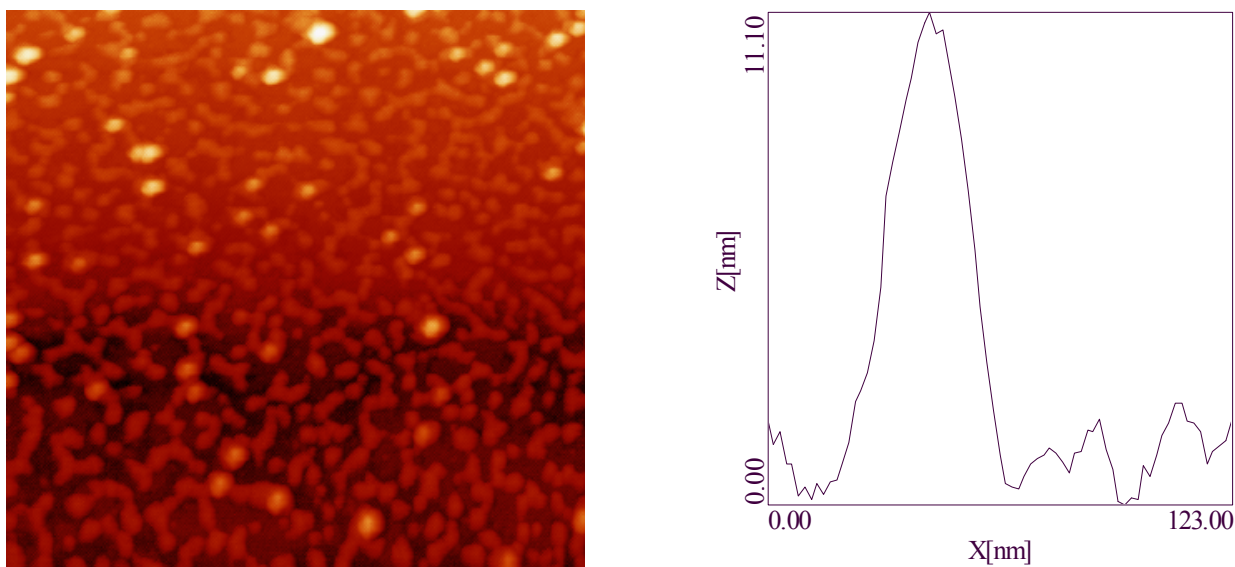
Les autres mesures en mode contact dans l'air et sous vide ainsi que des mesures en mode non contact sous vide ont été effectuées à l'université d'Osnabrück en Allemagne (avec le groupe de la physique des surfaces). Les mesures en mode contact du même échantillon dans l'air en utilisant une force normale de 1nN, donne une hauteur moyenne de  $(4.7 \pm 1.5)$  nm (figure III-30). Les mesures effectuées sous vide de l'ordre de  $4 \times 10^{-7}$  mbar ont donné en mode contact, une hauteur moyenne égale à  $(9 \pm 1)$  nm (figure III-31) et en mode non contact une hauteur moyenne de  $(10 \pm 2)$  nm (figure III-32).



**Figure III-30** :L'image AFM sur la gauche de dimension  $(800 \times 800)$  nm<sup>2</sup>, présente une surface du CaF<sub>2</sub> irradié avec des ions de bismuth à une énergie de 11.1 MeV/u et une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>, dans l'air en mode contact. La figure sur la droite présente une section d'un impact



**Figure III-31** : L' image AFM sur la gauche de dimension  $(720 \times 720) \text{ nm}^2$ , présente une surface du  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions de bismuth à une énergie de  $11.1 \text{ MeV/u}$  et une fluence de  $5 \times 10^9 \text{ ions/cm}^2$ , sous vide en mode contact. La figure sur la droite présente une section d'un impact



**Figure III-32** : L'image AFM sur la gauche de dimension  $(740 \times 740) \text{ nm}^2$ , présente une surface du  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions de bismuth à une énergie de  $11.1 \text{ MeV/u}$  et une fluence de  $5 \times 10^9 \text{ ions/cm}^2$ , sous vide en mode non contact. La figure sur la droite présente une section d'un impact



Nous constatons que les mesures de la hauteur des bosses, en mode tapping dans l'air, en mode contact sous vide et en mode non contact sous vide se recouvrent et donnent approximativement aux erreurs statistiques près la même hauteur, par contre en mode contact dans l'air la hauteur des bosses, est plus petite d'un facteur 2. Nous pensons que cette différence est liée à la couche d'eau qui se trouve sur la surface d'échantillon car c'est la seule différence qui existe entre la mesure en mode contact dans l'air et dans le vide.

### III-2-a-14. La courbe « Diamètre-hauteur »

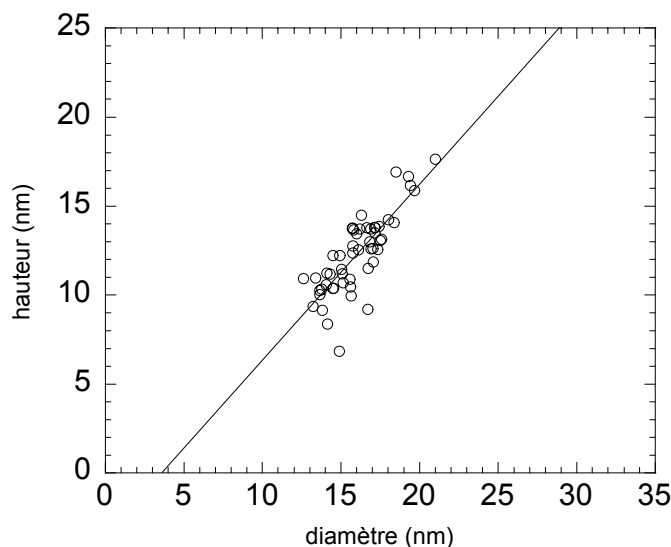
Nous avons tracé la hauteur en fonction du diamètre (figure III-33). Nous constatons que nous n'avons pas un nuage de points comme on s'attendait, mais une forte corrélation entre le diamètre et la hauteur. En utilisant la relation suivante  $\rho = \frac{E(x,y) - E(x).E(y)}{\sqrt{Var(x).Var(y)}}$  nous pouvons calculer le coefficient de corrélation  $\rho$ .

$E(x,y)$  présente la moyenne de la variable  $x,y$

$E(x)$  et  $E(y)$  représentent respectivement la moyenne de la variable  $x$  et  $y$

$Var(x)$  et  $Var(y)$  représentent respectivement la variance de la variable  $x$  et  $y$

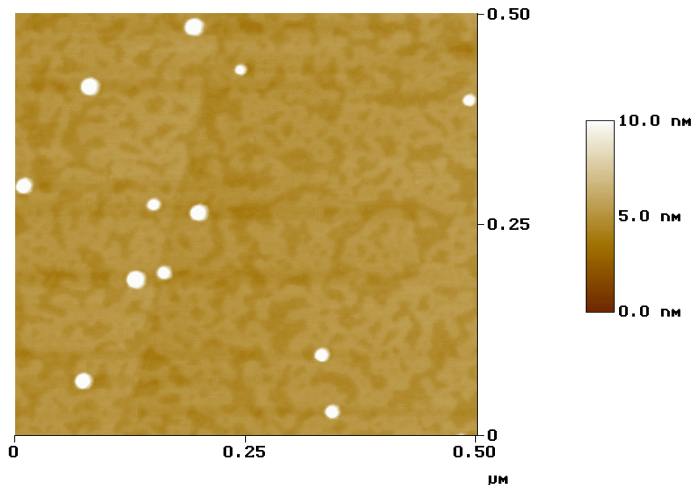
Dans notre cas  $y$  présente la hauteur et  $x$  présente le diamètre.



**Figure III-33** : Présentation de la hauteur en fonction en fonction du diamètre dans le cas d'irradiation d'une surface de  $\text{CaF}_2$  avec des ions plomb à une énergie égale à 4.6 MeV/u et une fluence égale à de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>.

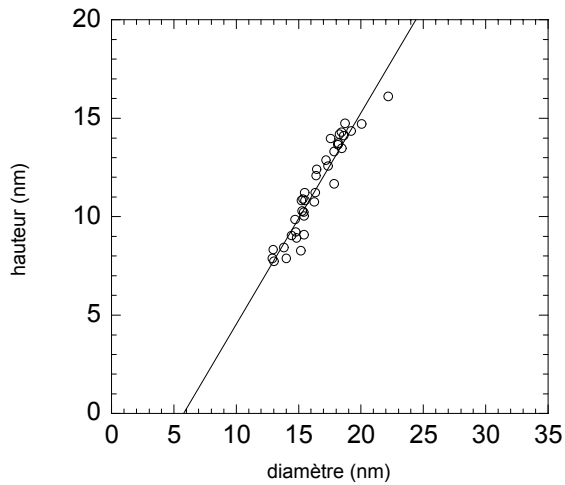
Nous obtenons pour la figure III-33, une valeur du coefficient de corrélation égale à 0.8, ce qui confirme une bonne corrélation entre le diamètre et la hauteur. De plus ce type de courbe, nous permet d'extraire le rayon de courbure de la pointe qui est obtenu à partir de l'intersection de la droite (qui ajuste les points) avec l'axe de diamètre.

A notre connaissance, dans le domaine d' irradiations des matériaux, nous n'avons pas trouvé ce type de courbe dans la littérature. Nous avons tenté de trouver l'origine de cette corrélation. Nous avons supposé que cette corrélation est peut être liée à la distribution de charge du faisceau d'ions car nous n'utilisons pas un seul état de charge, dû au fait de la présence du détecteur à électrons secondaires qui nous permet de mesurer la fluence. Ce dernier peut également introduire un effet de straggling. Pour tester la validité de cette hypothèse, nous avons effectué des irradiations avec des ions de plomb d'énergie de 5 MeV/u avec et sans détecteur plein. Dans une première irradiation nous avons enlevé le détecteur plein. Nous avons utilisé un état de charge  $55^+$  délivré par la source d'ion. Le résultat de l'irradiation est présenté sur la figure III-34.



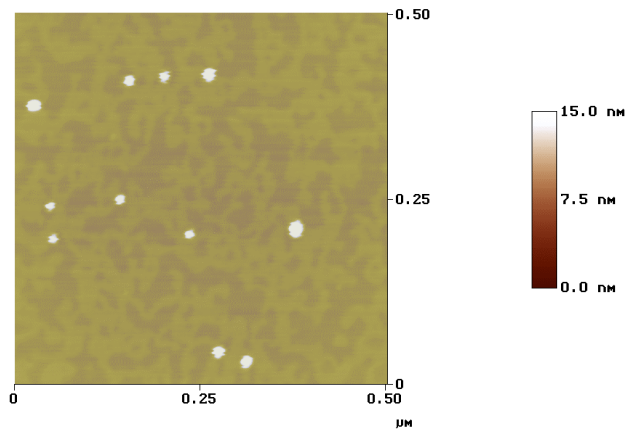
**Figure III-34** : Image AFM du  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions plomb à 5 MeV/u, avec l'état de charge  $55^+$  et une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>.

La courbe hauteur –diamètre est présenté sur la figure III-35.



**Figure III-35 :** Courbe de corrélation entre le diamètre et la hauteur dans le cas de l'irradiation avec des ions plomb à 5 MeV/u avec l'état de charge  $55^+$  et une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>.

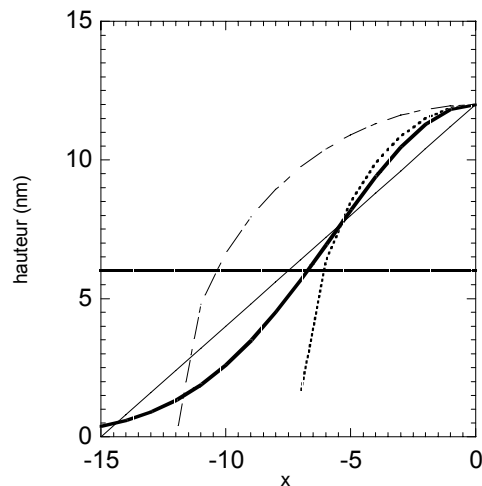
L'irradiation du CaF<sub>2</sub> avec des ions de plomb ayant une distribution de charge moyenne de charge de  $55^+$  c'est à dire avec la présence du détecteur à électrons secondaires est présenté sur la figure III-36. La courbe de corrélation hauteur diamètre est présentée sur la figure III-33. De ces deux irradiations nous pouvons affirmer que cette corrélation entre le diamètre et la hauteur ne peut être attribuée ni à la distribution de charge du faisceau incident ni au stragging du faisceau.



**Figure III-36** : image AFM du  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions plomb à  $E=4.6 \text{ MeV/u}$ , avec une fluence de  $5 \times 10^9 \text{ ions/cm}^2$  en utilisant le détecteur à électrons secondaires.

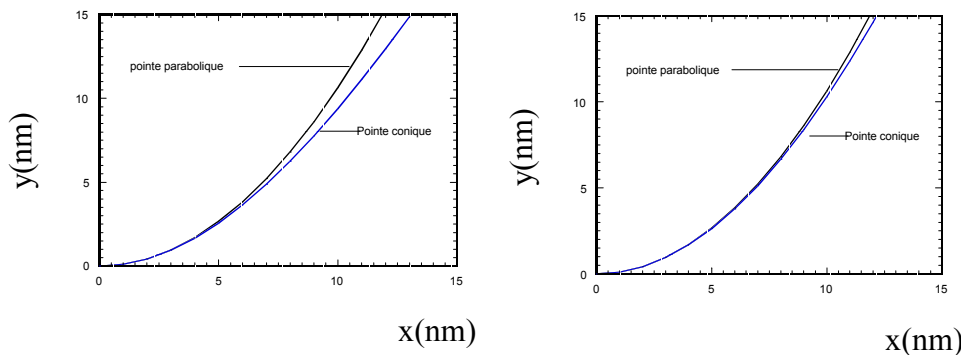
### III-2-a-15. Correction des diamètres des bosses

Comme il a été mentionné plus haut, dans la littérature on peut trouver différents programmes mathématiques qui tentent d'éliminer l'effet de la pointe afin de se rapprocher le plus possible de la surface réelle. Dans notre cas nous avons utilisé une méthode géométrique graphique afin d'éliminer l'élargissement des bosses dû à l'effet de la pointe. Ceci impose que la pointe et l'échantillon soient des objets indéformables. Nous avons supposé que la forme initiale des bosses peut être décrite par un demi-cercle, un triangle, une demi-ellipse, et une gaussienne (figure III-37). Cette forme initiale de la bosse est dilatée par le processus d'imagerie de la pointe.



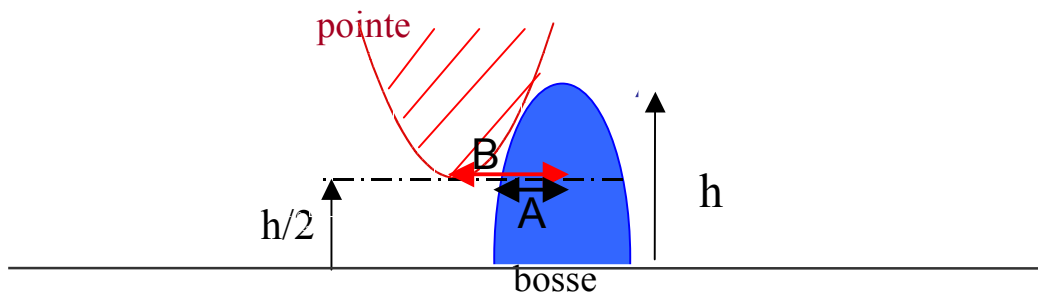
**Figure III-37 :** Les différentes formes géométriques présentent la moitié d'une bosse de hauteur =12 nm, dans le cas où la forme initiale est un demi cercle (les traits discontinus), un triangle (la ligne continue), une gaussienne (la ligne continue épaisse) voire une demi ellipse (la ligne en pointillée). La droite horizontale présente la demi hauteur de la bosse.

Nous avons constaté que l'utilisation d'une pointe parabolique d'équation  $y=1/(2*R_c)*x^2$  (où  $R_c$  est le rayon de courbure de la pointe) ou d'une pointe conique d'équation  $y = \cot g\theta(\sqrt{R_c^2(\cot g\theta)^2 + x^2} - R_c \cot g\theta)$  (où  $\theta$  est l'angle d'ouverture du cône, il est compris entre  $20^\circ$  et  $10^\circ$ ), donne dans notre cas des pointes de géométrie très proches (figure III-38). Pour cette raison, pour l'élimination de l'effet de pointe, nous avons utilisé des pointes paraboliques



**Figure III-38 :** Comparaison entre la pointe conique et parabolique de rayon  $R_c = 6.2$  nm, à gauche la pointe conique a un demi angle de  $20^\circ$ , à droite le demi angle de la pointe conique est  $10^\circ$ .

Le but a été d'essayer de reproduire les courbes de corrélation diamètre-hauteur. Comme exemple, nous prenons le cas de l'irradiation du  $\text{CaF}_2$  avec des ions de Bismuth d'énergie de 11.4 MeV/u. Pour chaque forme géométrique de la bosse, nous avons utilisé les hauteurs suivantes : 6, 8, 10, 12 nm. Dans le cas d'une forme demie circulaire, le rayon du cercle correspond à la hauteur (figure III-37). Le processus de dilatation d'une bosse par une pointe parabolique est présenté sur la figure III-39.

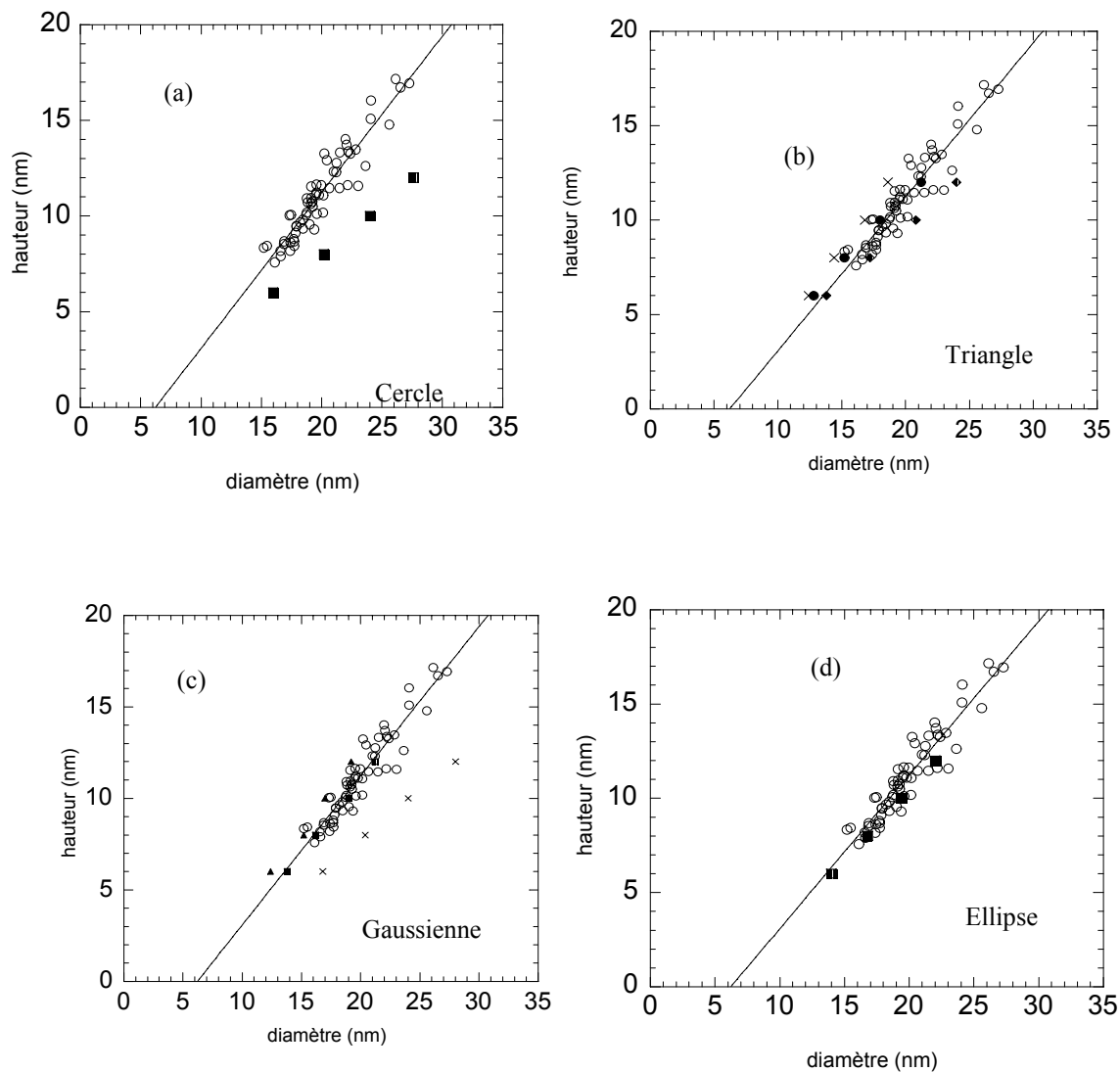


**Figure III-39 :** Présentation schématique d'une bosse et d'une pointe parabolique.. La distance A présente la demi largeur à mi hauteur de la bosse sans effet de pointe. La distance B présente la demi largeur à mi hauteur de la bosse mesurée par la pointe.

Dans le cas d'une forme circulaire, nous avons présenté pour chaque hauteur, la largeur à mi hauteur mesuré par AFM, sur la figure III-40-(a). Nous constatons que cette forme géométrique ne permet pas de reproduire la courbe hauteur-diamètre. Pour les trois autres formes, nous avons remarqué que l'allure de la courbe de corrélation, ne peut être reproduite que lorsque nous supposons une relation linéaire entre la hauteur et le diamètre réel de l'objet. Cette relation est de la forme : hauteur =  $\alpha$ \*diamètre réel,  $\alpha$  est une constante. Le diamètre réel représente dans notre cas la largeur à mi hauteur de la forme considérée. Pour chaque motif géométrique et pour les différentes hauteurs données plus haut, nous avons cherché à déterminer la constante  $\alpha$  qui permet aux diamètres dilatés par la pointe (figure III-39), de coïncider avec la droite qui ajuste les points (hauteur,diamètre) déterminés par AFM. Le résultat de la simulation est présenté sur la figure III-40-(b,c,d). La valeur de la constante

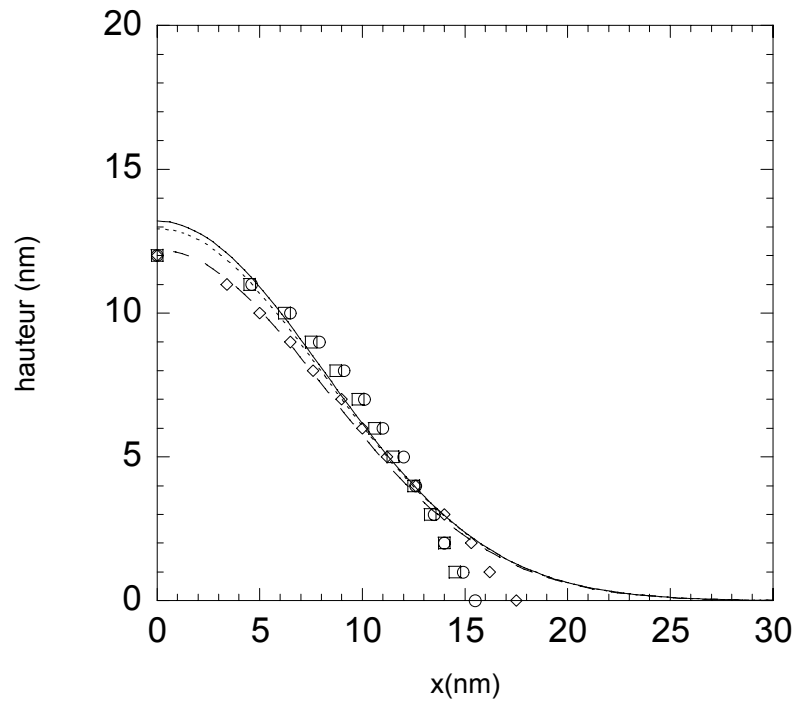
$\alpha$  correspondant au mieux à une forme gaussienne, triangulaire et elliptique est respectivement égale à 0.89, 0.8, 0.98.

Nous avons présenté sur la figure III-41, la forme de la gaussienne, du triangle et de la demi ellipse de hauteur = 12 nm (présentées sur la figure III-37), après le processus de dilatation par la pointe. Nous remarquons que les trois différentes formes peuvent être ajustées par des gaussiennes. Ce résultat ne nous a pas permis de trancher concernant la forme initiale de la bosse. En général, la forme gaussienne est l'allure la plus proche de la réalité. Dans la suite de ce travail, l'élimination de l'effet de pointe, se fera en supposant une forme initiale gaussienne de la bosse.



**Figure III-40** : Procédure graphique d'élimination de l'effet de rayon de courbure de la pointe dans le cas d'une irradiation avec des ions de bismuth d'énergie de 11.4 MeV/u et une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>. (a) les carrés présentent le résultat de simulation, (b) les croix, les cercles et les losanges présentent le résultat de la simulation pour les valeurs respectives de  $\alpha = 1, 0.8$  et  $0.6$ , (c) les triangles, les carrés et les croix présentent le résultat de la simulation pour les valeurs respectives de  $\alpha = 1.3, 0.89$  et  $0.51$ , (d) les carrés présentent le résultat de la simulation pour  $\alpha = 0.98$ .





**Figure III-41** : Résultat de la dilatation d'une gaussienne (les carrés), d'un triangle (les losange) et d'une demi ellipse (les cercles) de hauteur données dans la figure III-37, par une pointe parabolique de rayon 6.2 nm. Le trait plein, le trait en pointillé et le trait discontinu présentent le résultat d'ajustement respectivement, des points circulaires, carrés et les losanges par des gaussiennes.

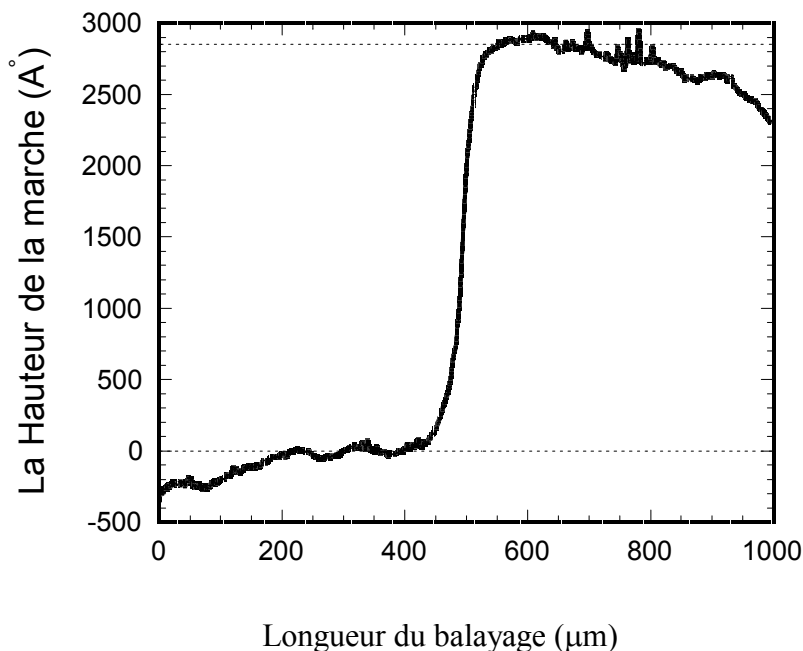
Dans le cas de cette irradiation avec des ions de bismuth à une énergie de 11.4MeV/u, le diamètre obtenu sans élimination de l'effet de pointe est de  $(19.8 \pm 2.6)$  nm, alors que cette technique d'élimination de l'effet de pointe permet d'obtenir une valeur du diamètre réel de  $(12.5 \pm 2.6)$  nm

### III-2-b. La profilométrie de surface

Les profilomètres sont des outils précis et facile à utiliser pour les mesures de hauteur. Depuis l'introduction du premier profilomètre Dektak en 1968, des centaines de profilomètres ont été utilisés pour mesurer l'épaisseur des films dans plusieurs domaines.

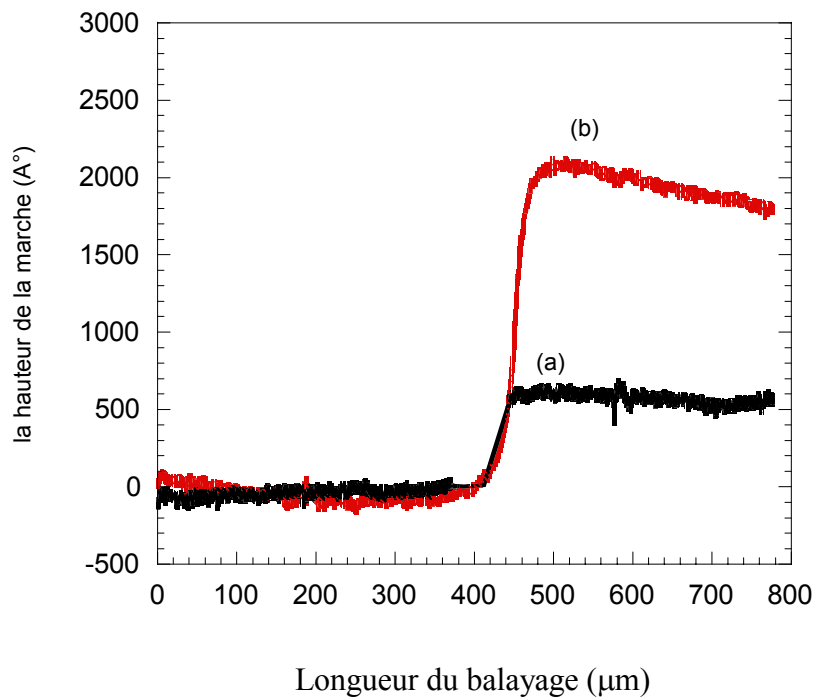
Les échantillons du saphir utilisés pour l'étude de gonflements étaient des échantillons polis qui ont subi le même traitement thermique que les échantillons utilisés pour l'AFM. La moitié de ces échantillons a été masquée, dans le but de la comparer avec la partie irradiée.

L'analyse des échantillons a été effectuée à GSI, en utilisant le profilomètre Dektak 8000. L'échantillon est placé sur un plateau mobile. Un moteur est utilisé pour déplacer un stylet en diamant en ligne droite sur l'interface de la partie irradiée et non irradiée. Ce stylet a un rayon de courbure de 10  $\mu\text{m}$ . Le mouvement vertical du stylet est enregistré, il renseigne sur la topographie de la surface étudiée. Les balayages effectués ont des longueurs de plusieurs centaines de micromètres (figure III-42).



**Figure III-42** : la hauteur de la marche dans le cas d'irradiation du saphir avec des ions de plomb d'énergie de 4.6 MeV/u et une fluence de  $2.5 \times 10^{12}$  ions / $\text{cm}^2$ .

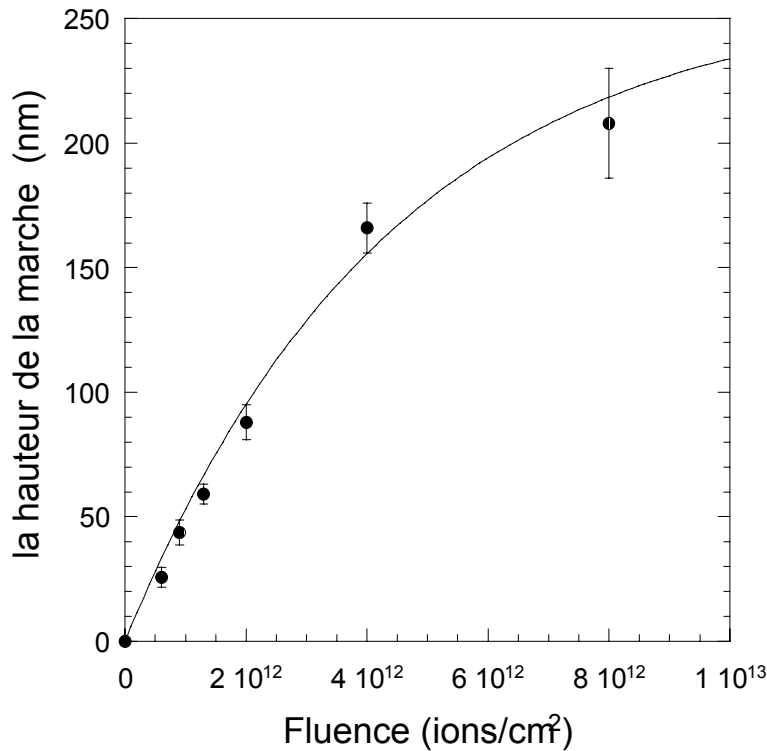
La hauteur de la marche (figure III-42) est déterminée à partir des différents balayages d'un même échantillon, ce qui permis de déterminer une hauteur moyenne de la marche ainsi que la barre d'erreur qui lui est associée. Cette hauteur de la marche dépend de la fluence utilisée (figure III-43).



**Figure III-42 :** Variation de la hauteur de marche en variant la fluence dans le cas d'irradiation avec des ions xénon dans le saphir à une énergie de 3.25MeV/u, fluence (a)  $1.3 \times 10^{12}$  ions /cm<sup>2</sup>, (b)  $8 \times 10^{12}$  ions /cm<sup>2</sup>.

La résolution verticale du profilomètre utilisé dans notre cas est d'une dizaine de nanomètres, en fait cette résolution dépend de la rugosité de la surface à étudier. La résolution latérale est de 0.5 µm.

L'évolution de la hauteur de marche en fonction de la fluence est présentée sur la figure III-43. Chaque point présente la hauteur moyenne de la marche extraite de plusieurs balayages. Après une augmentation initiale linéaire, le gonflement approche une saturation à grande fluence c'est à dire à des fluence supérieures ou égales à  $8 \times 10^{12}$  ions/cm<sup>2</sup>.

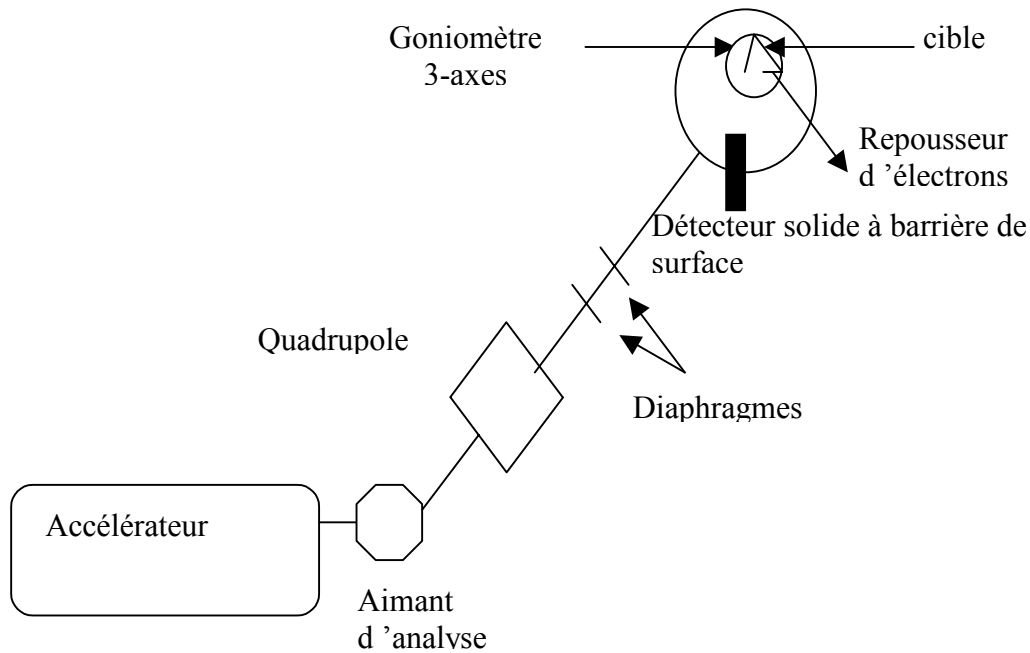


**Figure III-43** : Variation de la hauteur de la marche en fonction de la fluence dans le cas du saphir irradié avec du xénon à une énergie égale à 3.25MeV/u. La courbe présente un ajustement des points expérimentaux.

### III-2-c. Spectrométrie de Rétrodiffusion Rutherford en canalisation

Les mesures d'analyse de Rétrodiffusion Rutherford en canalisation (C-RBS) ont été effectuées au CRN, Centre de Recherche Nucléaire à Strasbourg dans le laboratoire Phase (Physique et Application des semiconducteurs). Le schéma du montage expérimental est présenté sur la figure III-44. Le faisceau de particules alpha ( $^4\text{He}^+$ ) est fourni par l'accélérateur Van de Graff d'énergie de 4 MV avec un courant de 2 nAe. A la sortie de l'accélérateur, les particules alpha sont déviées de  $15^\circ$  par un aimant d'analyse puis focalisées

par un quadrupole magnétique. La linéarité et la section du faisceau sont définies par des diaphragmes distants de 2 m et dont l'ouverture peut être de 0.5, 1, 2 ou 5 mm de diamètre. Le faisceau tombe ensuite sur un goniomètre 3 axes. La détection des particules rétrodiffusées est effectuée avec un détecteur à barrière de surface situé à 8 cm de la cible et à un angle de 135°. Après codage et amplification, l'acquisition et le traitement des données sont réalisées par ordinateur.



**Figure III-44 :** Montage expérimental de la C-RBS

### III-2- c-1. Mesure de canalisation

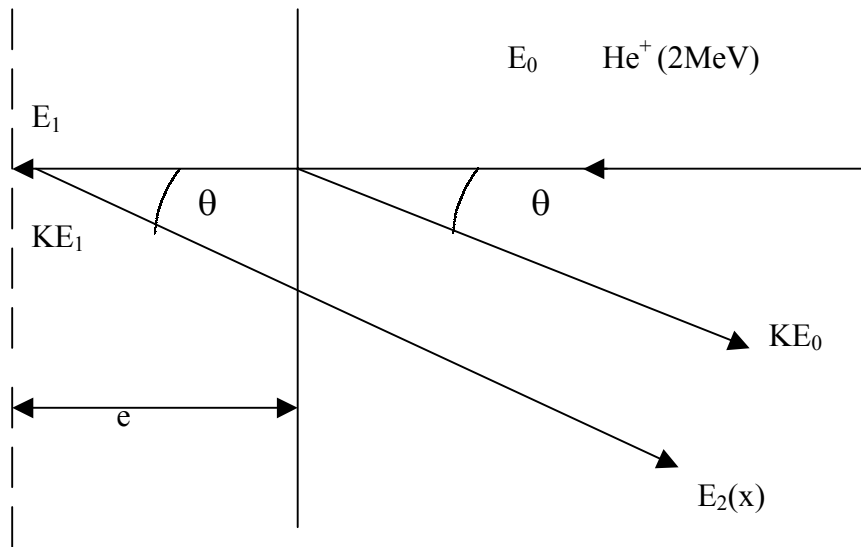
La structure ordonnée de l'état cristallin d'un matériau est à l'origine de la technique de canalisation. Cette technique est très sensible au désordre atomique (de l'ordre  $10^{-3}$  atomes). Le principe de la méthode consiste à diriger un faisceau de particules peu divergent dans un cristal, le long de directions cristallographiques privilégiées ; les particules incidentes sont alors soumises à une série de diffusions aux petits angles qui tendent à canaliser leurs déplacements le long des rangés d'atomes, sur une profondeur de pénétration grande devant le

parcours lié à une incidence quelconque. La condition physique de canalisation est que la divergence du faisceau soit inférieure à un angle critique défini par :

$$\psi_1 = \sqrt{\frac{2Z_1Z_2e^2}{E_0d}} \text{ où } Z_1 \text{ est le numéro atomique des particules incidentes, } Z_2 \text{ est le}$$

numéro atomique de la cible,  $d$  est la distance entre deux atomes de la rangés,  $E_0$  présente l'énergie des particules incidentes. Dans notre cas  $\Psi_1=0.8$  degrés, cette condition est donc réalisée dans notre cas (car la divergence du faisceau est égale à 0.06 degrés).

Au cours de son déplacement dans le cristal, une particule alpha canalisée d'énergie  $E_0$  et de masse  $M_1$  peut subir plusieurs scénarios figure III-44.



**Figure III-44 : Principe de C-RBS**

Elle peut être diffusée par un atome de surface de la cible de masse  $M_2$ , lui permettant ainsi d'acquérir une énergie  $E_r=KE_0$ , où  $K$  est le facteur de diffusion cinématique défini dans le système de laboratoire comme :

$$K = \left[ \frac{M_1 \cos\theta + \sqrt{M_2^2 - M_1^2 \sin^2\theta}}{M_1 + M_2} \right]^2$$

Cette particule alpha peut pénétrer dans le cristal sans rencontrer d'atomes jusqu'à une profondeur  $e$ . Dans ce cas la particule alpha subira une perte d'énergie électronique car pour

des particules alpha de 2 MeV, c'est la perte d'énergie par collisions inélastiques qui est prépondérante. Dans ce cas son énergie sera

$$E_1 = E_0 - \int_0^e \frac{dE}{dx} dx$$

A la profondeur  $e$ , la particule alpha peut rencontrer un atome qui se trouve hors de son site et subir une rétrodiffusion. Sa nouvelle énergie est  $E_2(x) = KE_1$ . En sortant du cristal, la particule alpha perdra encore une certaine énergie liée aux collisions avec les électrons de la cible pour arriver sur le détecteur à barrière de surface avec une énergie de

$$E_3(e) = KE_1 - \int_0^{\frac{e}{\cos\theta}} \frac{dE}{dx} dx$$

Le spectre de canalisation consiste pour une orientation spécifique de la cible cristalline, à porter le nombre de particules rétrodiffusées en fonctions de leurs énergies réfléchies respectives  $E$ . Il se compose d'un pic à l'énergie  $KE_0$  lié aux chocs en surface et d'un fond de rétrodiffusion dont l'amplitude, à une énergie  $E < KE_0$ , dépend directement du nombre de particules qui, en pénétrant une direction spécifique, sont rétrodiffusées à la profondeur  $e$ .

Pour un cristal polyatomique orienté, on peut repérer sélectivement les collisions élastiques sur les atomes  $i$  et  $j$  si leurs coefficients respectifs  $K_i$  et  $K_j$  sont suffisamment distincts, pour une énergie  $E_0$  donnée. Les spectres de canalisation relatifs à chaque sous réseau se superposent.

### **III-2- c-2. Echantillons utilisés pour l'étude de Rétrodiffusion de Rutherford en canalisation**

Nous avons utilisé des échantillons monocristallins de saphir de diamètre de 12.7mm et d'épaisseur de 1mm, taillés selon les axes (0001). Chacun de ces échantillons fut soumis à un traitement thermique à une température de 1200°C pendant 6 heures, destiné à améliorer l'état de surface, après le polissage du fabricant.

Les échantillons du CaF<sub>2</sub> étaient polis ou clivés. Les échantillons polis ont été recuits à 400°C pendant une heure, les échantillons clivés le long de la direction (111) ont été utilisés directement.

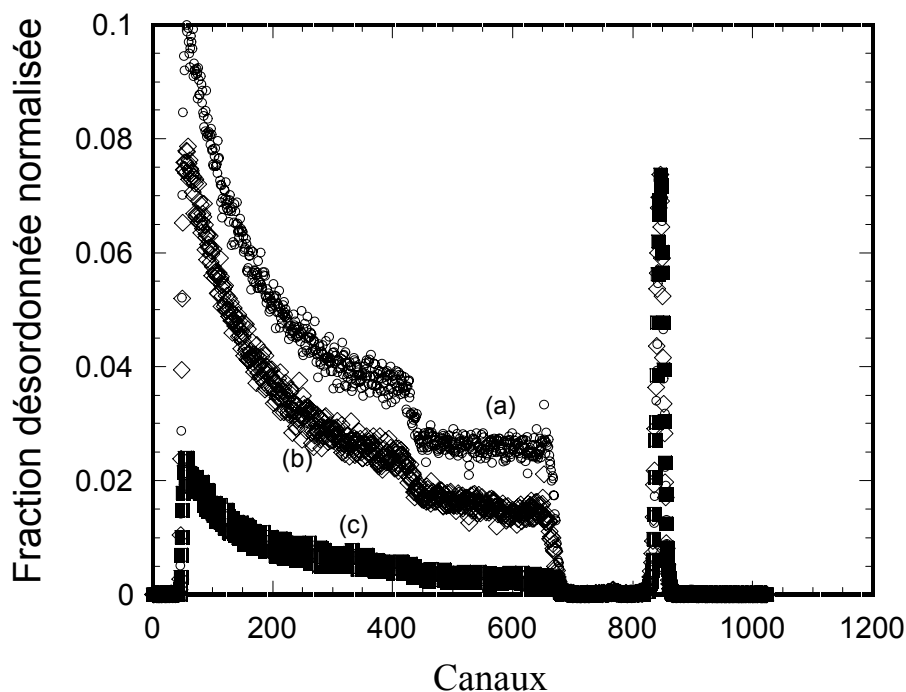
Pour limiter les effets d'accumulation de charges à la surface des échantillons, une couche de palladium a été déposée sur la surface de chaque échantillon, par l'équipe de GSI, d'épaisseur de  $9 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Il est facile de séparer les énergies des particules rétrodiffusées par les éléments les plus légers tels que O, Al, Ca, F, des particules rétrodiffusées en surface par la couche de palladium (à cause de la grande masse du palladium).

### **III-2- c-3. Extraction de la fraction désordonnée**

Tous les échantillons caractérisés par rétrodiffusion Rutherford en canalisation n'ont été irradiés qu'à moitié, l'autre moitié étant restée vierge. La figure III-46 montre l'allure de spectres de rétrodiffusion de particules alpha d'énergie 2 MeV en position canalisée pour les parties irradiées et non irradiées du même échantillon de  $\text{CaF}_2$  selon la direction (111). Le spectre en position aléatoire est également représenté.

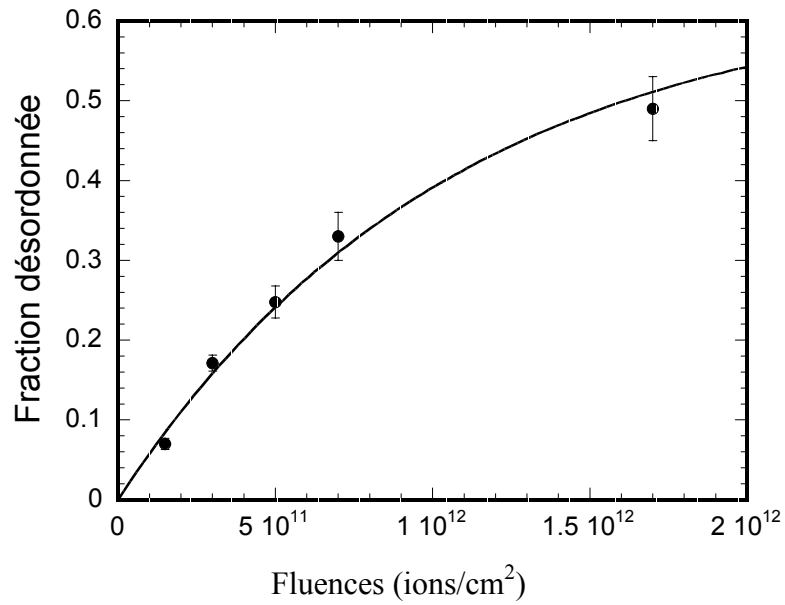
La fraction désordonnée est déterminée par le rapport  $\frac{\chi_i - \chi_v}{\chi_r - \chi_v}$  où  $\chi_i$  est le rendement de rétrodiffusion en canalisation de la partie irradiée (spectre III-46-b),  $\chi_v$  et le rendement de rétrodiffusion en canalisation de la partie vierge (spectre III-46-c) et  $\chi_r$  le rendement de rétrodiffusion en condition aléatoire sur la partie irradiée ou non irradiée (spectre III-44-a). Les différents rendements ont été calculés en utilisant la fenêtre comprise entre les canaux (660-600) (figure III-46).



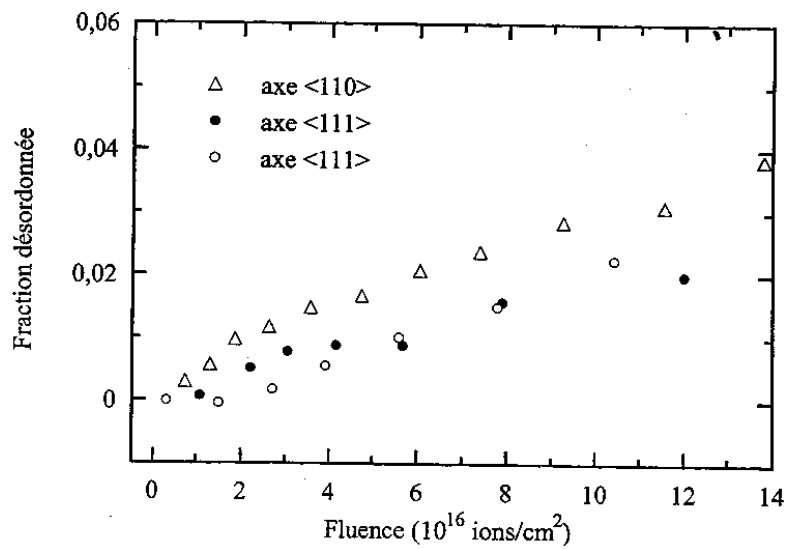


**Figure III-46** : Les spectres de RBS dans le cas du  $\text{CaF}_2$  irradié avec du Plomb à une énergie de  $1.4 \text{ MeV/u}$  et une fluence de  $1.7 \times 10^{12} \text{ ions/cm}^2$ .

Pour chaque fluence utilisée la fraction désordonnée extraite ainsi, est tracée en fonction de la fluence (figure III-47). Cette fraction augmente avec la fluence indiquant que l'irradiation induit un désordre de la structure cristalline de l'échantillon. Il faut signaler que la sensibilité du  $\text{CaF}_2$  aux particules alpha pour cette énergie a été étudiée par R. Hellborg et al. [18]. Ils ont montré que le  $\text{CaF}_2$  présente un désordre inférieur à 1 % pour une fluence de particules alpha de  $1 \times 10^{16} \text{ ions/cm}^2$  (figure III-48). Dans notre cas la fluence utilisée était de  $2 \times 10^{14} \text{ ions/cm}^2$ , confirmant que les particules alpha ne rajoutent aucun désordre supplémentaire au désordre créé par nos irradiations et que cette technique est bien adaptée à notre étude.



**Figure III-47 :** Variation de la fraction désordonnée en fonction de la fluence dans le cas du  $\text{CaF}_2$  irradié avec du Plomb à une énergie de 1.4 MeV/u.



**Figure III-48 :** Endommagement du  $\text{CaF}_2$  avec des ions He de 2 MeV/u [18].

La profondeur sondée dans le cas du  $\text{CaF}_2$  et du  $\text{Al}_2\text{O}_3$  est autour de 200 nm. Cette technique permet d'identifier les modifications subies par l'échantillon à proximité de la surface.

Il est à remarquer que cette analyse dans le cas du  $\text{CaF}_2$ , concerne seulement le réseau du calcium du fait de la difficulté de séparer la contribution des deux sous réseaux (calcium et fluor) quand la contribution du fluor est présente. La même remarque peut être faite dans le cas de l'analyse des échantillons du saphir. Le désordre n'est étudié que dans le réseau d'aluminium.

### III-3. Les références

---

- [1] S. Bouffard, J. Dural, F. Lesvesque, J.M. Ramillon, *Annales de Physique (Paris)*, 14, 395 (1989)
- [2] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, E. Weibel, *Phys. Rev. Lett.* 49, 57, (1982)
- [3] G. Binnig, C.F. Quate, C. Gerber, *Phys. Rev. Lett.* 56, 930, (1986)
- [4] J.N. Israelachvili, *Intermolecular and surface forces*, 2<sup>nd</sup> Ed, Academic Press, London 1991
- [5] R. Wiesendanger, *Scanning Probe Microscopy and spectroscopy Methods and Applications*, Cambridge University Press, 1994
- [6] R. Wiesendanger, H.J. Ginthardt, *Scanning Tunneling Microscopy II*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg.
- [7] O. Marti, J. Colchero, J. Mlynek, *Nanotech*, 1, 141, (1990)
- [8] R. Luthi, E. Meyer, L. Howald, H. Haefke, D. Anselmetti, M. Dreier, M. Rietschi, T. Bonner, R.M. Overney, J. Frommer, H. J. Guntherdot, *J.Vac. Sci. Technol. B*12, 1673 (1994).
- [9] J. Tamayo, R. Garcia, *Langmir*, 12, 4430, (1996)
- [10] R. Garcia, R. Pérez, *Surf Scien Report* 47 (2001)
- [11] H.J. Butt, M. Jasckke, *Nanotechnology* 6,1 (1995)
- [12] G. Binning, D.P.E. Smith, *Rev. Sci. Instrum.* 57, 1688, (1986)
- [13] D.D.N. Barlo Daya, A. Hallen, P. Hankansson, B.U.R. Sundqvist, C.T. Reimann, *Nucl. Instr. And Meth. B* 103, 454, (1995)
- [14] Ph. Niedermann, O. Fisher, *J. Microsc.* 152, 93, (1988)
- [15] D. Keller, *Surf. Sci.* 353, 253, (19991)
- [16] J.S. Villarrubia, *Surf. Science*, 321, 287, (1994)
- [17] P.E. Mazeran thèse de l'école centrale de Lyon (1998)
- [18] R. Hellborg, G. Skog, *Physica Scripta* 9 (1974) 121



## *Chapitre IV : Résultats expérimentaux et analyses*



## IV. Introduction

Ce chapitre est dédié à la présentation des résultats expérimentaux. La première partie sera consacrée au  $\text{CaF}_2$  où les observations faites en surface (AFM) seront comparées à celles déduites des mesures de l'endommagement proche de la surface par C-RBS. Une courte seconde partie, abordera la description des défauts en surface du  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  qui est un matériau amorphisable au contraire du  $\text{CaF}_2$ . Enfin la troisième partie décrira les résultats obtenus pour  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , c'est à dire la création de défauts en surface par AFM, le désordre topologique proche de la surface par C-RBS et l'endommagement dans le volume par des mesures de gonflement.

### IV-1. Résultats des irradiations du $\text{CaF}_2$

#### *IV-1-I. Les observations des défauts en surface par microscopie à force atomique*

Le tableau IV-1 regroupe toutes les irradiations effectuées pour l'étude de défauts en surface dans le  $\text{CaF}_2$ , en donnant les caractéristiques spécifiques de chaque ion.

Ions	Energie (MeV/u)	Pouvoir d'arrêt (keV/nm)	Parcours ( $\mu\text{m}$ )	Accélérateur
$^{238}\text{U}$	6	35.5	50	GSI
$^{208}\text{Bi}$	11.1	29.4	86	GSI
	5.5	32	45.3	GSI
	3	31.5	29.3	GSI
$^{208}\text{Pb}$	4.6	32	38.5	GANIL
	1.8	30	16	GANIL
$^{197}\text{Au}$	1	25.4	15	IRES
$^{136}\text{Xe}$	6.4	19.6	50	GANIL
$^{129}\text{Xe}$	3.7	20.7	30	GANIL
$^{86}\text{Kr}$	5.7	11.8	43	GANIL



	3	13.3	25	GANIL
<sup>58</sup> Ni	10.6	6.7	85	GANIL
	5.5	8.4	35	GANIL
	2.5	10.3	15	GANIL
<sup>48</sup> Ca	6.8	4.6	56	GANIL
	5	5.4	40	GANIL
	0.8	7.7	8	GANIL

**Tableau IV-1 : Les ions utilisés pour l'étude AFM du CaF<sub>2</sub>**

Ces irradiations ont été réalisées en incidence normale. Pour chaque ion, nous en déduisons le nombre d'impact par ion incident, la hauteur de chaque bosse ainsi que leur diamètre qui est déduit de la largeur à mi hauteur d'une gaussienne non affectée par la taille de la pointe. Les résultats obtenus dans le cas de l'irradiation faite avec des ions uranium seront présentés en détail. Les résultats des autres irradiations seront ensuite donnés brièvement en suivant le même schéma que pour l'uranium sauf dans des cas spécifiques.

#### IV-1-I-a. Irradiation avec des ions uranium

La figure IV-1 montre l'image obtenue de la surface du CaF<sub>2</sub> et les résultats qui en sont déduits dans le cas d'une irradiation avec un faisceau d'uranium d'énergie 6 MeV/u et une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>. Une analyse sur une grande surface ( $1.36 \times 1.36$ ) μm<sup>2</sup>, donne un nombre d'impacts de 109 au lieu de 92 déduit de la fluence. L'efficacité d'endommagement de la surface est définie par le nombre d'impacts mesuré sur la surface divisé par le nombre d'ions incidents, sur la même surface. Dans le cas présent, l'efficacité d'endommagement est  $E_{\text{eff}} = 1.17 \pm 0.20$ , l'erreur prend en compte la statistique de comptage et l'erreur sur la détermination de la fluence.

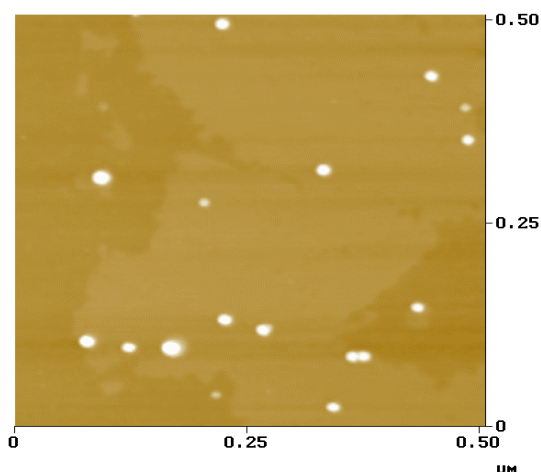
L'ajustement des impacts d'ions par des gaussiennes, permet d'en déduire leur hauteur  $h$  et leur diamètre  $d$  qui est égal à  $2.35 \times \sigma$  où  $\sigma$  est la déviation standard de la gaussienne. La figure IV-1-(b) présente l'évolution de la hauteur en fonction du diamètre. Par projection sur les axes,  $h = 12.5 \pm 2.5$  nm et  $d = 18.9 \pm 2.4$  nm (les erreurs correspondent à la déviation standard). En faisant l'analyse statistique, décrite dans le chapitre précédent, le coefficient de corrélation,  $\rho = 0.89$ , indique une forte corrélation.

Le diamètre réel a été déterminé en utilisant la procédure décrite dans le chapitre précédent (chapitre III). Dans un premier temps (figure IV-1-(b)), le rayon de courbure de la pointe  $R_c = 2.34$  nm est extrait par l'extrapolation à zéro de la hauteur. En utilisant une pointe de forme parabolique ( $y = x^2 / (2 \times R_c)$ ) et des bosses de forme gaussienne dont la hauteur  $h$  est égale à  $\alpha \times d_r$  et le diamètre réel  $d_r = 2.35 \times \sigma_r$ , la courbe de corrélation est reconstruite (figure IV-1-(b) (les carrés pleins)) en utilisant une résolution graphique, qui conduit à une valeur de  $\alpha = 0.89$ . Le diamètre réel est alors égal à  $14.0 \pm 2.3$  nm.

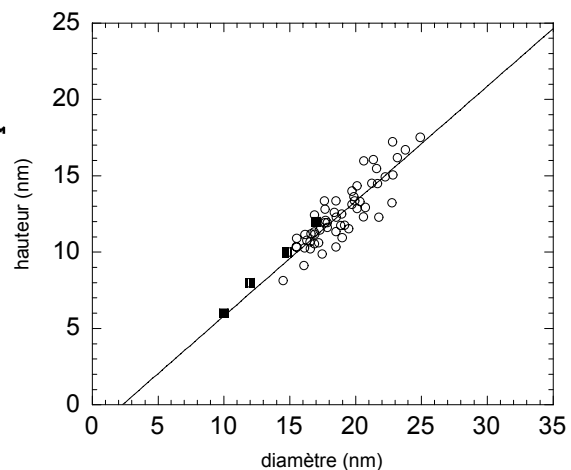
Le tableau IV-2 résume les résultats obtenus de l'analyse des bosses en surface du CaF<sub>2</sub> irradié avec des ions uranium.

Ion	E(MeV/u)	$E_{\text{ff}}$	$R_c$ (nm)	$\rho$	$d$ (nm)	$h$ (nm)	$\alpha$	$d_r$ (nm)
U	6	$1.17 \pm 0.20$	2.34	0.83	$18.9 \pm 2.4$	$12.5 \pm 2.1$	0.89	$14.0 \pm 2.3$

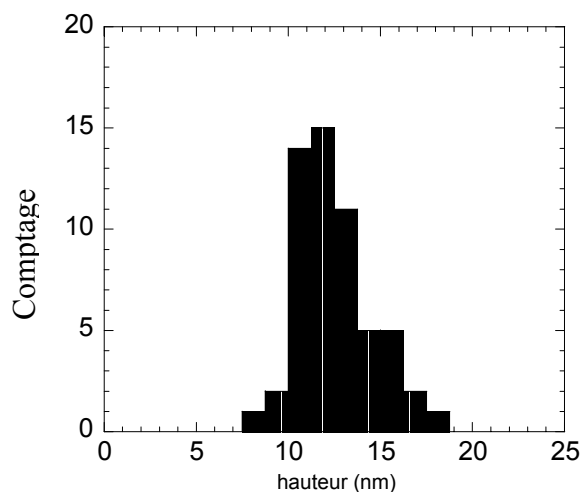
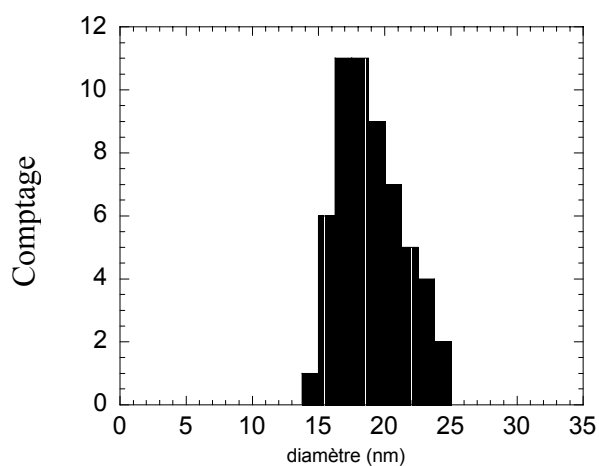
**Tableau IV-2 :** Les résultats d'analyse AFM obtenus dans le cas du CaF<sub>2</sub> avec des ions uranium.



(a)



(b)



(c)

**Figure IV-1** : irradiation du  $\text{CaF}_2$  avec des ions uranium d'énergie de 6 MeV/u,  $dE/dx=35.5$  keV/nm.

(a) Image AFM à une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup> (nombre d'impact compté 17 au lieu de 12).

(b) Présentation de la hauteur en fonction du diamètre. Les cercles présentent les résultats expérimentaux obtenus par AFM, les carrés présentent les résultats de la simulation.

(c) Distribution des diamètres et des hauteurs

### IV-1-I-b. Irradiation avec des ions bismuth et plomb

Ces deux ions sont regroupés parce qu'ils présentent, à 10% près la même perte d'énergie. Les énergies des projectiles utilisées varient d'un facteur 6. Ceci permettra de mettre en évidence éventuellement un effet de la vitesse de l'ion [1] sur l'endommagement à la surface du matériau et un effet de parcours s'ils existent.

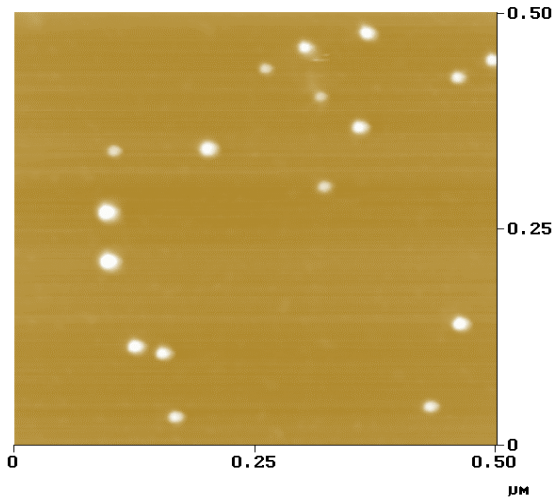
Seule l'irradiation avec des ions de bismuth de 11.1 MeV/u est présentée sur la figure IV-2. En faisant une analyse du nombre d'impact sur une image de dimension  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ , nous déterminons une efficacité d'endommagement  $E_{\text{ff}} = 1.2 \pm 0.2$ .

La figure IV-2-(b) présente l'évolution de la hauteur observée en fonction du diamètre observé. La projection sur les axes, donne  $h = 11.2 \pm 2.3 \text{ nm}$  et  $d = 19.8 \pm 2.8 \text{ nm}$  et conduit à un coefficient de corrélation de 0.99 à partir de l'analyse statistique. La détermination du rayon de courbure de la pointe  $R_c = 6.3 \text{ nm}$  (figure IV-2-(b)) ainsi que l'analyse graphique des bosses permettent d'extraire la constante  $\alpha$  qui relie la hauteur au diamètre réel des bosses  $\alpha = 0.89$  et  $d_r = 12.6 \pm 2.6 \text{ nm}$ .

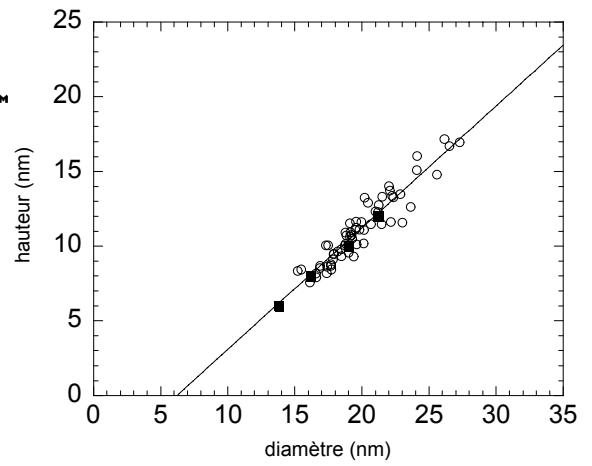
Le tableau IV-3 donne l'ensemble des résultats obtenus pour toutes les irradiations faites avec les ions bismuth et plomb.

Ion	E(MeV/u)	$E_{\text{ff}}$	$R_c(\text{nm})$	$\rho$	d(nm)	h(nm)	$\alpha$	$d_r(\text{nm})$
Bi	11.1	$1.2 \pm 0.2$	6.3	0.99	$19.8 \pm 2.8$	$11.2 \pm 2.3$	0.89	$12.6 \pm 2.6$
	5.5	$1.1 \pm 0.2$	8	0.81	$16.0 \pm 2.2$	$10.7 \pm 1.9$	0.89	$12.0 \pm 2.1$
	3	$0.9 \pm 0.1$	2.6	0.84	$19.2 \pm 1.2$	$11.1 \pm 1.9$	0.89	$12.5 \pm 2.1$
<sup>208</sup> Pb	4.6	$0.76 \pm 0.24$	4	0.79	$16.0 \pm 1.80$	$12.3 \pm 2.2$	1.06	$11.6 \pm 2.1$
	1.8	$0.94 \pm 0.12$	4	0.87	$18.6 \pm 2.1$	$11.6 \pm 2.6$	1.06	$10.9 \pm 2.4$

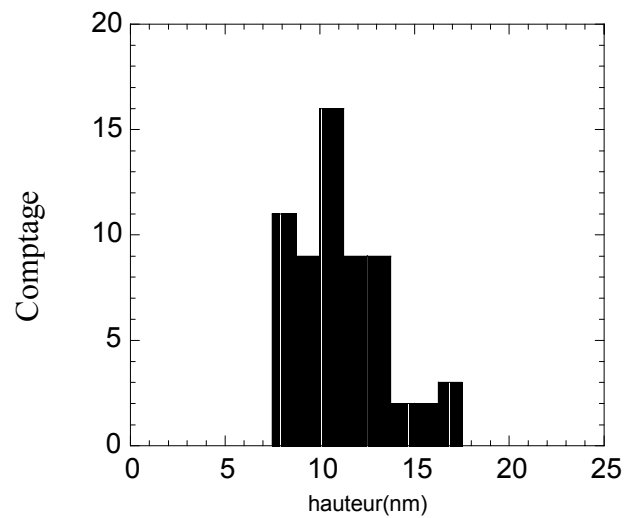
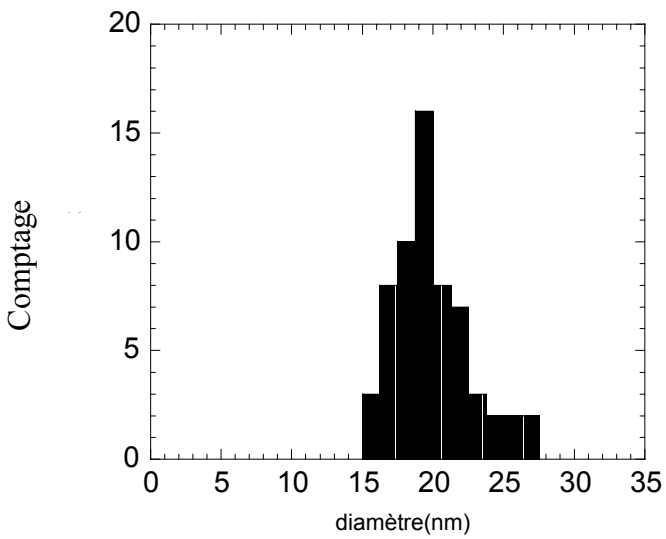
**Tableau IV-3 :** Les résultats d'analyse AFM obtenus dans le cas du  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions bismuth et plomb.



(a)



(b)



(c)

**Figure IV-2** : irradiation du  $\text{CaF}_2$  avec des ions de bismuth d'énergie de  $11.4\text{MeV/u}$ ,  $dE/dx=29.4\text{ keV/nm}$ .

(a) Image AFM à une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm, (nombre d'impact compté 17 au lieu de 12).

(b) Présentation de la hauteur en fonction du diamètre. Les cercles présentent les résultats obtenus par AFM. Les carrés présentent les résultats de la simulation

(c) Distribution des diamètres et des hauteurs

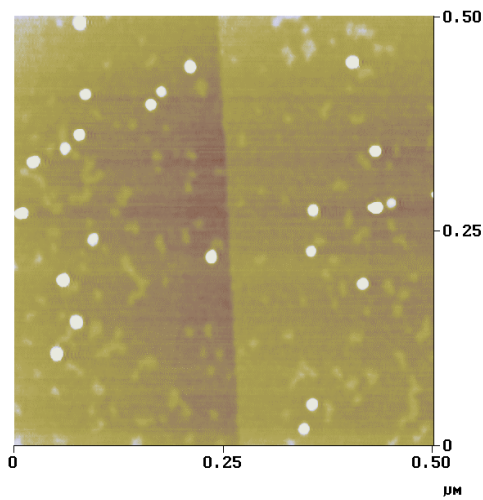
#### IV-1-I-c. Irradiation avec des ions or et xénon

Le résultat obtenu dans le cas de l'irradiation avec des ions d'or est présenté sur la figure IV-3. L'analyse de l'image nous permet de déterminer une efficacité d'endommagement égale à  $E_{\text{eff}} = 0.88 \pm 0.2$ . Les valeurs moyennes des hauteurs et des diamètres sont :  $h = 7.5 \pm 1.7 \text{ nm}$  et  $d = 19.8 \pm 2.2 \text{ nm}$  (figure IV-3-(c)), ces valeurs conduisent à un coefficient de corrélation  $\rho = 0.8$ . L'analyse graphique de la courbe hauteur-diamètre nous permet d'extraire une valeur de  $\alpha = 0.51$  (figure IV-3(b)), la valeur moyenne du diamètre corrigé (réel) est donné par  $d_r = 14.7 \pm 3.3 \text{ nm}$ .

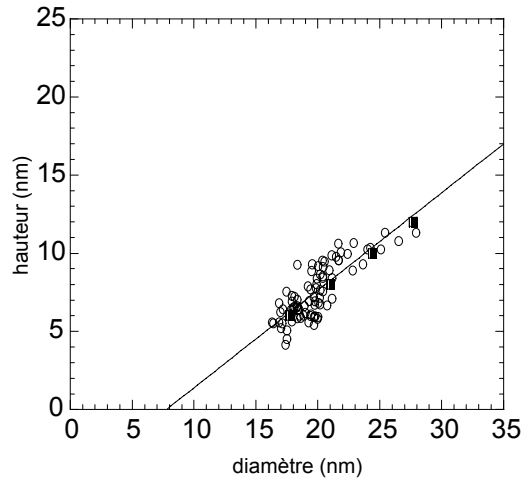
L'ensemble des résultats obtenus pour les analyses des irradiations avec des ions or et xénon sont donnés dans le tableau IV-4:

Ion	E(MeV/u)	$E_{\text{eff}}$	$R_c(\text{nm})$	$\rho$	d(nm)	h(nm)	$\alpha$	$d_r(\text{nm})$
$^{197}\text{Au}$	1	$0.88 \pm 0.20$	6.3	0.80	$19.8 \pm 2.2$	$7.5 \pm 1.7$	0.51	$14.7 \pm 3.3$
$^{136}\text{Xe}$	6.4	$0.9 \pm 0.1$	4.7	0.81	$20.8 \pm 2.9$	$6.0 \pm 0.6$	0.42	$14.3 \pm 1.5$
$^{129}\text{Xe}$	3.7	$0.97 \pm 0.1$	8	0.83	$20.9 \pm 2.8$	$6.2 \pm 1.2$	0.38	$16.2 \pm 3.1$

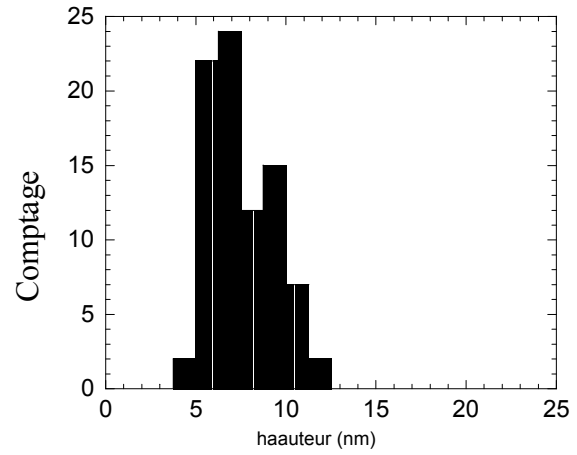
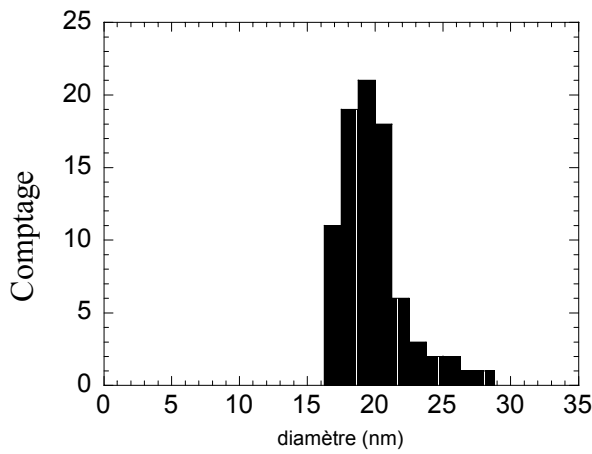
**Tableau IV-4 :** Les résultats d'analyse AFM obtenus dans le cas du  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions or et xénon.



(a)



(b)



(c)

**Figure IV-3** : irradiation du  $\text{CaF}_2$  avec des ions d'or d'énergie de  $1 \text{ MeV/u}$ ,  $dE/dx=25.4 \text{ keV/nm}$ .

(a) Image AFM à une fluence de  $1 \times 10^{10} \text{ ions/cm}^2$  (nombre d'impact compté 24 au lieu de 25).

(b) Présentation de la hauteur en fonction du diamètre. Les cercles présentent les résultats obtenus par AFM. Les carrés présentent les résultats de la simulation.

(c) Distribution des diamètres et des hauteurs

#### IV-1-I-d. Irradiation avec des ions krypton

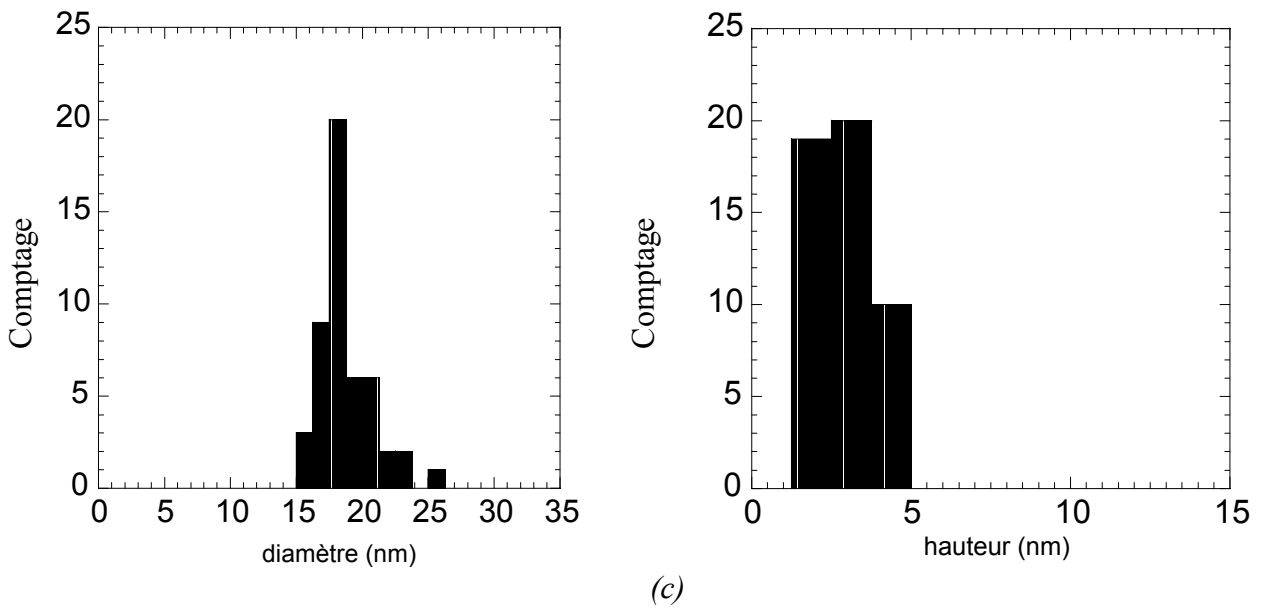
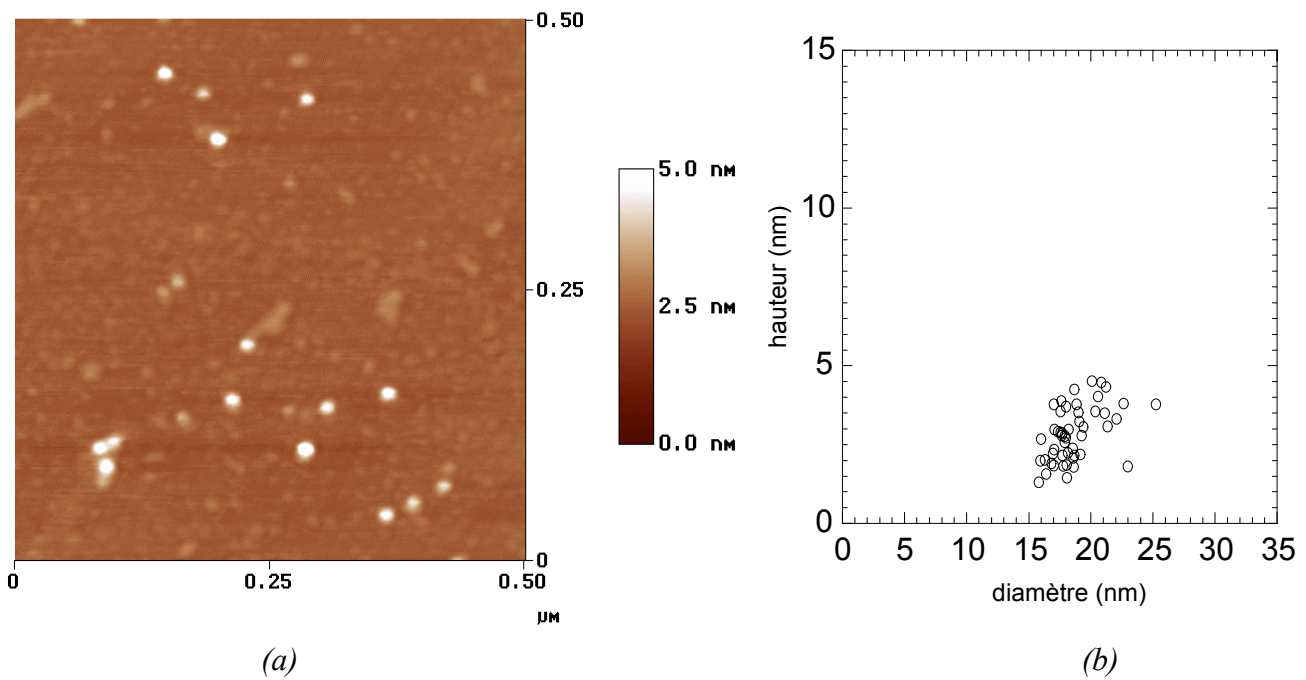
Dans le cas des irradiations avec des ions krypton, deux irradiations ont été réalisées, l'une avec des ions de 3 MeV/u dont les résultats sont présentés dans le tableau IV-5. Nous détaillerons celle réalisée avec des ions à 5.7 MeV/u, car elle présente un changement de régime.

En effet, le nombre d'impact produit sur la surface, diminue légèrement (figure IV-4), et l'efficacité d'endommagement est alors de  $E_{ff} = 0.7 \pm 0.1$ . De plus, nous ne n'observons plus de corrélation apparente entre la hauteur et le diamètre (figure IV-4-(b)). A partir de la distribution des hauteurs, on en déduit  $h = 2.85 \pm 0.85$  nm et de même pour les diamètres, on a  $d = 18.7 \pm 1.7$  nm (figure IV-4-(c)). Le coefficient de corrélation  $\rho$  est alors égal à 0.49 ce qui montre une diminution de la corrélation entre ces deux variables. Ceci nous a empêché de déterminer le rayon de courbure de la pointe et la constante  $\alpha$  qui relie la hauteur avec le diamètre réel de l'impact. Nous proposerons par la suite une manière d'obtenir le diamètre réel.

Ion	E(MeV/u)	$E_{ff}$	$R_c$ (nm)	$\rho$	d(nm)	h(nm)	$\alpha$	$d_r$ (nm)
$^{86}\text{Kr}$	3	$0.80 \pm 0.16$	3.8	0.9	$15.1 \pm 2.9$	$4.4 \pm 1.2$	0.34	$13.0 \pm 3.5$
	5.7	$0.7 \pm 0.1$		0.49	$18.7 \pm 1.7$	$2.9 \pm 0.9$		

**Tableau IV-5 :** Les résultats d'analyse AFM obtenus dans le cas du  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions krypton.





**Figure IV-4** : irradiation du  $\text{CaF}_2$  avec des ions krypton d'énergie de 5.7 MeV/u,  $dE/dx=11.8 \text{ keV/nm}$ .

(a) Image AFM à une fluence de  $1 \times 10^{10} \text{ ions/cm}^2$  (nombre d'impact compté 14 au lieu de 25).

(b) Présentation de la hauteur en fonction du diamètre. Les cercles présentent les résultats obtenus par AFM

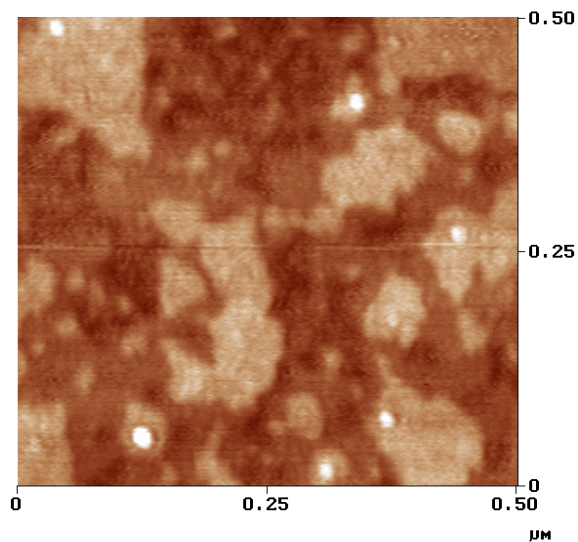
(c) Distribution des diamètres et des hauteurs.

#### IV-1-I-e. Irradiation avec des ions nickel

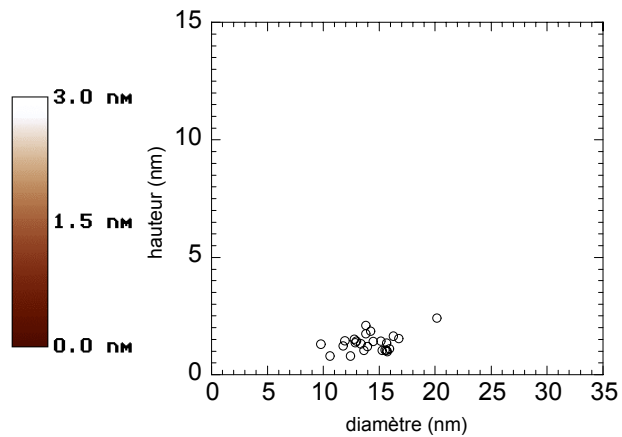
Pour les trois énergies utilisées, nous constatons que le nombre d'impacts créés sur la surface du CaF<sub>2</sub> ne correspond pas à la fluence utilisée. Nous détaillons le cas où E=5.5 MeV/u. L'image de l'état de surface est présentée sur la figure IV-5-(a). Le nombre d'impact ne correspond pas à la fluence utilisée. L'efficacité d'endommagement est égale à  $E_{ff} = 0.6 \pm 0.1$ . La corrélation n'est pas apparente (figure IV-5-(b)). Le calcul du coefficient de corrélation est égal à  $\rho = 0.31$ . Comme nous n'avons pas beaucoup d'impacts par image, la moyenne des hauteurs et des diamètre est faites en analysant plusieurs images,  $d = 15 \pm 2.3$  nm,  $h = 1.5 \pm 0.3$  nm. Pour toutes les énergies utilisées, les résultats d'analyse des images sont présentés dans le tableau IV-6.

Ion	E(MeV/u)	$E_{ff}$	$R_c$ (nm)	$\rho$	d(nm)	h(nm)	$\alpha$	$d_r$ (nm)
<sup>58</sup> Ni	10.6	0.2±0.1			19.1±3.5	1.3±0.3		
	5.5	0.6±0.1		0.31	15.0±2.3	1.5±0.3		
	2.5	0.68±0.10		0.35	18.1±2.9	2.3±0.4		

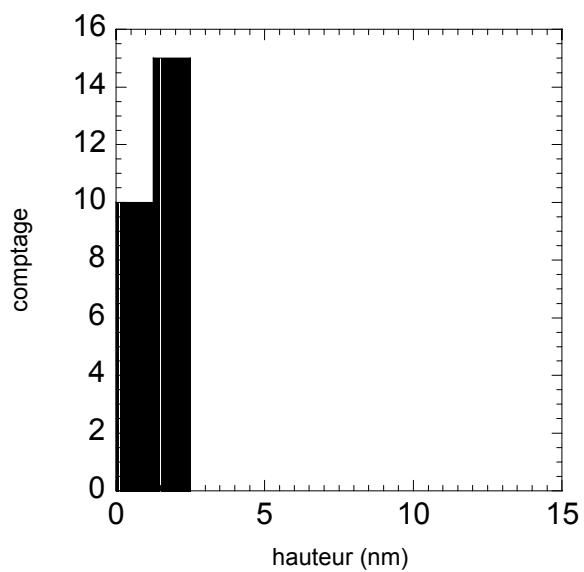
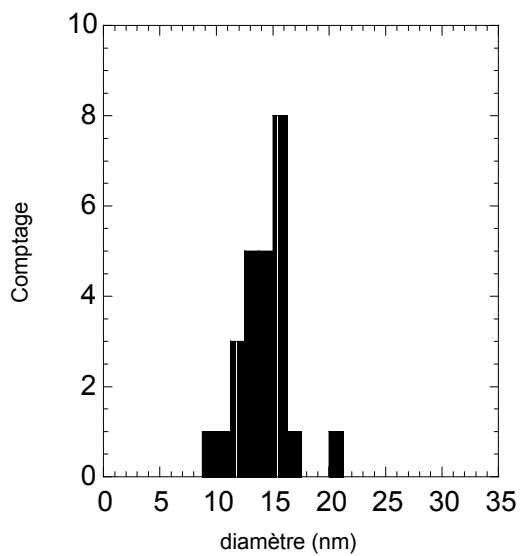
**Tableau IV-6 :** Les résultats d'analyse AFM obtenus dans le cas du CaF<sub>2</sub> irradié avec des ions nickel.



(a)



(b)



(c)

**Figure IV-5** : irradiation du  $\text{CaF}_2$  avec des ions nickel d'énergie de 5.5 MeV/u,  $dE/dx=8.4$  keV/nm.

(a) Image AFM à une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup> (nombre d'impact compté 6 au lieu de 12).

(b) Présentation de la hauteur en fonction du diamètre obtenu par AFM

(c) Distribution des diamètres et des hauteurs

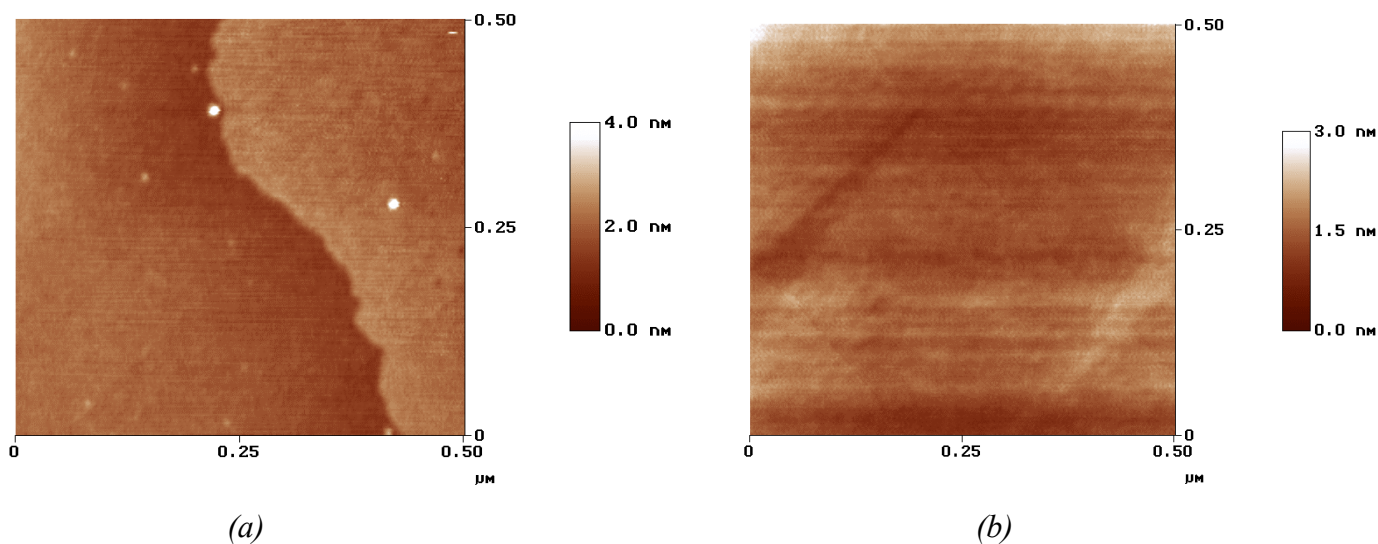
#### IV-1-I-f. Irradiation avec des ions calcium

Dans le cas des irradiations avec des ions calcium, trois énergies ont été utilisées. Dans le cas où  $E=0.8$  et  $6.8$  MeV/u, les résultats d'analyses sont donnés dans le tableau IV-7.

Pour l'énergie  $E= 5$  MeV/u, le résultat d'irradiation est présenté dans la figure IV-6-(a), l'efficacité d'endommagement est donnée par  $E_{ff} = 0.14 \pm 0.10$ , la valeur moyenne des diamètres et des hauteurs est respectivement  $d= 18.3 \pm 2.4$  nm et  $h = 1.1 \pm 0.1$  nm. Pour la valeur de l'énergie de  $6.8$  MeV/u, nous n'avons pas pu observer de création de bosses sur la surface du  $\text{CaF}_2$  irradié avec une fluence de  $1 \times 10^{10}$  ions/cm<sup>2</sup>, comme le montre la figure IV-6-(b).

Ion	E(MeV/u)	$E_{ff}$	$R_c$ (nm)	$\rho$	d(nm)	h(nm)	$\alpha$	$d_r$ (nm)
<sup>48</sup> Ca	6.8	<0.03						
	5	$0.14 \pm 0.10$			$18.3 \pm 2.4$	$1.1 \pm 0.1$		
	0.8	$0.57 \pm 0.10$		0.15	$18.1 \pm 2.9$	$1.2 \pm 0.2$		

**Tableau IV-7 :** Les résultats d'analyse AFM obtenus dans le cas du  $\text{CaF}_2$  irradié avec des ions de calcium.



**Figure IV-6** : irradiation du CaF<sub>2</sub> avec des ions de calcium

(a) image AFM irradié avec des ions d'énergie de 5 MeV/u,  $dE/dx=5.4$  keV/nm. à une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup> (le nombre d'impact est 2 au lieu de 12).

(b) image AFM irradié avec des ions d'énergie de 6.8 MeV/u,  $dE/dx=4.6$  keV/nm. à une fluence de  $1 \times 10^{10}$  ions/cm<sup>2</sup>.

Le tableau IV-8 résume l'ensemble des résultats obtenus pour les différentes irradiations.

Ion	E(MeV/u)	dE/dx(keV/nm)	$E_{fr}$	$\rho$	h(nm)	$d_r$ (nm)
$^{238}\text{U}$	6	35.5	1.17±0.20	0.83	12.5±2.1	14.0±2.3
$^{208}\text{Bi}$	11.4	29.4	1.2±0.2	0.99	11.2±2.3	12.6±2.6
	5.5	32	1.1±0.2	0.81	10.7±1.9	12.0±2.1
	3	31.5	0.9±0.1	0.84	11.1±1.9	12.5±2.1
$^{208}\text{Pb}$	4.6	32	0.76±0.24	0.79	12.3±2.2	11.6±2.1
	1.8	30	0.94±0.12	0.87	11.6±2.6	10.9±2.4
$^{197}\text{Au}$	1	25.4	0.88±0.2	0.80	7.5±1.7	14.7±3.3
$^{136}\text{Xe}$	6.4	19.6	0.9±0.1	0.81	6.0±0.6	14.3±1.5
$^{129}\text{Xe}$	3.7	20.7	0.97±0.1	0.83	6.2±1.2	16.2±3.1
$^{86}\text{Kr}$	5.7	11.8	0.7±0.1	0.49	2.9±0.9	<i>13.1±2.6</i>
	3	13.3	0.80±0.16	0.90	4.4±1.2	13.0±3.5
$^{58}\text{Ni}$	10.6	6.7	0.2±0.1		1.3±0.3	<i>15.7±3.2</i>
	5.5	8.4	0.60±0.10	0.31	1.5±0.3	<i>15.7±3.2</i>
	2.5	10.3	0.68±0.10	0.35	2.3±0.4	<i>15.2±3.0</i>
$^{48}\text{Ca}$	6.8	4.6	<0.03			
	5	5.4	0.14±0.10		1.1±0.1	<i>15.7±3.2</i>
	0.8	7.7	0.57±0.10	0.15	1.2±0.2	<i>15.7±3.2</i>

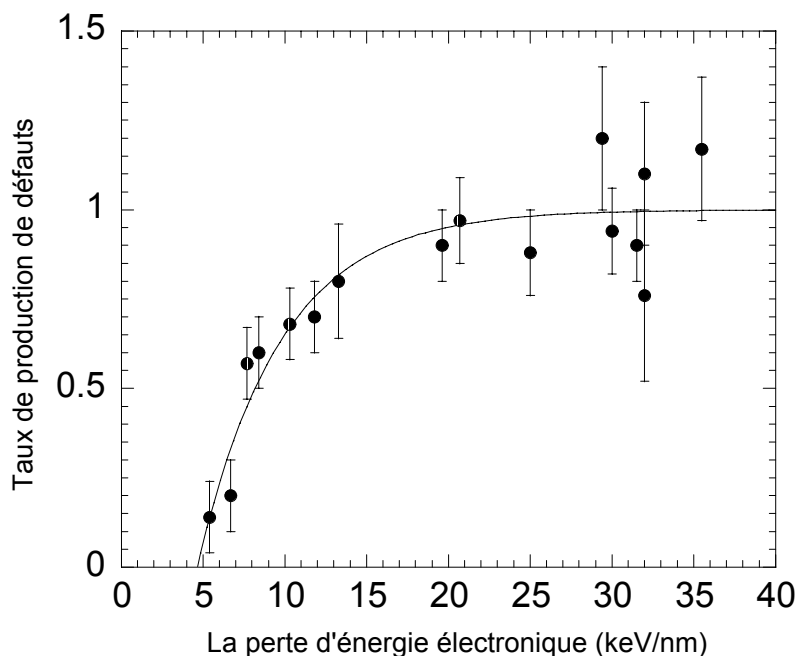
**Tableau IV-8 :** Les résultats obtenus par AFM dans le cas du  $\text{CaF}_2$  avec l'ensemble des ions. Pour les valeurs écrites en italique la méthode d'obtenir les diamètres réels sera expliquée dans la suite de ce travail.

### IV-1-I-1. Analyse des résultats

De l'ensemble des expériences qui sont résumé dans le tableau IV-8, nous allons discuter les quatre paramètres qui caractérisent l'apparition des bosses en surface : l'efficacité d'endommagement, le coefficient de corrélation hauteur-diamètre, la hauteur et le diamètre réel.

#### VI-1-I-1-a. Efficacité d'endommagement

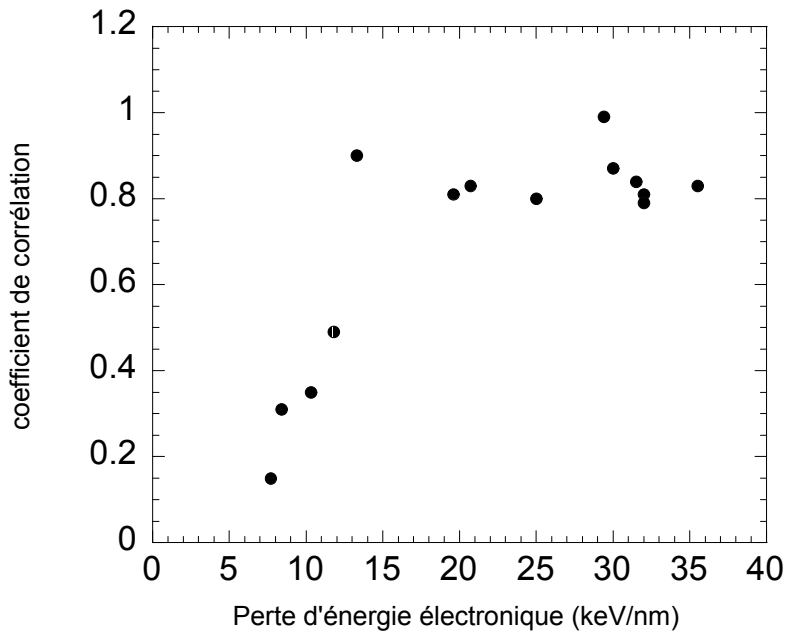
L'évolution de l'efficacité de l'endommagement ' $E_{ff}$ ' en fonction du  $dE/dx$  est présentée sur la figure IV-7. L'efficacité d'endommagement  $E_{ff}$  est très petite (inférieure à 0.03) pour un  $dE/dx$  inférieur à 4.8 keV/nm, puis augmente en fonction du  $dE/dx$  jusqu'à une valeur de 13.3 keV/nm, et au delà de cette valeur, elle devient constante et égale à 1 aux erreurs expérimentales près. Dans ce dernier cas chaque ion qui frappe la surface, donne naissance à une bosse. L'extrapolation pour des  $dE/dx$  inférieur à 10 keV/nm conduit à un  $dE/dx$  seuil de  $(5.0 \pm 0.8)$  keV/nm



**Figure IV-7 :** Présentation de l'efficacité d'endommagement dans le  $CaF_2$  en fonction de la perte d'énergie électronique. La ligne est utilisée pour guider les yeux.

### IV-1-I-1-b. Coefficient de corrélation

La figure IV-8 présente l'évolution du coefficient de corrélation hauteur-diamètre en fonction du  $dE/dx$ . Ce coefficient a pu être déterminé à partir des valeurs de perte d'énergie électronique supérieure à 7.7 keV/nm. Dans un premier temps ce coefficient augmente en fonction de la perte d'énergie jusqu'à une valeur de 13.3 keV/nm pour devenir proche de 1 après cette valeur de  $dE/dx$ . Pour des valeurs de  $dE/dx$  supérieures à 13.3 keV/nm, sa valeur est proche de 1. En supposant une évolution linéaire de ce paramètre pour un  $dE/dx$  compris entre 7 et 13 keV/nm, nous remarquons que pour un  $dE/dx$  inférieur à 5.5 keV/nm, ce coefficient est nul. De plus ce coefficient évolue comme l'efficacité d'endommagement (figure IV-7).

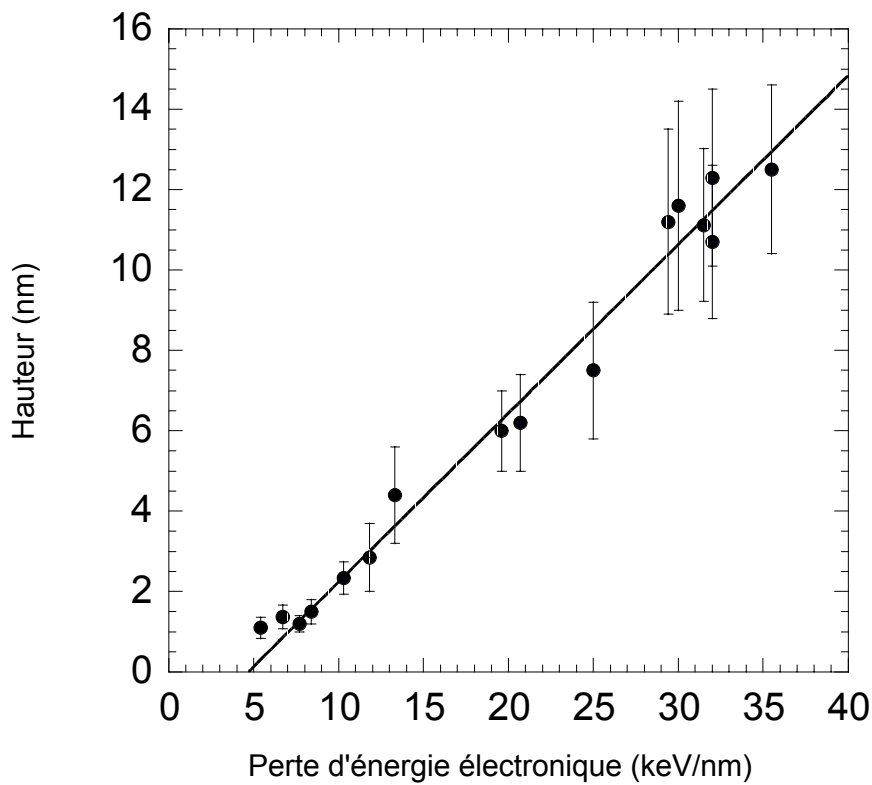


**Figure IV-8 :** Présentation du coefficient de corrélation ' $\rho$ ' en fonction de la perte d'énergie électronique.



### IV-1-I-1-c. Analyse des hauteurs de bosses

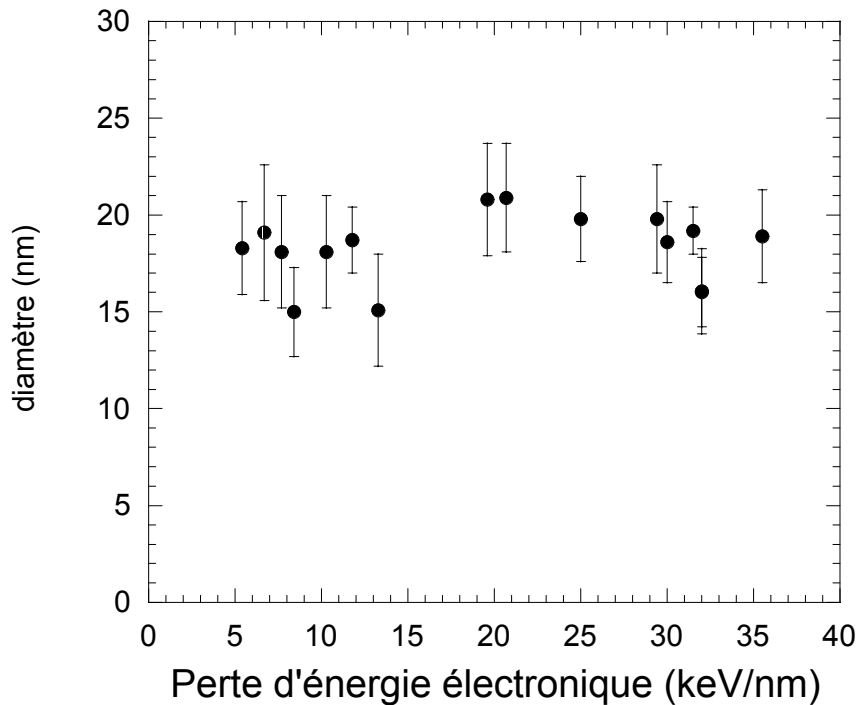
La figure IV-9 présente l'évolution de la hauteur moyenne des bosses en fonction du  $dE/dx$ . Comme nous l'avons vu précédemment (chapitre III) cette hauteur correspond à la hauteur réelle de la bosse. En première approximation, il semble que cette hauteur soit constante pour des  $dE/dx$  compris entre 5 et 10 keV/nm, puis elle augmente de façon linéaire, comme le montre l'ajustement des points par une droite (l'ajustement ne tient pas compte des quatre premiers points pour des valeurs de  $dE/dx$  inférieures à 10 keV/nm). L'extrapolation de cette droite pour une hauteur nulle, conduit à une valeur seuil en  $dE/dx = 4.8 \pm 1.1$  keV/nm.



**Figure IV-9 :** Présentation de la hauteur moyenne en fonction de la perte d'énergie électronique obtenue par AFM dans le cas du CaF<sub>2</sub>. La ligne droite présente le fit des points expérimentaux ayant un  $dE/dx$  supérieur à 10 keV/nm.

#### IV-1-I-1-d. Analyse des diamètres de bosses

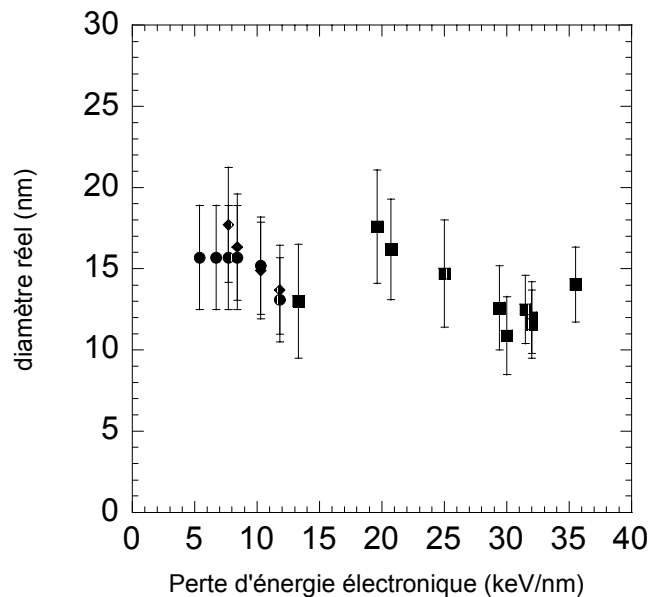
La figure IV-10, nous donne l'évolution des diamètres moyens observés par AFM pour  $\text{CaF}_2$ . Ces diamètres correspondent aux moyennes des largeurs à mi-hauteurs des gaussiennes utilisées pour ajuster la forme des bosses. Ils sont constants sur toute la gamme de  $dE/dx$  investiguée. Ces valeurs de diamètres ne sont pas les valeurs réelles des diamètres des bosses car elles sont affectées par la géométrie de la pointe.



*Figure IV-10 : Présentation du diamètre moyen observé par AFM pour  $\text{CaF}_2$  en fonction de la perte d'énergie électronique.*

La procédure d'élimination de l'effet de pointe a été expliquée dans le chapitre précédent (chapitre III). Pour les valeurs de pertes d'énergie supérieure à 13 keV/nm, c'est à dire dans le cas où le nombre d'impact correspond à la fluence et dans le cas où nous avons une corrélation entre la hauteur de la bosse et son diamètre réel, le résultat des diamètres corrigés est donné dans la figure IV-11. Ces diamètres corrigés ou réels restent constants en fonction de la perte d'énergie électronique. La valeur moyenne des diamètres corrigés est autour de  $13.5 \pm 2.12$  nm.

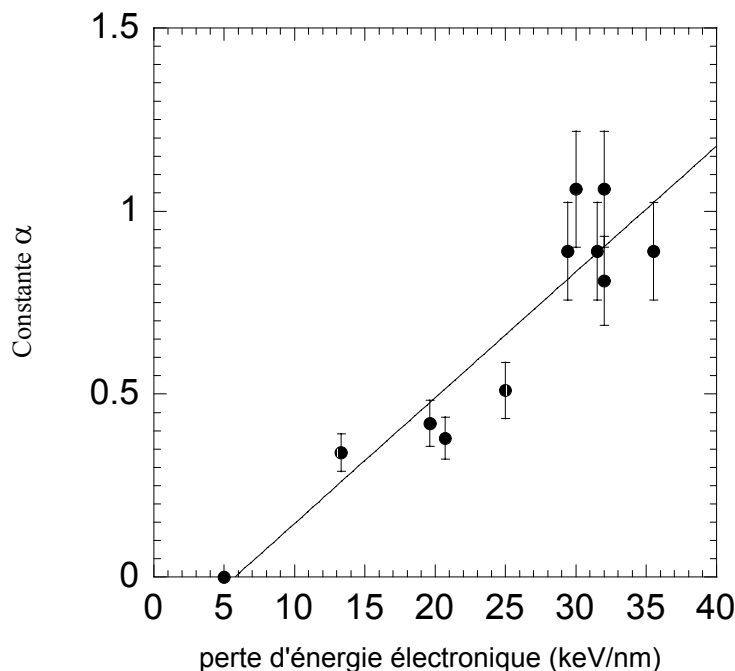
Pour des  $dE/dx$  inférieurs à 13.3 keV/nm, nous avons appliqué deux méthodes différentes pour déterminer le diamètre réel des bosses. La première méthode consiste à utiliser la résolution graphique pour un rayon moyen de la pointe égal à 5 nm. Cette dernière consiste à trouver, pour une hauteur de gaussienne choisie, la largeur à mi hauteur qui reproduit le diamètre dilaté, déterminé par AFM. Cette technique a été employée en utilisant une hauteur moyenne de 1.3 nm pour des  $dE/dx$  inférieurs à 10 keV/nm puis pour des hauteurs de 2.34 et 2.85 nm qui correspondent respectivement à des  $dE/dx$  de 10.3 et 11.8 keV/nm (figure IV-9). Les diamètres réels obtenus sont présentés sur la figure IV-11 et le tableau IV-7.



**Figure IV-11** : Présentation du diamètre réel en fonction de la perte d'énergie électronique. Les carrés présentent les diamètres réels déduits de la courbe hauteur-diamètre, connaissant le rayon de courbure de la pointe. Les cercles présentent les diamètres réels obtenus en supposant  $R_c=5$  nm. les losanges sont les diamètres réels déduits de la deuxième méthode (l'extrapolation de la constante  $\alpha$  (figure IV-12)).

La deuxième procédure a été d'utiliser la relation qui lie la hauteur avec le diamètre réel (figure IV-12). On a supposé que la corrélation pour des valeurs de  $dE/dx$  inférieures à 13 keV/nm, entre ces deux paramètres (hauteur-diamètre réel), existe toujours. En extrapolant la droite pour la plage de  $dE/dx$  comprise entre 7 et 13 keV/nm (figure IV-12), et en prenant la valeur seuil en  $dE/dx$  égale à 5 keV/nm pour le  $CaF_2$ , nous déterminons ainsi la valeur de la constante  $\alpha$  pour les valeurs inférieures de  $dE/dx$  à 13.3 keV/nm. Les diamètres réels ainsi déduits sont identiques aux erreurs expérimentales près aux diamètres déterminés par la méthode de résolution graphique. Les valeurs de ces diamètres sont alors rajoutées sur la figure IV-11. Notons que pour les valeurs de perte d'énergie de 6.7 keV/nm et 5.4 keV/nm les diamètres réels déterminés par cette deuxième méthode ne sont pas présentés sur la figure IV-11, car pour la première valeur le diamètre réel est égale à 41 nm et pour la deuxième valeur le diamètre réel est négatif. Ces deux valeurs ne sont pas réalistes.

En conclusion les diamètres réels restent constants en fonction du  $dE/dx$ .



**Figure IV-12** : Evolution de la constante «  $\alpha$  » liant la hauteur et le diamètre des bosses dans le cas du  $CaF_2$  en fonction de la perte d'énergie électronique.

## IV-1-I-2. Conclusion sur les résultats AFM

En conclusion, l'utilisation de la microscopie à force atomique pour l'étude des défauts de surface dans le  $\text{CaF}_2$ , nous a permis d'identifier les formes des impacts des ions à la surface sous forme de bosse et de déterminer un seuil de la réponse de la surface à partir de  $(5.1 \pm 0.6)$  keV/nm. La hauteur des bosses pour des valeurs de hauteur supérieure à 1.5 nm, augmente avec la perte d'énergie électronique et donne par extrapolation un seuil d'apparition de bosses égal à  $(4.8 \pm 1.1)$  keV/nm. A notre grande surprise les diamètres des bosses corrigés et non corrigés ne varient pas en fonction de la perte d'énergie électronique. Par contre le nombre d'impact observé sur la surface dépend de la perte d'énergie électronique utilisée et permet d'identifier deux régimes de défauts différents : le premier régime de défauts se situe entre 5 et 13 keV/nm, dans ce cas le nombre de défauts observés sur la surface ne correspond pas à la fluence utilisée, le deuxième régime se situe au dessus de 13.3 keV/nm, dans ce cas chaque ion incident crée une bosse. La corrélation entre les diamètres et les hauteurs semble disparaître pour des pertes d'énergie électronique inférieur à 13.3 keV/nm. L'extrapolation de la courbe de constante en fonction du pouvoir d'arrêt permet de trouver des diamètres corrigés qui sont en accord avec les diamètres corrigés déterminés par une résolution graphique. Ceci signifie que la corrélation existe toujours physiquement et que sa perte apparente est liée à la statistique. Le tableau IV-9 donne un résumé des résultats d'analyses.

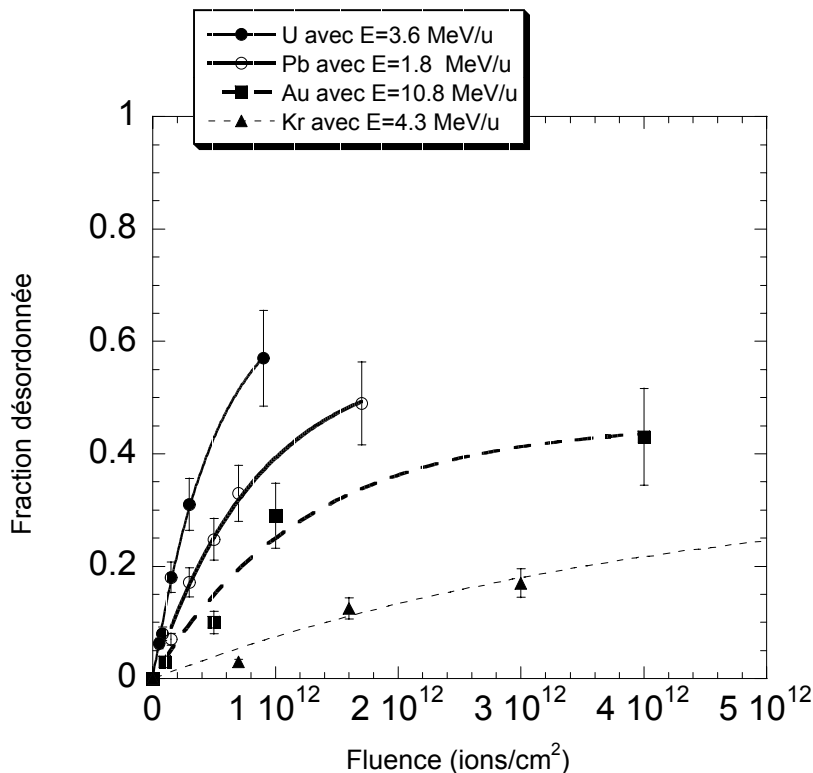
	Seuil en dE/dx (keV/nm)	Régime de transition (keV/nm)	Régime constant (keV/nm)
Efficacité d'endommagement	$5.1 \pm 0.8$	5.1-13.3	$\geq 13.3$
Corrélation	$5.5 \pm 1.1$	5.5-13.3	$\geq 13.3$
Hauteur de la bosse	$4.8 \pm 1.1$	$\geq 4.8$	-
$\alpha$	-	$\geq 13.3$	-
Diamètre réel	-	-	$\geq 5.4$

**Tableau IV-9** : présente le résultat des analyses AFM dans  $\text{CaF}_2$ .

### IV-1-II. Les résultats du $\text{CaF}_2$ obtenus par C-RBS

Nous rappelons que la technique de rétrodiffusion de Rutherford en canalisation permet de mesurer le pourcentage du désordre qui résulte suite à une irradiation. Pour effectuer cette étude, le fluorure de calcium a été irradié par différents ions allant de l'oxygène à l'uranium couvrant ainsi un intervalle de perte d'énergie de 1.3 keV/nm jusqu'à 35.4 keV/nm. Le tableau IV-10 donne l'ensemble des paramètres d'irradiation.

Pour chaque ion utilisé, différentes fluences ont été utilisées. La figure IV-13 donne l'évolution de la fraction désordonnée définie dans le chapitre précédent en fonction de la fluence utilisée. Cette fraction désordonnée donne la valeur du désordre dans la structure cristalline de l'échantillon. Elle suit une loi de la forme  $F_d = m_1(1-\exp(-m_2 \cdot \text{fluence}))$ . Ces résultats concernent seulement le réseau de calcium.  $m_1$  est la saturation,  $m_2$  la section d'endommagement et  $m_1 \times m_2$  la pente initiale.

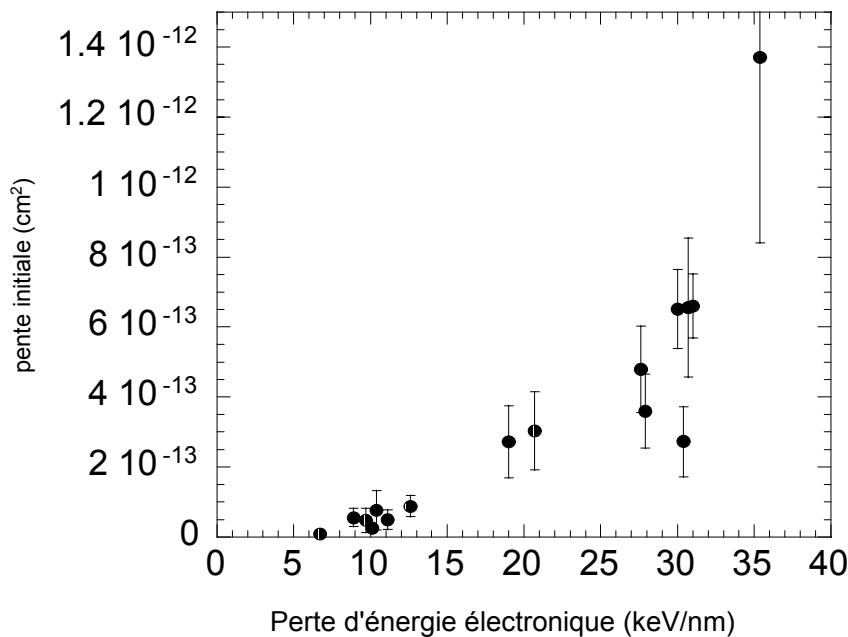


**Figure IV-13** : Evolution de la fraction désordonnée dans le cas du  $\text{CaF}_2$  en fonction de la fluence dans le cas des ions cités dans la légende.

L'évolution de la fraction désordonnée en fonction de la fluence indique, que le désordre créé augmente initialement avec la fluence pour atteindre une valeur de saturation. La cinétique de création du désordre est spécifique à chaque ion. Cette dernière est étudiée en fonction du  $dE/dx$ , à l'aide de deux paramètres : la pente initiale et la saturation.

#### IV-1-II-a. Etude de la pente initiale en fonction de la perte d'énergie électronique

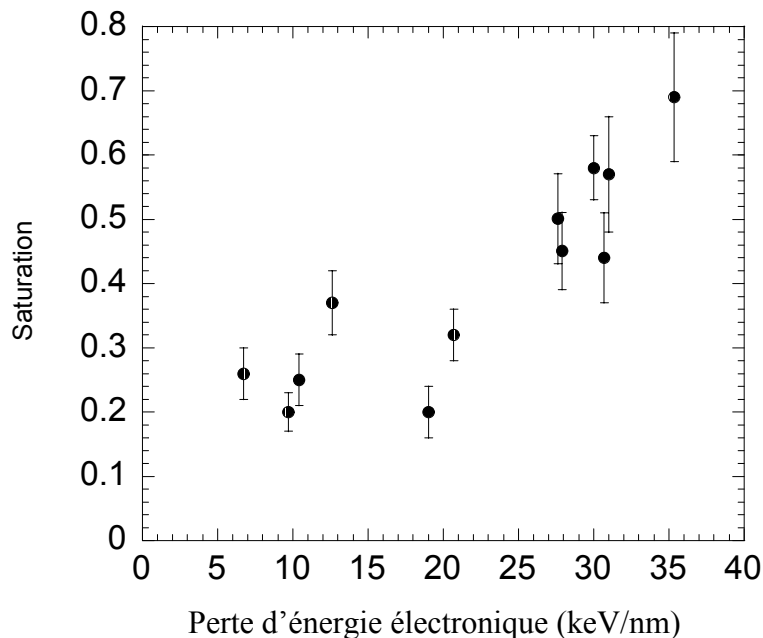
La pente initiale est déterminée par la pente à l'origine de chaque courbe (figure IV-13) pour chaque ion. Elle renseigne sur le désordre créé quand il n'y a pas de recouvrement de défauts. La figure IV-14 illustre l'évolution de la pente initiale en fonction de la perte d'énergie. La pente initiale augmente avec la perte d'énergie. En faisant un zoom de cette figure, cette dernière nous permet d'extraire un seuil de réponse du  $\text{CaF}_2$  aux excitations électroniques égal à  $(6.0 \pm 1.8) \text{keV/nm}$ .



**Figure IV-14** : Evolution de la pente initiale déduite des mesures C-RBS dans le cas du  $\text{CaF}_2$  en fonction de la perte d'énergie électronique

#### IV-1-II-b. Etude de la saturation en fonction de la perte d'énergie électronique

La saturation à grande fluence, présente l'état du matériau irradié, lorsque nous sommes en présence de recouvrement de défauts créés. L'évolution de la saturation est présentée sur la figure IV-15. Au contraire des matériaux amorphisables, cette saturation n'est jamais égale à 1, dans la gamme de  $dE/dx$  étudiée. De plus nous observons une augmentation de la saturation en fonction de la perte d'énergie électronique. Cette saturation, même dans le cas de l'ion le plus lourd n'atteint jamais la valeur 1, indiquant que le  $\text{CaF}_2$  ne peut pas être totalement désordonnée, il subsiste toujours un certain ordre dans ce matériau quand il est soumis aux irradiations avec des ions lourds.

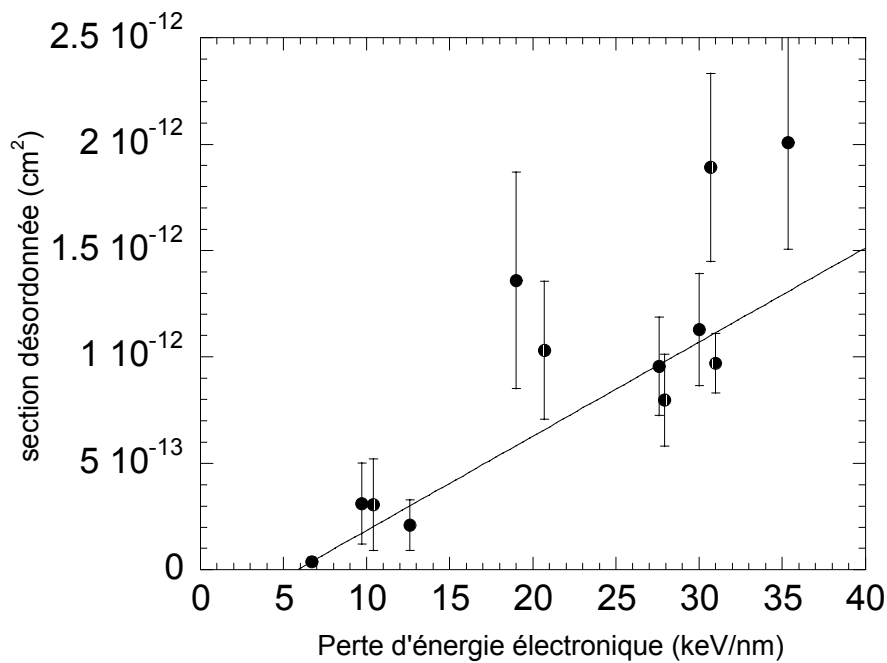


**Figure IV-15** : Evolution de la saturation déduite des mesures C-RBS dans le  $\text{CaF}_2$  en fonction de la perte d'énergie électronique.



#### IV-1-II-c. Etude de la section désordonnée en fonction de la perte d'énergie électronique

Nous pouvons présenter la section désordonnée en fonction de la perte d'énergie électronique. Cette section désordonnée est donnée par le paramètre du fit  $m_2$ . En ajustant l'ensemble des points par une courbe linéaire, ceci nous permet d'extraire un seuil en perte d'énergie électronique pour le  $\text{CaF}_2$  de  $5.8 \pm 1.3$  keV/nm (figure IV-16).



**Figure IV-16** : Evolution de la section désordonnée déduite des mesures C-RBS dans le  $\text{CaF}_2$  en fonction de la perte d'énergie électronique.

#### **IV-1-II-d. Conclusion sur les résultats C-RBS**

La technique de spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford en canalisation, s'est révélée bien adaptée pour l'étude des effets d'irradiation par les ions lourds dans le CaF<sub>2</sub>. Nous avons bien pris le soin de ne pas dépasser la fluence limite de 10<sup>16</sup> ions/cm<sup>2</sup> pour le faisceau d'analyse, afin de ne pas introduire un désordre supplémentaire. Cette technique indique que le CaF<sub>2</sub> est un matériau qui n'est pas totalement désordonné. La saturation du désordre augmente en fonction de la perte d'énergie électronique et ne dépasse guère les 70% pour l'ion le plus lourd. De plus cette technique permet d'obtenir un seuil de la réponse du CaF<sub>2</sub> aux excitations électroniques autour de 5.9± 1.3 keV/nm. Le tableau IV-10 résume l'ensemble des résultats obtenus.

Ions	E(MeV/u)	dE/dx (keV/nm)	Pente initiale (cm <sup>2</sup> )	Saturation	Section désordonnée (cm <sup>2</sup> )	Rayon effectif (cm)
<sup>16</sup> O	13.7	1.3	<1.5 10 <sup>-16</sup>			
<sup>32</sup> S	11.2	2.3	<2. 10 <sup>-15</sup>			
<sup>36</sup> Ar	6.3	4.0	<6. 10 <sup>-15</sup>			
	13.4	2.6	<6. 10 <sup>-15</sup>			
<sup>48</sup> Ca	2.6	6.7	(9.2±2.0)×10 <sup>-15</sup>	0.26±0.04	(3.8±2.0)×10 <sup>-14</sup>	(1.1±0.3) ×10 <sup>-7</sup>
<sup>58</sup> Ni	3.13	9.7	(4.7±3.4)×10 <sup>-14</sup>	0.20±0.03	(3.1±1.9)×10 <sup>-13</sup>	(3.2±0.9) ×10 <sup>-7</sup>
<sup>63</sup> Cu	1	10.4	(7.7±5.6)×10 <sup>-14</sup>	0.25±0.04	(3.1±2.2)×10 <sup>-13</sup>	(3.1±1.1) ×10 <sup>-7</sup>
<sup>76</sup> Ge	3.83	11.1	(4.9±2.8)×10 <sup>-14</sup>			
	7.98	8.9	(5.6±2.6)×10 <sup>-14</sup>			
<sup>84</sup> Kr	4.3	12.6	(8.8±3.0)×10 <sup>-14</sup>	0.37±0.05	(2.1±1.2)×10 <sup>-13</sup>	(2.6±0.3) ×10 <sup>-7</sup>
	9.7	10.1	(2.5±1.0)×10 <sup>-14</sup>			
<sup>129</sup> Xe	2.7	20.7	(3.0±1.1)×10 <sup>-13</sup>	0.32±0.04	(1.0±0.3)×10 <sup>-12</sup>	(5.7±0.9) ×10 <sup>-7</sup>
	7.2	19.0	(2.7±1.0)×10 <sup>-13</sup>	0.20±0.03	(1.4±0.5)×10 <sup>-12</sup>	(6.6±1.2) ×10 <sup>-7</sup>
<sup>197</sup> Au	2.3	27.6	(4.8±1.8)×10 <sup>-13</sup>	0.50±0.07	(9.6±2.3)×10 <sup>-13</sup>	(5.5±0.7) ×10 <sup>-7</sup>
	5.4	30.4	(2.7±1.0)×10 <sup>-13</sup>			
	10.8	27.9	(3.6±1.0)×10 <sup>-13</sup>	0.45±0.06	(8.0±2.1)×10 <sup>-13</sup>	(5.0±0.7) ×10 <sup>-7</sup>
<sup>208</sup> Pb	1.8	30	(6.5±1.1)×10 <sup>-13</sup>	0.58±0.05	(1.1±0.2)×10 <sup>-12</sup>	(6.0±0.7) ×10 <sup>-7</sup>
	4.11	31	(6.6±0.9)×10 <sup>-13</sup>	0.57±0.09	(9.7±1.4)×10 <sup>-13</sup>	(5.6±0.4) ×10 <sup>-7</sup>
<sup>209</sup> Bi	9	30.7	(6.6±1.9)×10 <sup>-13</sup>	0.44±0.07	(1.9±0.4)×10 <sup>-12</sup>	(7.8±0.9) ×10 <sup>-7</sup>
<sup>238</sup> U	3.6	35.4	(1.4±0.5)×10 <sup>-13</sup>	0.69±0.10	(2.0±0.5)×10 <sup>-12</sup>	(8.0±1.0) ×10 <sup>-7</sup>

**Tableau IV-10** : Les ions utilisés ainsi que les résultats obtenus pour l'étude C-RBS du CaF<sub>2</sub> ; les cases où la saturation n'est pas donnée, signifie que les fluences utilisées ne permettent pas d'atteindre ce régime. Pour les ions allant de l'oxygène à l'argon, la valeur de la pente initiale présente la limite supérieure.

### ***IV-2-I. Les résultats de microscopie à force atomique pour le $Y_3Fe_5O_{12}$***

L'étude du  $Y_3Fe_5O_{12}$  par microscopie à force atomique a été faite à titre comparatif. C'est un matériau amorphisable. L'échantillon a été irradié avec des ions de plomb, xénon et Nickel. Le tableau IV-11 résume l'ensemble des irradiations effectuées.

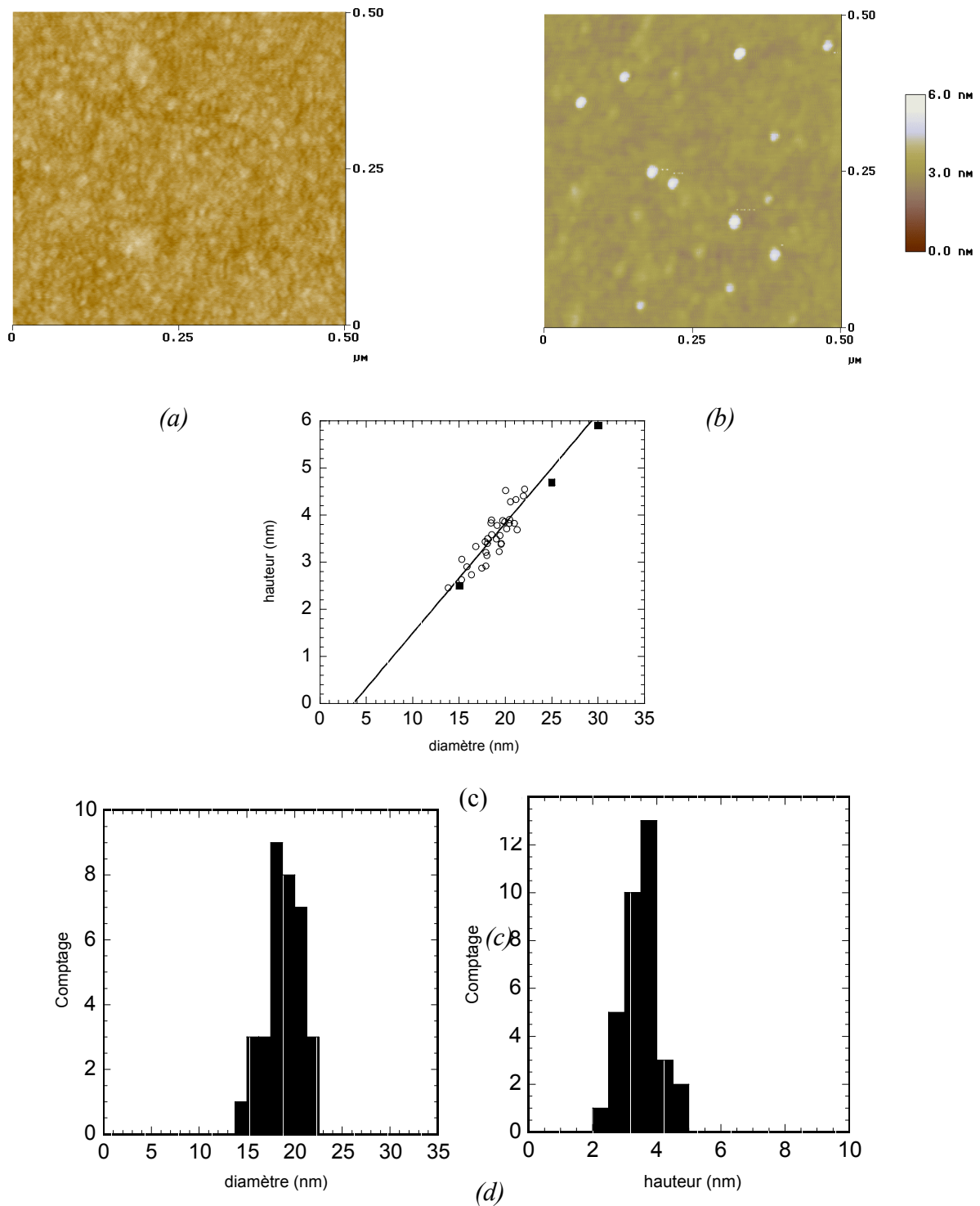
<b>Ions</b>	<b>Energie (MeV/u)</b>	<b>Pouvoir d'arrêt (keV/nm)</b>	<b>Parcours (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	<b>Accélérateur</b>
$^{208}\text{Pb}$	4.6	42	33	GANIL
$^{136}\text{Xe}$	6.4	26	40	GANIL
$^{129}\text{Xe}$	3.7	27.2	23	GANIL
$^{64}\text{Ni}$	7.9	9.8	45	GANIL

***Tableau IV-11 : Les irradiations effectuées pour  $Y_3Fe_5O_{12}$ .***

L'étude a été faite de manière similaire que celle effectuée pour le  $\text{CaF}_2$ . L'irradiation avec des ions xénon à 6.4 MeV/u (figure IV-17 (b)), illustre l'ensemble des résultats expérimentaux. Dans ce cas l'efficacité d'endommagement est égale à  $0.9 \pm 0.1$  (figure IV-17-(c)), montrant que chaque ion induit une bosse. La hauteur et le diamètre moyen sont  $h = 3.6 \pm 0.5$  nm et  $d = 18.8 \pm 2.0$  respectivement. Ils conduisent à un coefficient de corrélation égal à 0.9. En utilisant la procédure d'élimination de l'effet de rayon de courbure de la pointe, nous obtenons pour la relation suivante :  $h = \alpha \times d_r$ ,  $\alpha = 0.22$ , qui conduit à une valeur de  $d_r = 16.4 \pm 1.7$  nm. En faisant la même analyse pour les autres expériences, les résultats expérimentaux sont présentés dans le tableau IV-12. Comme pour  $\text{CaF}_2$ , l'efficacité d'endommagement et le coefficient de corrélation semble corrélés. Ces résultats montrent que pour un  $dE/dx$  égal à 9.8 keV/nm, il y a une diminution de l'efficacité d'endommagement. La hauteur croît avec le  $dE/dx$  et permet d'extraire un seuil en  $dE/dx = 4.7 \pm 0.7$  keV/nm (figure IV-18-(a)), alors que les diamètres sont constants (figure IV-18-(b)). La valeur moyenne des diamètres corrigés est  $16.9 \pm 1.6$  nm. Le tableau IV-12 résume les résultats d'analyse du  $Y_3Fe_5O_{12}$ .

E(MeV/u)	dE/dx(keV/nm)	$E_{ff}$	$\rho$	h(nm)	$\alpha$	$d_r$ (nm)
4.6	42	0.80±0.20	0.83	7.4±1	0.43	17.0±1.5
6.4	26	0.90±0.10	0.90	3.6±0.5	0.22	16.3±1.7
3.7	27.2	0.85±0.15	0.82	4.2±0.6	0.25	16.8±1.2
7.9	9.8	0.040±0.008		2.1±0.31		17.4±2.0

**Tableau IV-12** : Les résultats d'analyse AFM obtenus dans le cas du  $Y_3Fe_5O_{12}$ .

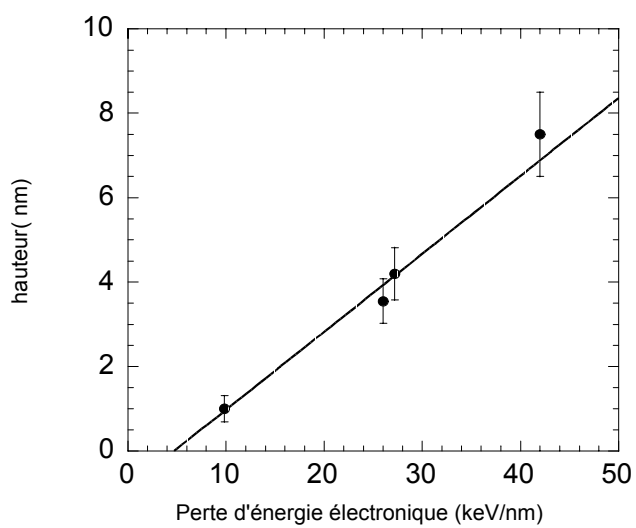


**Figure IV-17** : Irradiation du  $Y_3Fe_5O_{12}$  avec des ions de xénon à  $E=6.4$  MeV/u,  $dE/dx=26$  keV/nm.

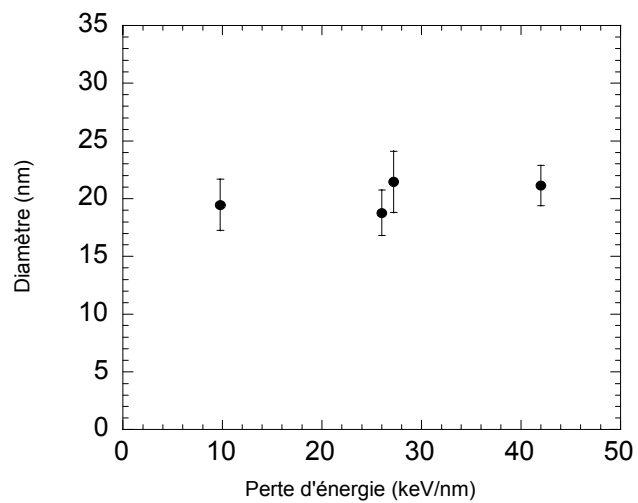
(a,b) Image AFM vierge et irradiée à une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup> (12 impacts)

(c) Présentation de la hauteur en fonction du diamètre. Les cercles : mesures AFM, les carrés : simulation

(d) Distribution des diamètres et des hauteurs.



(a)



(b)

**Figure IV-18 :** Evolution de la hauteur moyenne(a) et du diamètre moyen observé par AFM, (b) en fonction de la perte d'énergie électronique.

### IV-3. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

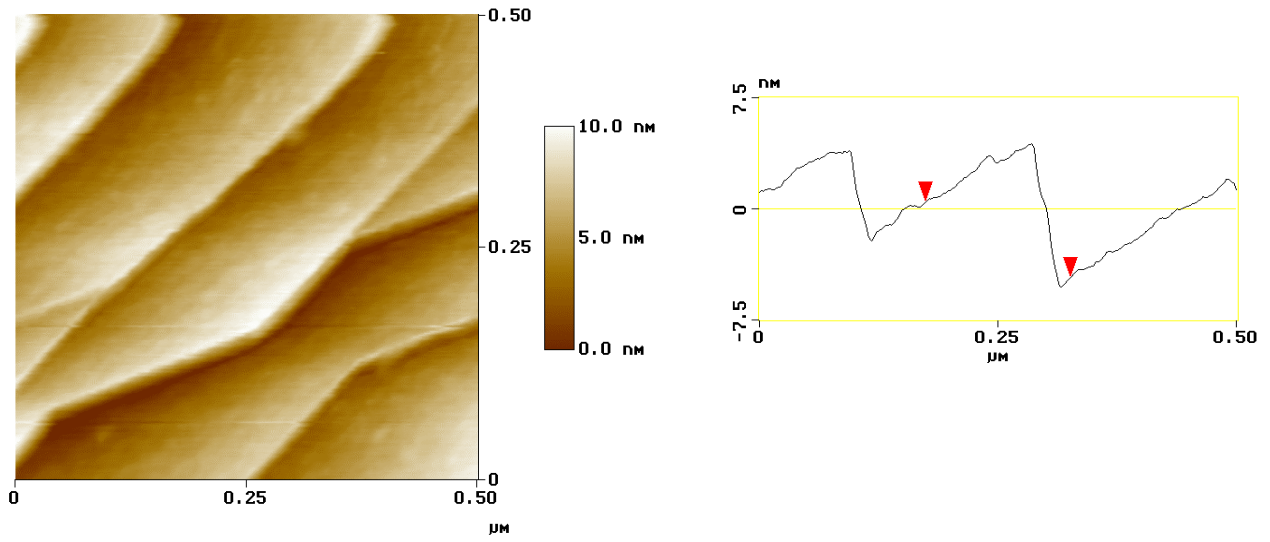
#### IV-3-I. Les résultats du Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> par microscopie à force atomique

L'état de la surface du saphir n'est pas très adapté pour déterminer les caractéristiques des impacts à cause de l'existence de marches comme indiquée sur la figure IV-19. De ce fait nous n'avons pas pu analyser tous les impacts présents à la surface. Les irradiations ont été faites pour couvrir la gamme de dépôt d'énergie comprise entre 10.5 et 43 keV/nm, comme indiqué sur le tableau IV-13. Nous commencerons par présenter les résultats des ions les plus lourds.

Ions	Energie (MeV/u)	Pouvoir d'arrêt (keV/nm)	Parcours ( $\mu\text{m}$ )	Accélérateur
<sup>238</sup> U	2.5	43	21	GSI
<sup>208</sup> Pb	4.6	41	30	GANIL
<sup>197</sup> Au	1	32	11	IRES
<sup>136</sup> Xe	6.4	24.7	40	GANIL
<sup>129</sup> Xe	3.7	26	25	GANIL
	0.8	24	3	GANIL
<sup>78</sup> Kr	7	14	36	GANIL
<sup>86</sup> Kr	1	16.5	8	IRRSUD
<sup>58</sup> Ni	5.5	10.5	29	GANIL

**Tableau IV-13** : Les ions utilisés pour l'étude AFM du Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>





*Figure IV-19 : Image vierge du saphir et un profil de la surface.*

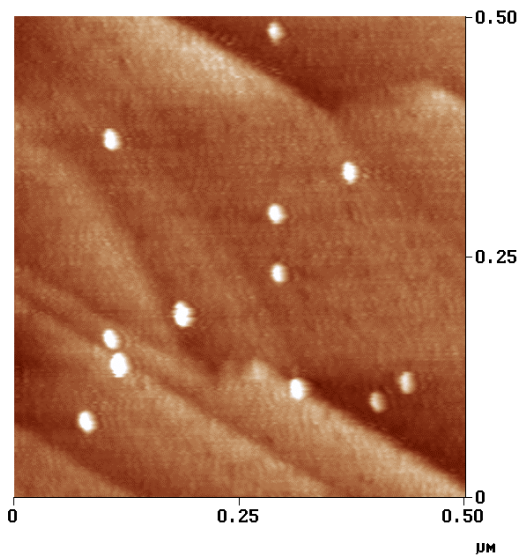
### IV-3-I-a. Irradiation avec des ions uranium et des ions plomb

Comme nous avons utilisé pour ces deux ions, des pertes d'énergies voisines, nous allons détailler les résultats dans le cas de l'irradiation avec les ions plomb. Les résultats obtenus dans le cas des ions uranium seront présentés dans le tableau IV-14.

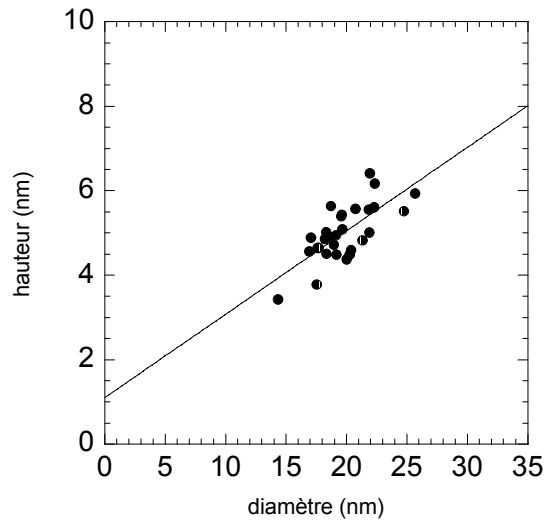
La figure IV-20-(a) présente une surface du saphir irradié avec des ions plomb à une énergie de 4.6 MeV/u, correspondant à une perte d'énergie électronique de 40.5 keV/nm et une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>. Comme le saphir est un matériau de dureté importante la pointe de microscopie à force atomique est utilisée, juste pendant deux à trois balayages d'une surface de dimension  $(1 \times 1) \mu\text{m}^2$ . Dans le cas de cette irradiation l'efficacité d'endommagement de création de bosses est  $E_{ff} = 0.8 \pm 0.2$ . La présentation de la hauteur en fonction du diamètre est donnée sur la figure IV-20-(b). La projection sur les axes permet d'obtenir  $h = 5.0 \pm 0.7 \text{ nm}$  et  $d = 19.8 \pm 2.4 \text{ nm}$  (figure IV-20-(c)). le calcul du coefficient de corrélation est de 0.68. Nous remarquons que nous avons pas une forte corrélation entre la hauteur et le diamètre. Ceci nous a empêché d'utiliser la procédure décrite plus haut pour éliminer l'effet du rayon de courbure de la pointe (impossibilité de déterminer le rayon de courbure de la pointe). La corrélation non forte est peut être due au fait que nous n'analysons pas tous les impacts présents à la surface.

Ion	E(MeV/u)	$E_{ff}$	$R_c(\text{nm})$	$\rho$	d(nm)	h(nm)	$\alpha$	$d_r(\text{nm})$
<sup>238</sup> U	2.5	$1.2 \pm 0.2$		0.63	$17.5 \pm 1.4$	$4.5 \pm 0.6$		
<sup>208</sup> Pb	4.6	$0.8 \pm 0.2$		0.68	$19.8 \pm 2.4$	$5.0 \pm 0.7$		

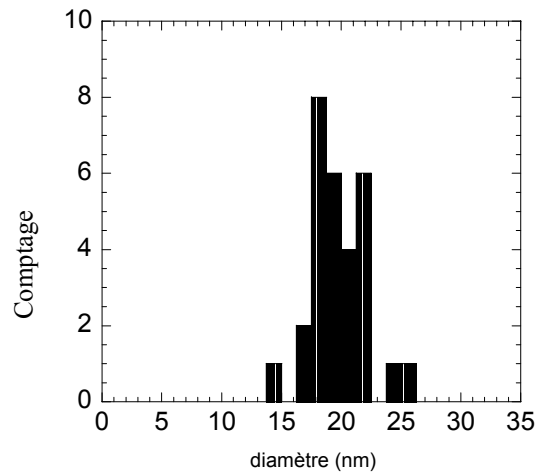
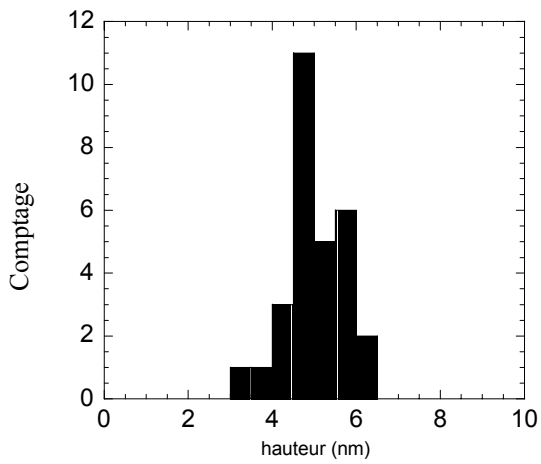
**Tableau IV-14 :** Les résultats d'analyse AFM du  $\text{Al}_2\text{O}_3$  dans le cas de l'irradiation avec des ions d'uranium et plomb.



(a)



(b)



(c)

**Figure IV-20** : Irradiation du  $Al_2O_3$  avec des ions de plomb à une énergie de 4.6 MeV/u,  $dE/dx = 41 keV/nm$

(a) Image AFM à une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup> (nombre d'impact 12)

(b) Présentation de la hauteur en fonction du diamètre

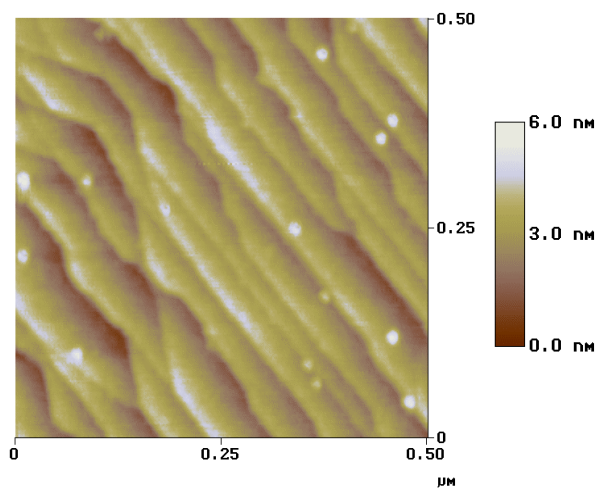
(c) Distribution des hauteurs et des diamètres

### VI-3-I-b. Irradiation avec des ions or

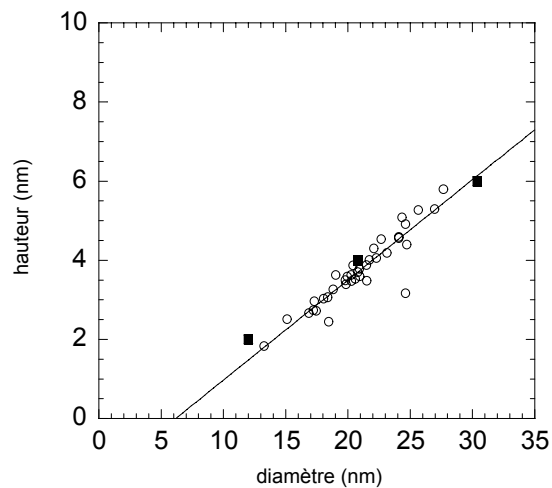
La diminution de la perte d'énergie électronique (dans ce cas  $E=1$  MeV/u, le pouvoir d'arrêt électronique égale à 32 keV/nm) a pour effet de diminuer la hauteur moyenne des bosses créées sur la surface. Le résultat de la surface irradiée du saphir est donné sur la figure IV-21-(a). L'efficacité de création de bosses est  $E_{ff} = 0.9 \pm 0.1$ . Dans ce cas nous distinguons une corrélation claire entre la hauteur et le diamètre (figure IV-21-(b)). Leurs valeurs moyennes sont respectivement  $h = 3.7 \pm 0.9$  nm et  $d = 20.9 \pm 3.2$  nm (figure IV-21-(c)). Ces valeurs permettent d'obtenir un coefficient de corrélation égal à  $\rho = 0.9$  (figure IV-21-(b)). L'extrapolation à  $h = 0$  de la courbe hauteur en fonction du diamètre permet de déterminer un rayon de courbure de la pointe  $R_c = 6.2$  nm. A partir de l'analyse graphique des bosses, on déduit la relation qui lie le diamètre réel avec la hauteur observée. La valeur de la constante  $\alpha = 0.21$  et donc  $d_r = 17.6 \pm 4.3$  nm

Ion	E(MeV/u)	$E_{ff}$	$R_c$ (nm)	$\rho$	d(nm)	h(nm)	$\alpha$	$d_r$ (nm)
$^{197}\text{Au}$	1	$0.9 \pm 0.1$	6.2	0.9	$20.9 \pm 3.2$	$3.7 \pm 0.9$	0.21	$17.6 \pm 4.3$

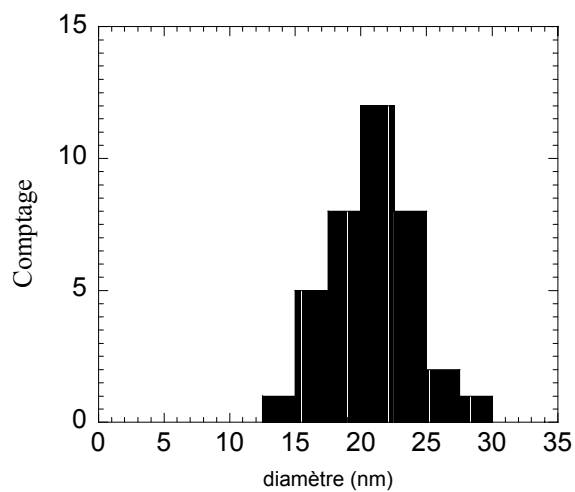
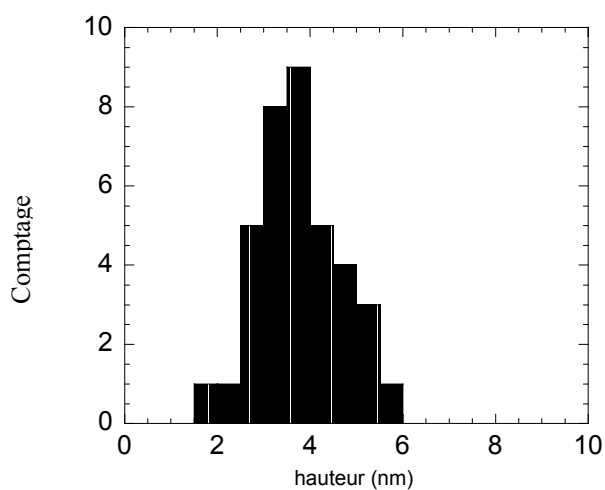
**Tableau IV-15 :** Les résultats d'analyse AFM du  $\text{Al}_2\text{O}_3$  dans le cas de l'irradiation avec des ions or.



(a)



(b)



(c)

**Figure IV-21** : Irradiation du  $Al_2O_3$  avec des ions d'or à une énergie de  $1\text{ MeV/u}$ ,  $dE/dx = 32\text{ keV/nm}$

(a) Image AFM à une fluence de  $5 \times 10^9\text{ ions/cm}^2$ , (nombre d'impact 10 au lieu de 12).

(b) Présentation de la hauteur en fonction du diamètre, les cercles présentent obtenus par AFM, les cercles présentent les résultats de la simulation.

(c) Distribution des hauteurs et des diamètres

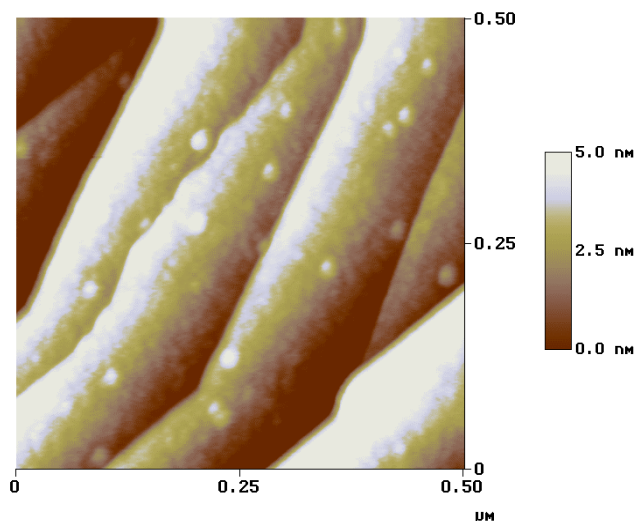
### IV-3-I-c. Irradiation avec des ions xénon

Pour les trois énergies utilisées qui sont 6.4, 3.7 et 0.8 MeV/u correspondant à des pertes d'énergie électronique de 24.7, 26 et 24 keV/nm. Nous présenterons les résultats obtenus dans le cas de l'irradiation avec l'énergie de 0.8 MeV/u. Les résultats des deux autres énergies sont données dans un tableau IV-16.

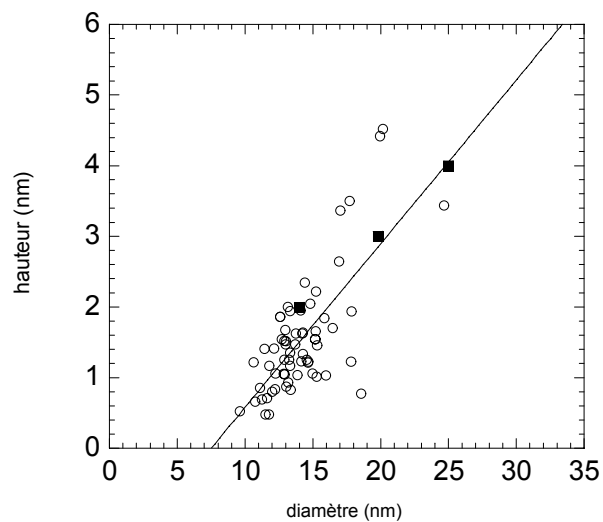
Jusqu'à une perte d'énergie de 24 keV/nm, le nombre d'impact correspond aux erreurs expérimentales près à la fluence utilisée (figure IV-22-(a)), l'efficacité d'endommagement est  $E_{ff} = 0.9 \pm 0.1$ . La hauteur moyenne et le diamètre moyen sont respectivement  $h = 1.5 \pm 0.8$  nm et  $d = 14.1 \pm 2.6$  nm (figure IV-22-(c)). La courbe de corrélation entre la hauteur et le diamètre est donnée sur la figure IV-22-(b). Cette corrélation n'est pas très forte, le coefficient de corrélation calculé est  $\rho = 0.7$ . A partir de la figure IV-22-(b), on déduit un rayon de courbure de la pointe  $R_c = 7.5$  nm et une valeur de la constante  $\alpha = 0.17$  qui relie la hauteur avec le diamètre réel qui est alors égal à  $8.8 \pm 1.9$  nm.

Ion	E(MeV/u)	$E_{ff}$	$R_c$ (nm)	$\rho$	d(nm)	h(nm)	$\alpha$	$d_r$ (nm)
$^{136}\text{Xe}$	6.4	$0.9 \pm 0.1$		0.6	$17.3 \pm 2.2$	$1.4 \pm 0.3$		
$^{129}\text{Xe}$	3.7	$0.9 \pm 0.1$		0.5	$18.1 \pm 4.2$	$1.8 \pm 0.4$		
$^{129}\text{Xe}$	0.8	$0.9 \pm 0.1$	7.5	0.7	$14.1 \pm 2.6$	$1.5 \pm 0.8$	0.17	$8.8 \pm 1.9$

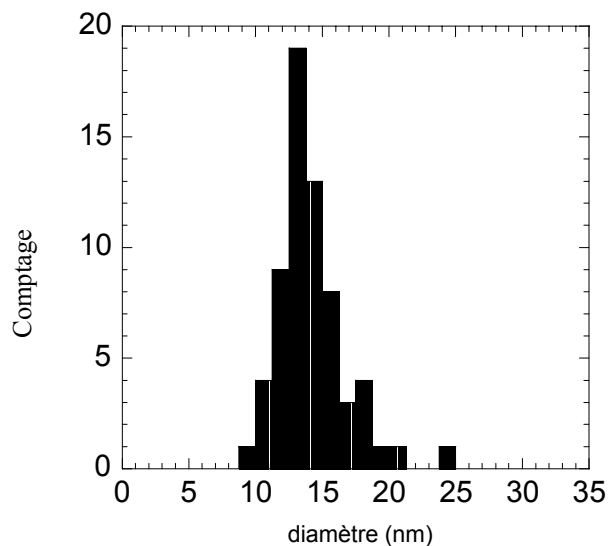
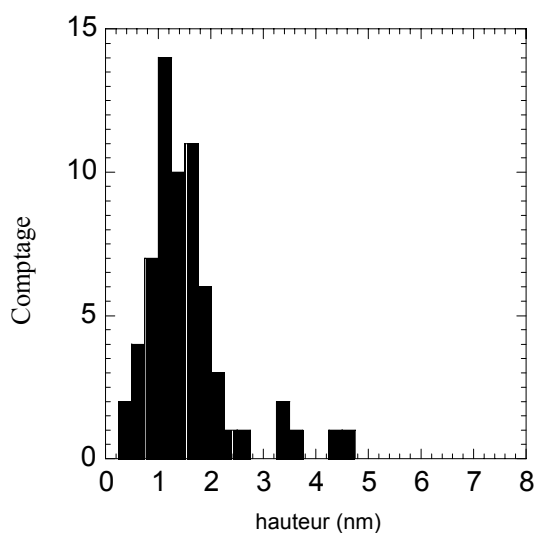
**Tableau IV-16 :** Les résultats d'analyse AFM du  $\text{Al}_2\text{O}_3$  dans le cas de l'irradiation avec des ions de xénon.



(a)



(b)



(c)

**Figure IV-22 :** Irradiation du  $Al_2O_3$  avec des ions du xénon à une énergie de 0.8 MeV/u,  $dE/dx = 24$  keV/nm

(a) Image AFM à une fluence de  $5 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>, (nombre d'impact 11 au lieu de 12)

(b) Présentation de la hauteur en fonction du diamètre, les cercles présentent les mesures AFM, les carrés présentent les résultats de la simulation.

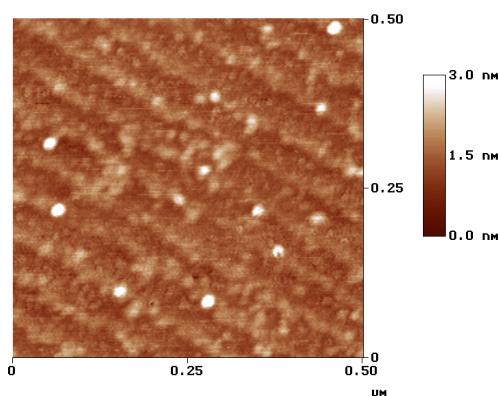
(c) Distribution des hauteurs et des diamètres

### IV-3-I-d. Irradiation avec des ions krypton

Deux énergies ont été utilisées pour l'irradiation avec des ions krypton 1 et 7 MeV/u, correspondant à des pertes d'énergie électronique de 16.5 keV/nm et 14 keV/nm. Pour ces deux irradiations le nombre d'impact vu à la surface ne correspond pas à la fluence utilisée. Notons que dans le cas de ces irradiations nous avons utilisé des échantillons présentant une faible rugosité de surface provenant de l'équipe de Skuratov (Institut de recherches nucléaires, Dubna, Moscou, Russie). L'image de la surface irradiée avec une énergie de 1MeV/u est présentée sur la figure IV-23. L'efficacité d'endommagement est  $E_{ff} = 0.034 \pm 0.01$ , la hauteur et le diamètre moyen sont respectivement  $h = 1.6 \pm 0.5$  nm et  $d = 19.9 \pm 2.8$  nm. Dans ce cas nous n'observons pas de corrélation apparente.

Ion	E(MeV/u)	$E_{ff}$	$R_c$ (nm)	$\rho$	d(nm)	h(nm)	$\alpha$	$d_r$ (nm)
$^{86}\text{Kr}$	1	$0.034 \pm 0.01$			$19.9 \pm 2.8$	$1.6 \pm 0.5$		
$^{78}\text{Kr}$	7	$0.01 \pm 0.003$			$23.3 \pm 6$	$0.8 \pm 0.3$		

**Tableau IV-17:** Les résultats d'analyse AFM du  $\text{Al}_2\text{O}_3$  dans le cas de l'irradiation avec des ions krypton



**Figure IV-23 :** Image AFM à une fluence de  $1 \times 10^{11}$  ions/cm<sup>2</sup> du  $\text{Al}_2\text{O}_3$  avec des ions krypton à une énergie de 1 MeV/u,  $dE/dx = 16$  keV/nm



### IV-3-I-1. Analyse des résultats AFM du Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

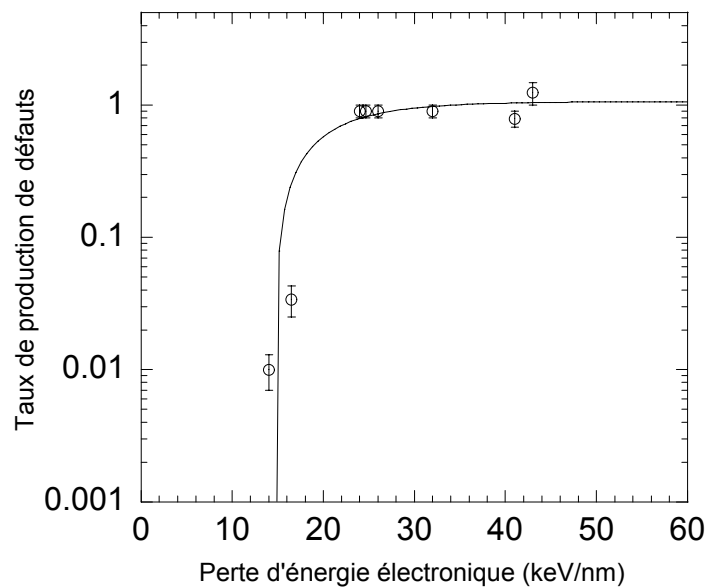
Comme dans le cas du CaF<sub>2</sub>, nous allons étudier l'évolution de l'efficacité d'endommagement, de la hauteur et du diamètre en fonction de la perte d'énergie. L'ensemble des valeurs obtenues pour ces paramètres sont résumées dans le tableau IV-18.

Ion	E(MeV/u)	dE/dx(keV/nm)	E <sub>ff</sub>	ρ	h(nm)	d <sub>c</sub> (nm)
<sup>238</sup> U	2.5	43	1.24±0.24	0.63	4.5±0.6	17±3.4
<sup>208</sup> Pb	4.6	41	0.79±0.17	0.68	5.0±0.7	16.4±3.3
<sup>197</sup> Au	1	32	0.92±0.1	0.90	3.7±0.9	17.2±3.4
<sup>136</sup> Xe	6.4	24.7	0.9±0.1	0.60	1.4±0.3	16.6±3.3
<sup>129</sup> Xe	3.7	26	0.93±0.1	0.50	1.8±0.3	16.9±3.4
	0.8	24	0.9±0.1	0.70	1.5±0.3	16.5±3.3
<sup>78</sup> Kr	7	14	0.01±0.003		0.8±0.3	16.5±3.3
<sup>86</sup> Kr	1	16.5	0.034±0.01		1.6±0.5	16.6±3.3
<sup>58</sup> Ni	5.5	10.5				

**Tableau IV-18** : l'ensemble des résultats AFM obtenus pour Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. La méthode d'obtention des diamètres corrigés sera expliquée par la suite.

### IV-3-I-1-a. Analyse de l'efficacité d'endommagement des bosses en fonction de la perte d'énergie électronique

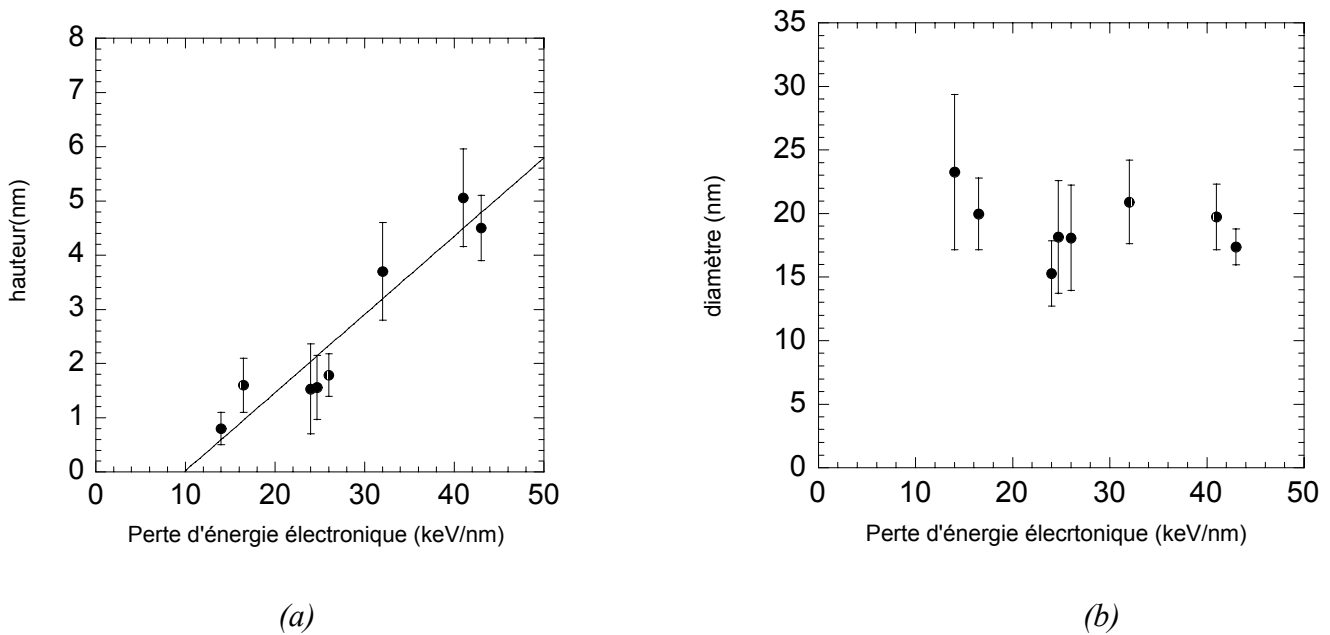
L'efficacité d'endommagement, comme dans le  $\text{CaF}_2$ , a été étudiée en fonction de la perte d'énergie électronique. Le résultat de l'étude est présenté sur la figure IV-24. D'après cette figure l'efficacité d'endommagement pour des pertes d'énergie comprises entre 14 et 20 keV/nm est inférieure à 1. A partir de  $dE/dx = 20$  keV/nm cette efficacité d'endommagement atteint une valeur égale à 1 aux erreurs expérimentales près. Dans ce cas chaque ion incident donne naissance à une bosse.



**Figure IV-24 :** Evolution de l'efficacité d'endommagement en fonction de la perte d'énergie dans  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . La courbe continue est utilisée pour guider les yeux.

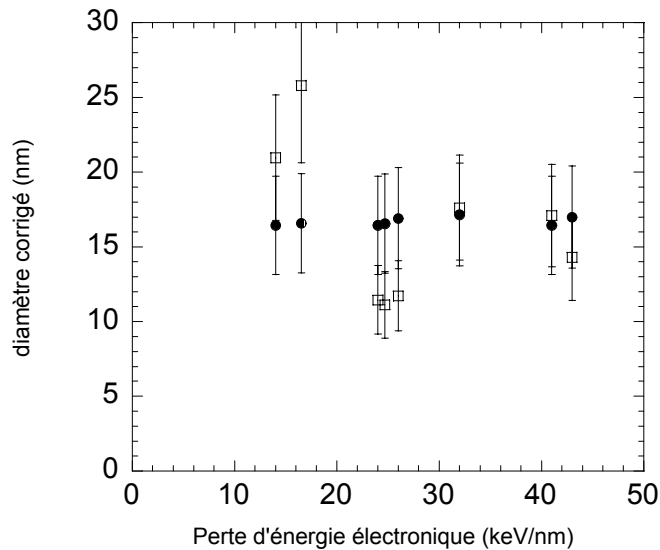
### IV-3-I-b. Analyse des hauteurs et des diamètres des bosses en fonction de la perte d'énergie électronique

Comme dans le cas du  $\text{CaF}_2$ , la hauteur moyenne varie en fonction de la perte d'énergie électronique et les diamètres moyens des impacts restent constants. Cette variation de la hauteur moyenne en fonction de la perte d'énergie électronique est présentée sur la figure IV-25(a). La hauteur moyenne varie de 0.8 nm à 5 nm pour des pertes d'énergie allant de 14 keV/nm à 43 keV/nm. Cette figure fait apparaître une dépendance linéaire entre la hauteur moyenne et le pouvoir d'arrêt électronique. Un seuil de réponse en  $dE/dx$  du saphir, égal à  $(10 \pm 2)$  keV/nm, est déduit.



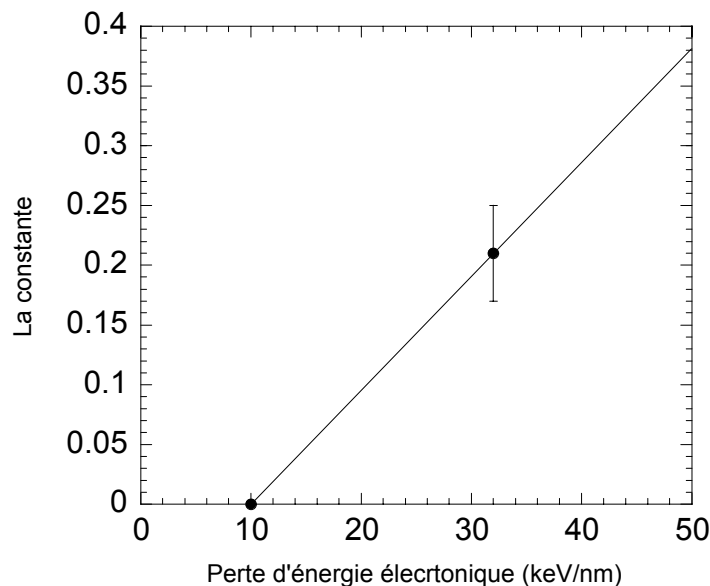
**Figure IV-25 :** Evolution de la hauteur moyenne des bosses (a) et du diamètre moyen des bosses observé par AFM (b) en fonction de la perte d'énergie dans  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

La valeur moyenne des diamètres non corrigés est de  $(19.1 \pm 2.42)$  nm (figure IV-25-(b)). Afin de corriger les diamètres des bosses, la résolution graphique a été utilisée. Comme la corrélation hauteur-diamètre n'est pas forte, nous avons supposé un rayon moyen de courbure de pointe égal à 5 nm. Pour chaque hauteur donnée, nous avons construit des gaussiennes ayant différentes largeurs à mi-hauteurs. Puis nous avons essayé de retrouver la gaussienne pour laquelle la largeur à mi-hauteur après dilatation par la pointe donne la valeur à mi-hauteur de  $19.1 \pm 2.42$  nm (déterminée par AFM). Le résultat de cette analyse pour les différentes pertes d'énergie électronique est présenté sur la figure IV-26. Le diamètre moyen corrigé par cette méthode est égal à  $16.7 \pm 0.3$  nm.



**Figure IV-26 :** Evolution du diamètre moyen corrigé dans  $Al_2O_3$  en fonction de la perte d'énergie. Les cercles pleins présentes les diamètres corrigés de la résolution géométrique. Les carrés vides présentes les diamètres corrigés déduits de la courbe de corrélation hauteur-diamètre.

Nous constatons qu'aux erreurs statistiques près le diamètre corrigé, obtenu par cette procédure est le même que celui déterminé pour l'irradiation avec l'or, en utilisant la courbe de corrélation hauteur-diamètre ( $17.6 \pm 4.3$  nm). Alors que dans le cas de l'irradiation avec des ions xénon ( $E = 0.8$  MeV/u), nous constatons que la valeur du diamètre réel obtenue par la méthode de corrélation hauteur-diamètre est presque deux fois plus petite que le diamètre réel déterminé par la méthode de résolution graphique. Ceci peut être expliqué par le fait, que dans le cas des ions xénon la corrélation entre la hauteur et le diamètre n'est pas forte (figure IV-22-(b)). C'est pour cette raison que nous avons éliminé ce point pour l'étude de la constante  $\alpha$  en fonction de la perte d'énergie électronique. D'après les résultats du  $\text{CaF}_2$ , la constante évolue de manière linéaire avec la perte d'énergie électronique. En utilisant ce résultat pour les points que nous avons : le point de l'or et le point du seuil en perte d'énergie électronique, autour de 10 keV/nm, déterminé par les divers techniques (C-RBS et gonflement), la courbe de la constante obtenue est présentée sur la figure IV-27. La détermination des diamètres réels à partir de la détermination de la constante pour les différentes hauteurs est présentée sur la figure IV-26. La valeur moyenne de ces diamètres est de  $(16.7 \pm 1.2)$  nm. Cette valeur est proche des valeurs moyennes des diamètres corrigés, déterminées par la méthode de résolution graphique, ce qui prouve que la relation de corrélation entre la hauteur et le diamètre existe toujours.



**Figure IV-27 :** Evolution de la constante  $\alpha$  qui lie la hauteur au diamètre réel de la bosse dans  $\text{Al}_2\text{O}_3$  en fonction de la perte d'énergie.

### IV-3-I-c. Conclusion sur les résultats AFM du saphir :

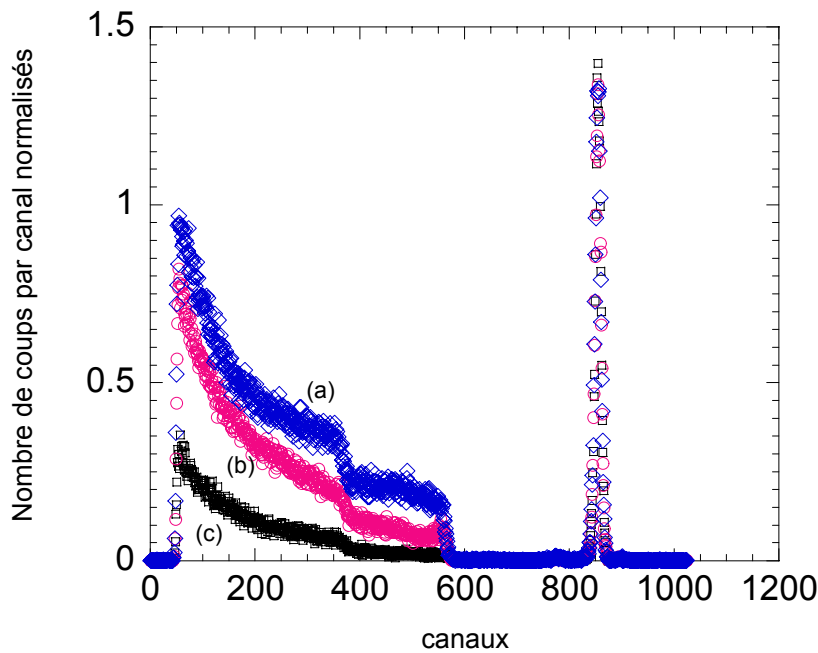
Nous avons observé un comportement surfacique du saphir similaire à celui du  $\text{CaF}_2$  et du  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ . La hauteur des bosses augmente linéairement avec l'augmentation de la perte d'énergie et permet d'obtenir un seuil moyen de réponse du saphir à  $10 \pm 2$  keV/nm. Les diamètres n'évoluent pas avec la perte d'énergie électronique. La valeur moyenne des diamètres corrigés de l'effet de pointe est égale à  $16.7 \pm 0.3$  nm. De plus pour des pertes d'énergie supérieures à 20 keV/nm, chaque ion crée une bosse, alors que pour des pertes d'énergie inférieures à cette valeur l'efficacité d'endommagement est inférieure à 1. Les irradiations faites avec des ions de nickel n'ont pas révélé de bosses sur la surface. L'ensemble des résultats obtenus est résumé dans le tableau IV-19.

	Seuil en dE/dx (keV/nm)	Régime de transition (keV/nm)	Régime constant (keV/nm)
Efficacité d'endommagement	-	14-20	$\geq 20$
Hauteur de la bosse	$10 \pm 2$	$\geq 10$	-
Diamètre réel	-	-	$\geq 14$

**Tableau IV-19** : Résultats des analyses AFM dans  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

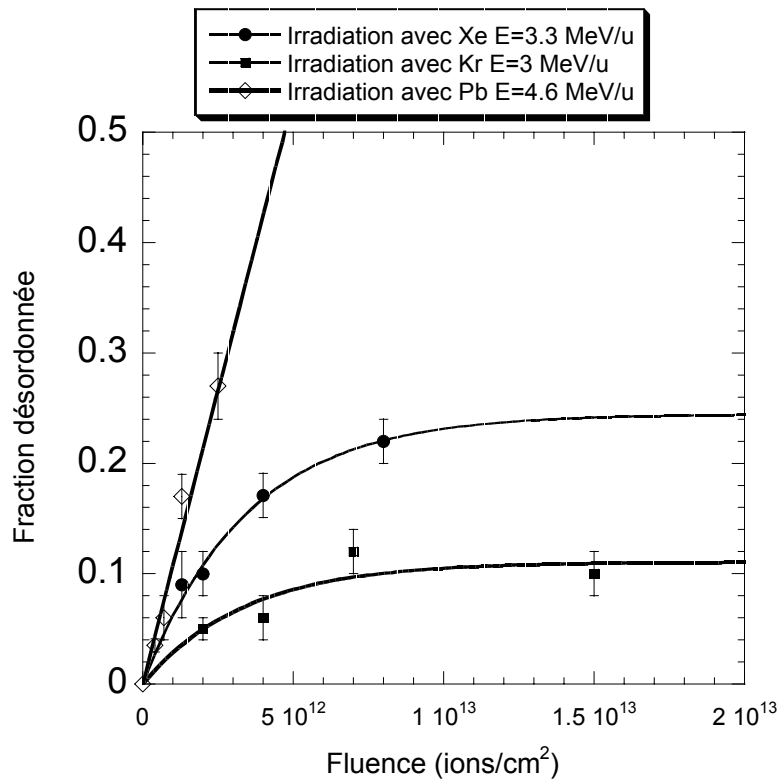
### IV-3-II. Les résultats du saphir obtenus par C-RBS

Nous avons utilisé les mêmes échantillons pour la caractérisation par rétrodiffusion de Rutherford en canalisation et les mesures de profilométrie de surface. Sur ces échantillons, nous avons masqué une partie de l'échantillon afin de comparer la partie irradiée et la partie vierge. Les ions utilisés sont Ni, Kr, Xe, Pb, permettant de balayer un intervalle de perte d'énergie allant de 10 à 41 keV/nm. Un spectre typique de rétrodiffusion de Rutherford en canalisation, concernant le saphir dans le cas de l'irradiation avec des ions plomb à une énergie de 1.8 MeV/u, pour une fluence de  $2.5 \times 10^{12}$  ions/cm<sup>2</sup>, est présenté sur la figure IV-28. Dans notre analyse nous avons étudié seulement le désordre créé dans le réseau aluminium.



**Figure IV-28** : Exemple d'un spectre C-RBS dans le saphir pour une irradiation avec des ions de plomb à une énergie 1.8MeV/u et une fluence de  $2.5 \times 10^{12}$  ions/cm<sup>2</sup>. Le spectre (c) est celui de la partie vierge en canalisation, le spectre (a) est le spectre en position aléatoire, le spectre (b) est celui de la partie irradiée en canalisation.

Le comportement de la fraction désordonnée est étudié en fonction de la fluence. Le désordre augmente en fonction de la fluence (figure IV-29). Dans le cas de l'irradiation avec des ions plomb, les fluences utilisées ne permettent pas d'arriver à la saturation, alors que celle-ci est atteinte dans le cas des ions krypton et xénon. Nous avons utilisé la même méthode pour analyser les données de C-RBS que celle utilisée dans le cas du  $\text{CaF}_2$ , c'est à dire que nous avons ajusté la fraction désordonnée en fonction de la fluence par une relation du type  $F_d = m_1(1 - \exp(-m_2 * \text{fluence}))$ ,  $m_1$  est la saturation,  $m_2$  la section d'endommagement et  $m_1 \times m_2$  est la pente initiale



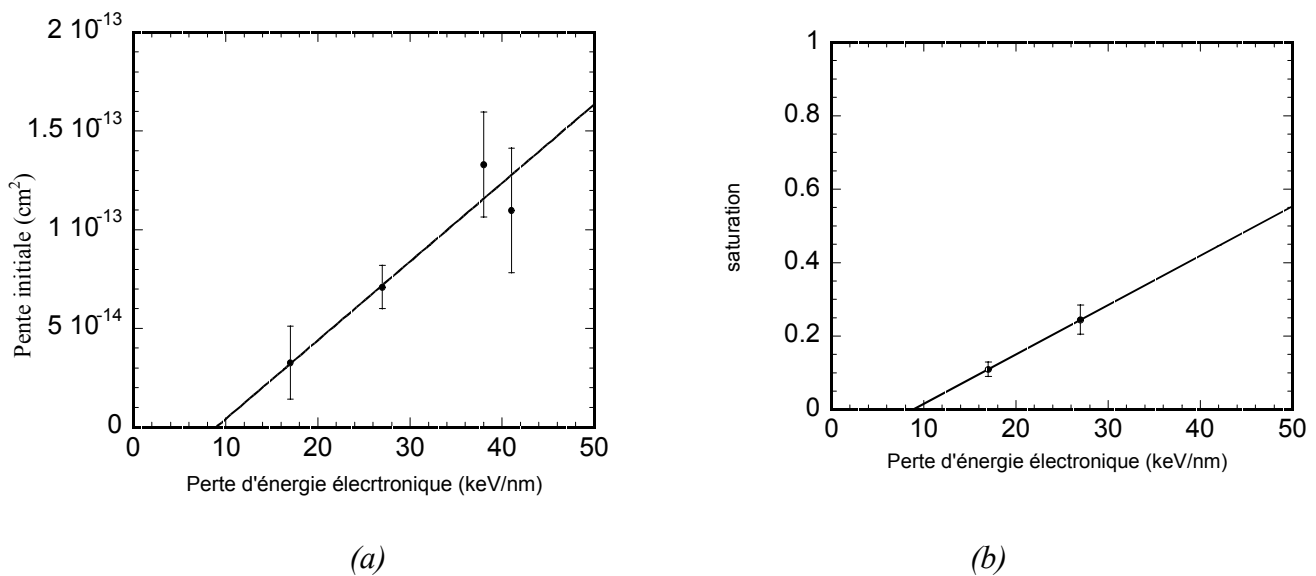
**Figure IV-29** : Evolution de la fraction désordonnée déterminée par C-RBS dans  $\text{Al}_2\text{O}_3$  en fonction de la fluence pour les ions cités dans la légende.



### IV-3-II-a. Etude de la pente initiale et la de la saturation en fonction de la perte d'énergie électronique

Dans le cas du saphir la pente initiale qui est égale à  $m_1 \times m_2$ , évolue de manière linéaire avec la perte d'énergie électronique (figure IV-30 -(a)) et permet de déterminer un seuil de sensibilité du saphir en  $dE/dx$  à  $(9.0 \pm 2)$  keV/nm.

Pour l'étude de la saturation avec la perte d'énergie électronique, nous avons deux points expérimentaux (figure IV-30-(b)). Nous constatons que la saturation augmente avec la perte d'énergie. Un ajustement linéaire de ces deux points permet d'extraire un seuil en  $dE/dx$  égal à  $(9.0 \pm 1.8)$  keV/nm. Ces deux points permettent de déterminer deux sections désordonnées pour le krypton et le xénon qui sont respectivement :  $(30 \pm 11) \text{nm}^2$  et  $(29 \pm 11) \text{nm}^2$ .



**Figure IV-30** : Evolution de la pente initiale (a) et de la saturation (b) déterminées par C-RBS dans le  $\text{Al}_2\text{O}_3$  en fonction de la perte d'énergie électronique.

#### IV-3-II-b. Conclusion sur les résultats C-RBS du saphir :

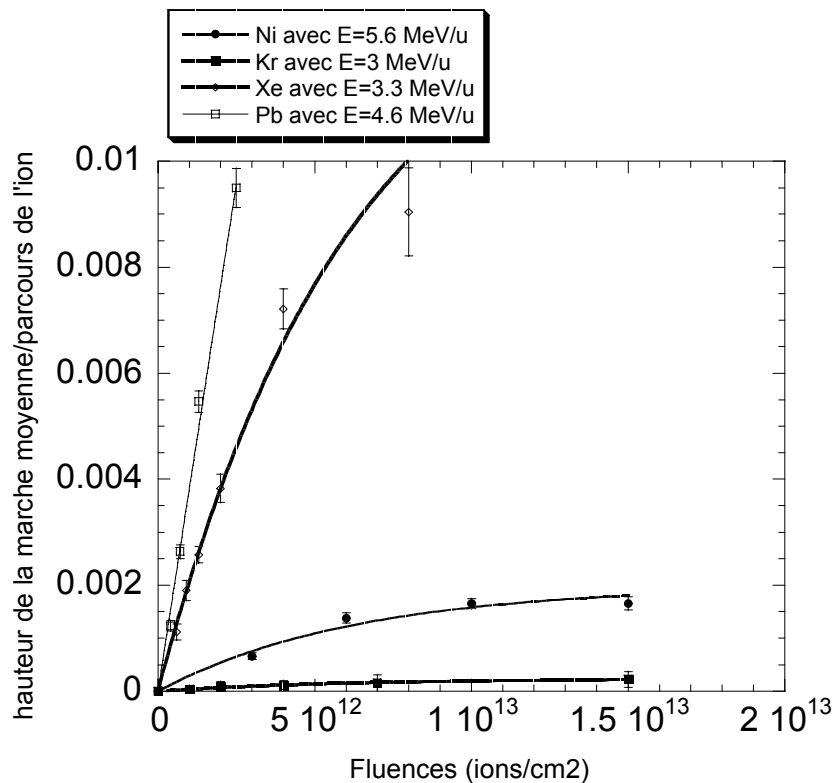
La technique de C-RBS n'a révélé aucune création de défauts en utilisant des ions nickel. Cette technique a permis de constater qu'avec les ions que nous avons utilisé la saturation n'atteint pas la valeur 1, c'est à dire qu'avec les ions krypton et xénon, l'irradiation crée un désordre qui ne peut atteindre l'amorphisation. De plus la saturation du désordre subie par le saphir augmente en augmentant la perte d'énergie électronique. La pente initiale suit également une dépendance linéaire avec la perte d'énergie électronique. Un seuil a été mis en évidence pour la sensibilité du saphir en  $dE/dx$  de  $9 \pm 2$  keV/nm. Le tableau IV-20 résume les résultats obtenus dans le cadre de l'étude du  $Al_2O_3$  par C-RBS.

Ions	E(MeV/u)	$dE/dx$ (keV/ (nm)	Pente initiale ( $cm^2$ )	Saturation	Section désordonnée ( $nm^2$ )	Rayon effectif (nm)
$^{86}Kr$	3	17	$(3.3 \pm 1.9) \times 10^{-14}$	$0.11 \pm 0.02$	$(30 \pm 11)$	$(3.1 \pm 0.6)$
$^{136}Xe$	3.3	27	$(7.1 \pm 3.7) \times 10^{-14}$	$0.24 \pm 0.004$	$(29 \pm 11)$	$(3.0 \pm 0.6)$
$^{208}Pb$	1.8	38	$(1.3 \pm 0.3) \times 10^{-13}$			
$^{208}Pb$	4.6	41	$(1.1 \pm 0.3) \times 10^{-13}$			

**Tableau IV-20 :** Les différentes irradiations ainsi que les résultats C-RBS du saphir

### IV-3-III. Les résultats du saphir obtenus par Gonflement

L'irradiation induit un gonflement du saphir. Ce gonflement varie avec la fluence utilisée, comme nous pouvons le constater sur la figure IV-31. Le gonflement augmente initialement avec la fluence pour atteindre la saturation. Dans certain cas, cette saturation n'est pas atteinte car nous n'avons pas utilisée des fluences assez grandes. De plus cette figure montre que la vitesse d'apparition du gonflement et la valeur du gonflement à la saturation dépendent de la nature de l'ion utilisé. Pour cette raison, nous avons étudié ces deux paramètres indépendamment, en fonction de la perte d'énergie électronique moyenne. Des travaux précédents de M.Toulemonde *et al.* [1] ont démontré que le matériau gonfle le long du parcours de l'ion, c'est pour cette raison que nous allons éliminer l'effet du parcours en normalisant par rapport à ce dernier.



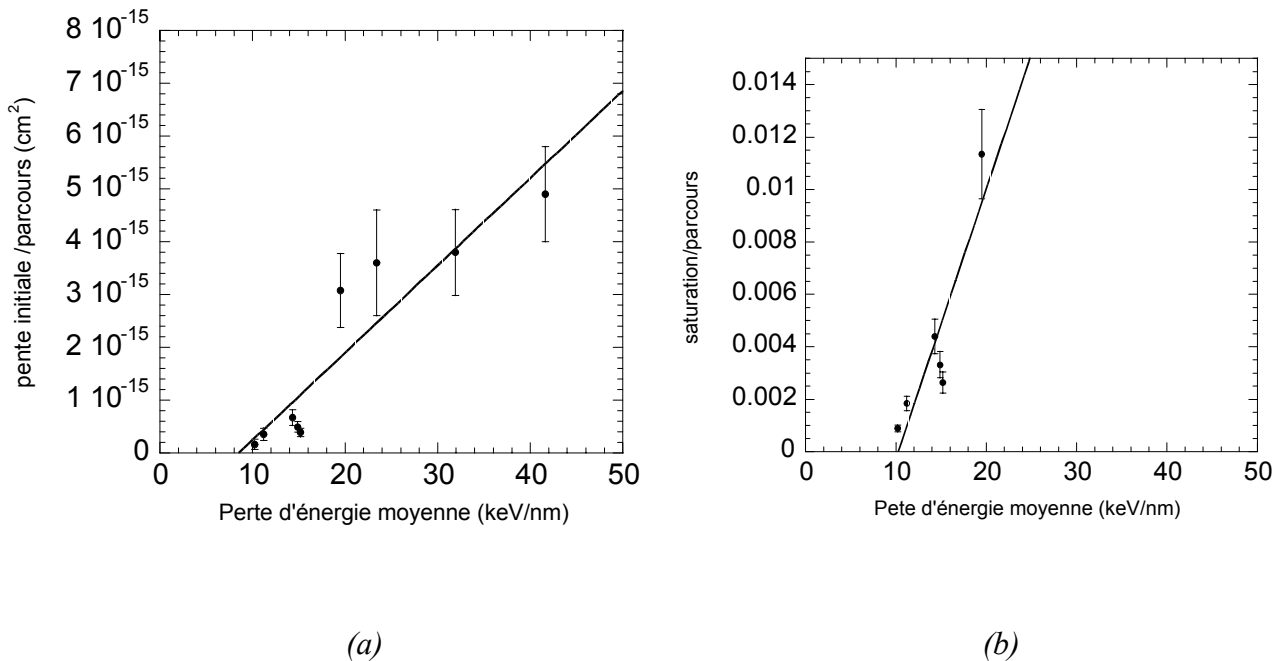
**FigureIV-31 :** Evolution de la hauteur de la marche normalisée au parcours de l'ion, déterminée par des mesures de profilométrie de surface dans  $Al_2O_3$  en fonction de la fluence pour les ions cités dans la légende.

### IV-3-III-a. Etude de la pente initiale

Comme la perte d'énergie de l'ion n'est pas constante le long du parcours de l'ion, nous avons défini une perte d'énergie moyenne le long du parcours de l'ion qui présente le rapport entre l'énergie totale de l'ion et le parcours correspondant. L'étude de la pente initiale avec ce paramètre est présentée sur la figure IV-32-(a). Cette courbe donne des informations concernant la cinétique du désordre quand les traces ne se recouvrent pas. Le gonflement initial suit de manière pratiquement linéaire la perte d'énergie moyenne. Nous pouvons tirer de cette courbe un seuil en  $dE/dx$  de gonflement initial égale à  $(8.5 \pm 1.2)$  keV/nm

### IV-2-III-b. Etude de la saturation

L'étude de la saturation traduit la dynamique de recouvrement des défauts créés. La saturation dans le cas du saphir varie linéairement avec la perte d'énergie moyenne et donne un seuil de  $(10.3 \pm 1.5)$  keV/nm (figure IV-32-(b)).



**Figure IV-32 :** Evolution de la pente initiale et de la saturation normalisée par le parcours de l'ion, déterminée par des mesures de profilométrie de surface dans  $Al_2O_3$  en fonction de la perte d'énergie moyenne.

### VI-3-III-c. Conclusion sur les résultats de gonflement du saphir

Les mesures de gonflement permettent de constater une évolution linéaire de la saturation et de la pente initiale normalisées tous les deux au parcours de l'ion, ces deux paramètres permettent d'extraire un seuil de sensibilité en  $dE/dx$  du saphir à  $(9.3 \pm 0.9)$  keV/nm. Le tableau IV-21 donne l'ensemble des résultats obtenus pour l'étude de gonflement avec la technique de profilométrie de surface.

Ions	E(MeV/u)	$\langle dE/dx \rangle$ (keV/nm)	Pente initiale/ $R_p$ ( $cm^2$ )	Saturation/ $R_p$	Section désordonnée ( $cm^2$ )	Rayon effectif (nm)
$^{58}Ni$	10.6	10.2	$(1.6 \pm 1.0) \times 10^{-16}$	$(8.9 \pm 2) \times 10^{-4}$	$(1.8 \pm 0.8) \times 10^{-13}$	$2.4 \pm 0.4$
	5.6	11.2	$(3.6 \pm 2) \times 10^{-16}$	$(1.8 \pm 0.4) \times 10^{-3}$	$(1.9 \pm 0.5) \times 10^{-13}$	$2.5 \pm 0.4$
$^{86}Kr$	8.3	14.9	$(4.9 \pm 1.0) \times 10^{-16}$	$(3.3 \pm 0.7) \times 10^{-3}$	$(1.5 \pm 0.1) \times 10^{-13}$	$2.2 \pm 0.3$
	3	14.3	$(6.7 \pm 1.5) \times 10^{-16}$	$(4.4 \pm 0.8) \times 10^{-3}$	$(1.5 \pm 0.3) \times 10^{-13}$	$2.2 \pm 0.3$
	5.3	15.2	$(3.9 \pm 0.8) \times 10^{-16}$	$(2.6 \pm 0.5) \times 10^{-3}$	$(1.5 \pm 0.1) \times 10^{-13}$	$2.2 \pm 0.3$
$^{136}Xe$	3.3	19.5	$(3.1 \pm 0.7) \times 10^{-15}$	$(2.7 \pm 0.5) \times 10^{-3}$	$(2.7 \pm 0.3) \times 10^{-13}$	$2.9 \pm 0.4$
$^{208}Pb$	4.6	31.9	$(3.8 \pm 0.8) \times 10^{-15}$			
	1.8	23.4	$(3.6 \pm 1.0) \times 10^{-15}$			
	2.8	41.6	$(4.9 \pm 0.9) \times 10^{-15}$			

**Tableau IV-21** : Irradiations et les résultats de gonflement pour le saphir

### VI-3-IV. Conclusion générale sur les résultats $\text{Al}_2\text{O}_3$

Comme nous venons de constater, quel que soit la caractérisation physique utilisée pour sonder la réponse du saphir suite aux excitations électronique, un seuil moyen en  $dE/dx$  égal à  $9.4 \pm 0.8$  keV/nm a été déterminé. Le tableau IV-22 résume les différents seuils obtenus pour  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Dans le cas de l'irradiation avec des ions nickel, l'AFM et la C-RBS ne détectent aucune création de défauts, alors que les mesures de profilométrie de surface permettent de mesurer un gonflement du saphir. Ceci signifie que dans le cas du nickel le désordre créé dans le volume n'est pas encore arrivé à la surface.

Caractérisation physique	Seuil en $dE/dx$ (keV/nm)
AFM	$10.0 \pm 2.0$
C-RBS	$9.0 \pm 2.0$
Gonflement	$9.3 \pm 0.9$

**Tableau IV-22 :** Résumé générale des différents seuils en  $dE/dx$  obtenus dans  $\text{Al}_2\text{O}_3$

---

#### **IV-4 Références :**

[1] M. Toulemonde, A. Meftah, J.M. Costantini, K. Schwartz, C. Trautmann, Nucl. Instr. Meth. B 146, 426, (1998)

***Chapitre V : Comparaison des résultats expérimentaux  
et interprétation***





## V. Introduction

Ce chapitre est consacré à comparer nos résultats avec les résultats qui existent déjà dans la littérature ainsi qu'à l'exploitation de l'ensemble des résultats, pour trouver une interprétation susceptible d'expliquer les phénomènes qui interviennent dans le processus de formation de défauts dans les isolants soumis aux irradiations par des ions lourds.

Nous commençons par comparer les résultats d'un matériau amorphisable :  $Y_3Fe_5O_{12}$ , ensuite nous passerons à la comparaison des résultats d'un matériau non amorphisable :  $CaF_2$  et nous terminerons par le  $Al_2O_3$  qui est un matériau difficilement amorphisable.

### V-1. Comparaison des résultats du $Y_3Fe_5O_{12}$ par microscopie à force atomique aux résultats existants

Le  $Y_3Fe_5O_{12}$  est un matériau qui a été largement étudié par différentes caractérisations physiques et dans plusieurs gammes de vitesses de l'ion incident [1]. Comme il a été déjà mentionné dans le chapitre II, l'étude de la morphologie de traces en fonction de la perte d'énergie électronique dépend de la vitesse de l'ion.

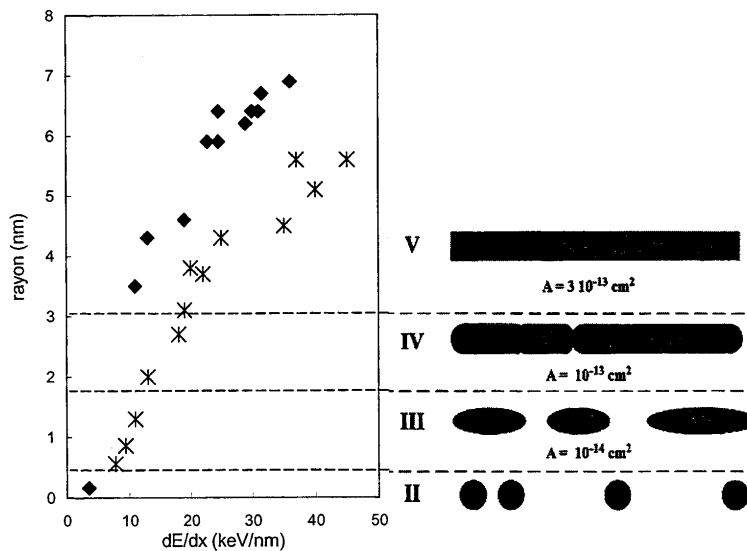


Figure V-1 : la morphologie de traces dans le  $Y_3Fe_5O_{12}$  [1].

Pour des vitesses comprises entre 10 et 39 MeV/u, le seuil en perte d'énergie électronique de création de traces continues et homogènes est autour de 18 keV/nm, alors que, pour des vitesses allant de 0.4 à 3.6 MeV/u, ce seuil en  $dE/dx$  de traces continues et homogènes se trouve à 10 keV/nm. Nous avons effectué notre irradiation à une énergie intermédiaire de 7.9 MeV/u. Ceci signifie, qu'en utilisant la courbe V-1, le seuil en pouvoir d'arrêt électronique d'apparition de traces continues doit apparaître entre 13 et 15 KeV/nm. Pour des pertes d'énergies inférieures à ces valeurs, nous sommes dans le régime de traces discontinues. La microscopie à force atomique a révélé que, pour une perte d'énergie de 9.8 keV/nm, le nombre de bosses créées à la surface ne correspond pas à la fluence utilisée, alors que pour des valeurs de pertes d'énergies supérieures (se trouvant dans le régime de traces continues), c'est à dire pour les irradiations avec des ions xénon et plomb, le nombre d'impact observé à la surface, correspond aux erreurs expérimentales près, à la fluence utilisée.

L'évolution de la hauteur des bosses en fonction de la perte d'énergie électronique dans le  $Y_3Fe_5O_{12}$  a montré une dépendance linéaire, qui permet d'extraire un seuil en perte d'énergie électronique pour le  $Y_3Fe_5O_{12}$  égal à  $4.7 \pm 0.7$  keV/nm, qui est en accord avec le seuil en  $dE/dx$  déterminé précédemment [1] par rétrodiffusion de Rutherford et les mesures de gonflement [2]. Ces résultats nous permettent de dire que les phénomènes observés à la surface sont une conséquence directe de ce qui se produit dans le volume du matériau. Mais si les diamètres des traces dans le volume dépendent de la perte d'énergie électronique [3], ils restent constants à la surface ( $8.5 \pm 0.8$ ) nm.

En conclusion l'apparition de défauts en surface d'un matériau amorphisable est en accord avec les observations faites dans le volume. D'un point de vue plus quantitatif, il n'y a pas de corrélation entre le diamètre des traces déterminées dans le volume avec celui observé à la surface. Toutefois la discontinuité des traces en volume conduit à une diminution de l'efficacité de l'endommagement à la surface .

## **V-2. Comparaison des résultats du $CaF_2$ avec les résultats existants**

Le  $CaF_2$  est un matériau non amorphisable, qui a attiré l'attention de différents groupes de recherches. Le travail de Boccanfuso [4] a révélé l'existence de deux réponses différentes du fluorure de Calcium en perte d'énergie électronique. La première réponse apparaît pour un  $dE/dx$  supérieur à  $5.4 \pm 0.7$  keV/nm. Elle a été déterminée par des mesures de gonflement. Au-delà de cette valeur, le gonflement correspond à une diminution de densité de

( $0.27 \pm 0.03$ )%. Ces mesures de gonflement indiquent la formation de défauts dans le volume du matériau, mais n'apporte aucune indication sur le type de défauts créés. Dans les matériaux amorphisables, le gonflement est lié à l'amorphisation du matériau. Une comparaison des mesures d'absorption optique et de mesures de gonflement dans le  $\text{CaF}_2$  a permis de montrer que le gonflement ne peut pas être attribué aux défauts optiques observés. Ce premier seuil de réponse du  $\text{CaF}_2$  coïncide également avec une cassure en nanograin déduit d'une observation in situ de l'endommagement du  $\text{CaF}_2$  par diffraction X aux grands angles. La deuxième réponse du  $\text{CaF}_2$  correspond à la perte de sa structure initiale mesurée par diffraction X aux grands angle à partir d'un seuil en  $dE/dx$  supérieur ou égal à  $(13 \pm 3)$  keV/nm.

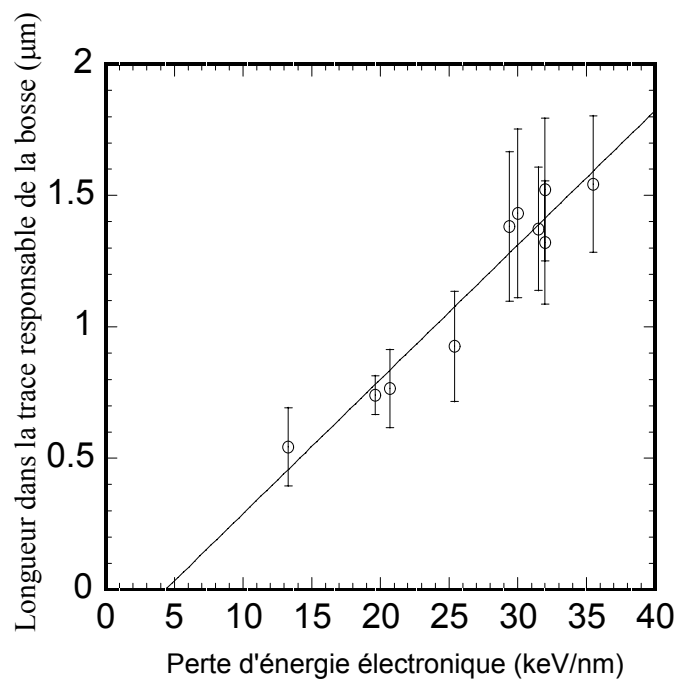
Nos mesures de microscopie à force atomique ont mis en évidence l'apparition de bosse à la surface de l'échantillon pour des  $dE/dx$  supérieurs à 5.1 KeV/nm. Il est à signaler qu'une étude similaire effectuée sur le  $\text{CaF}_2$  à GSI par C. Müller [5] a permis de déterminer un seuil à partir de l'évolution des hauteur des bosses en fonction du pouvoir d'arrêt électronique qui est identique au notre.

Des mesures supplémentaires par rétrodiffusion de Rutherford qui permettent d'étudier le désordre du matériau proche de la surface, montrent la création d'un désordre topologique au dessus d'un seuil en  $dE/dx$  égale à  $5.9 \pm 1.3$  keV/nm. L'efficacité de la création de ce désordre augmente avec le pouvoir d'arrêt électronique (pente initiale). De plus la valeur à saturation de ce désordre augmente aussi avec le  $dE/dx$  pour atteindre 70%. Cette valeur du désordre à saturation n'atteint jamais 100% comme dans le cas des matériaux amorphisables. Les valeurs seuils en perte d'énergie électronique déduite des mesures C-RBS et des mesures AFM des mesures de gonflement et celle de la création de nanograins sont pratiquement identiques aux erreurs expérimentales près.

L'ensemble des résultats indique clairement que la réponse du  $\text{CaF}_2$  est identique que ce soit en surface, proche de la surface et dans le volume. Ce comportement est le même que celui du  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ . Dans ce cas, nous pouvons attribué le phénomène de diminution du nombre d'impact observé en surface par rapport à la fluence utilisée, au régime de création de traces discontinues pour des pertes d'énergies inférieures ou égales à 13 keV/nm.

A partir des observations de l'endommagement, faites par diffusions X aux grands angles, par les mesures de gonflement [4] et par rétrodiffusion Rutherford en cannalisation, la section endommagée augmente en fonction du  $dE/dx$  au dessus d'une valeur seuil supérieure à 5 keV/nm. En conséquence le rayon que l'on en déduit augmente aussi. Ce résultat est encore en opposition avec la valeur constante du diamètre des bosses en surface du  $\text{CaF}_2$ . Au niveau

de la surface, la microscopie à force atomique montre une augmentation de la hauteur quand la perte d'énergie électronique croît, alors que la dimension latérale de la bosse reste constante. Connaissant la variation de densité (0.0027) dans la trace, nous pouvons estimer la longueur dans la trace responsable de l'apparition de la bosse. En supposant une forme conique de la bosse, la relation suivante  $\frac{\Delta V}{V} = \frac{1/3\pi R^2 l}{\pi R^2 e} = 2.7 \times 10^{-3}$ , où  $V$  présente le volume irradié,  $R$  est le rayon de l'impact déterminé par AFM et  $l$  est la hauteur de la bosse, nous permet de déduire  $e$ , la longueur de la trace responsable de la formation de la bosse. Cette longueur est présentée sur la figure V-2 pour les traces continues. Nous constatons qu'elle varie entre 1.5  $\mu\text{m}$  pour l'ion le plus lourd et 0.5  $\mu\text{m}$ .



**Figure V-2 :** Evolution de la longueur dans la trace responsable de la bosse, dans le  $\text{CaF}_2$ , en fonction de la perte d'énergie électronique.

La microscopie à force atomique est capable de sonder la création de défauts qui n'est pas observée par microscopie électronique à transmission car le seuil de sensibilité de la

microscopie électronique à transmission en  $dE/dx$  pour le  $\text{CaF}_2$  se trouve autour de 8 keV/nm (chapitre II).

En conclusion, nous pouvons dire que la sensibilité en perte d'énergie électronique de la surface pour le  $\text{CaF}_2$  est identique à sa sensibilité dans le volume. Par contre les diamètres à la surface sont en désaccord avec ceux déterminés dans le volume.

### **V-3. Comparaison des résultats du $\text{Al}_2\text{O}_3$ avec les résultats existants**

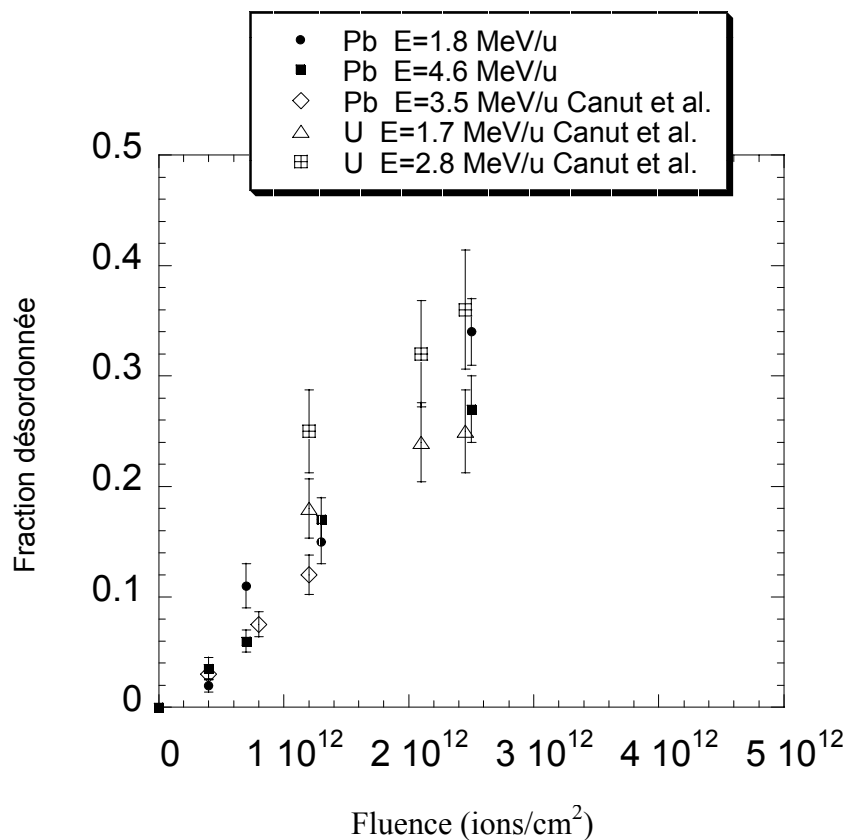
Pendant très longtemps le saphir a été réputé pour son insensibilité aux excitations électroniques induites par les ions lourds. Des études réalisées ces dernières années ont révélé un seuil de sensibilité de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  en  $dE/dx$  autour de 20 keV/nm [6]. Nos résultats expérimentaux, en utilisant trois caractérisations physiques différentes capables de sonder la création de défauts sur la surface, proche de la surface et dans le volume, ont permis de déterminer un seuil moyen de sensibilité du  $\text{Al}_2\text{O}_3$  en perte d'énergie électronique de  $9.4 \pm 0.8$  keV/nm. Comme pour  $\text{CaF}_2$  et  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  voit son efficacité d'endommagement diminuer en surface pour un  $dE/dx$  inférieur à 20 keV/nm. De même que pour les autres matériaux, nous associons cette valeur de  $dE/dx$  au changement de morphologie de la trace (le passage de traces discontinues aux traces continues). Comme le régime de traces continues apparaît à 20 keV/nm, ceci peut expliquer la non révélation des traces par des attaques chimiques dans le saphir dans le cadre de l'étude effectuée par Sigrist et Balzer [7], car les pertes d'énergie utilisées ne dépassaient pas 15 keV/nm.

Nous avons comparé nos résultats de C-RBS avec les résultats déterminés par Canut et al. [6,8]. Ce groupe a effectué des irradiations aux ions d'uranium et plomb comme indiqué dans le tableau V-1 :

Energie (MeV/u)	dE/dx (keV /nm)	R <sub>p</sub> (μm)
3.40	44.2	26.2
2.78	42.7	22.8
1.72	38.8	16.7
0.48	24	7.8
3.5	40.5	24.5

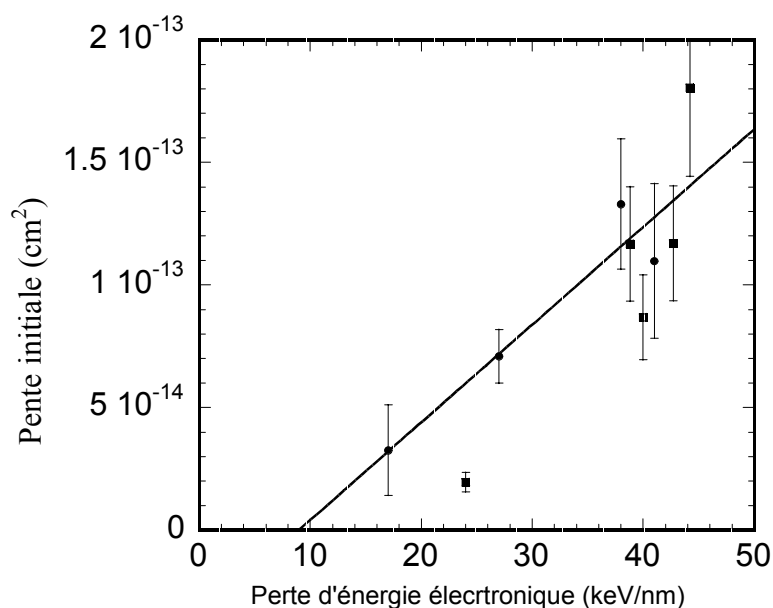
**Tableau V-1** : irradiations effectuées par Canut et al. dans le cadre d'étude C-RBS dans  $Al_2O_3$  [6,8]

Nous remarquons (figure V-3) que pour des pertes d'énergies proches de nos valeurs, nos mesures de fraction désordonnées sont en accord avec celles faites par Canut *et al.*.



**Figure V-3** :  $Al_2O_3$ , mesure en C-RBS : évolution de la fraction endommagée en fonction de la fluence pour les ions donnés dans la légende.

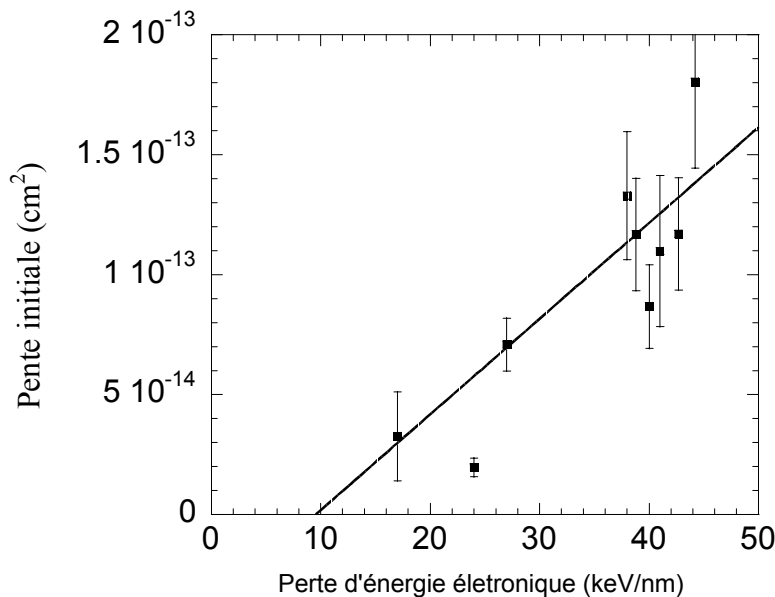
Nous remarquons qu'ils ont ajusté les fractions désordonnées par des fonctions du type :  $F_d = 1 - \exp(-\text{fluence} \cdot m_2)$ ,  $m_2$  est la section désordonnée en  $\text{cm}^2$ . Cette opération d'ajustement suppose que le saphir est complètement amorphisé, car la saturation est prise égale à 1. Or dans notre travail nous avons constaté que la valeur de saturation du désordre dépend de la perte d'énergie électronique. De plus dans le cas de l'irradiation avec des ions de plomb, nous n'avons pas atteint le régime de saturation pour les fluences utilisées. En conséquence, comme les fluences utilisées dans le cas de Canut et al. sont identiques à nos fluences, seule la pente initiale de la fraction désordonnée peut être déduite des expériences d'irradiation avec les ions Pb et U. De plus les observations effectuées par microscopie électronique en transmission dans le cas de l'irradiation avec l'uranium à une énergie de 2.78 MeV/u, ont montré que l'amorphisation n'est pas observée [9]. Nous avons ajusté les fractions désordonnées en fonction de la fluence, dans le cas des résultats de Canut et al. [6,8] par des courbes linéaires. Les pentes initiales ainsi obtenues ont été comparées avec nos résultats sur la figure V-4.



**Figure V-4 :** Comparaison de nos pentes initiales déduites des mesures C-RBS dans  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (les cercles pleins) à celles déterminées par Canut et al. (les carrés pleins). L'ajustement linéaire ne prend en compte que nos points.



L'accord est clair entre les différents résultats obtenus. Cependant le point situé à une énergie de 0.48 MeV/u, semble se trouver en dehors du comportement global de l'ensemble des points. Tous les points à l'exception du point d'énergie de 0.48 MeV/u, ont été ajustés par une droite comme le montre la figure V-5. Le seuil de sensibilité en dE/dx du saphir par la technique de C-RBS se trouve à  $(9.5 \pm 1.7)$  keV/nm.

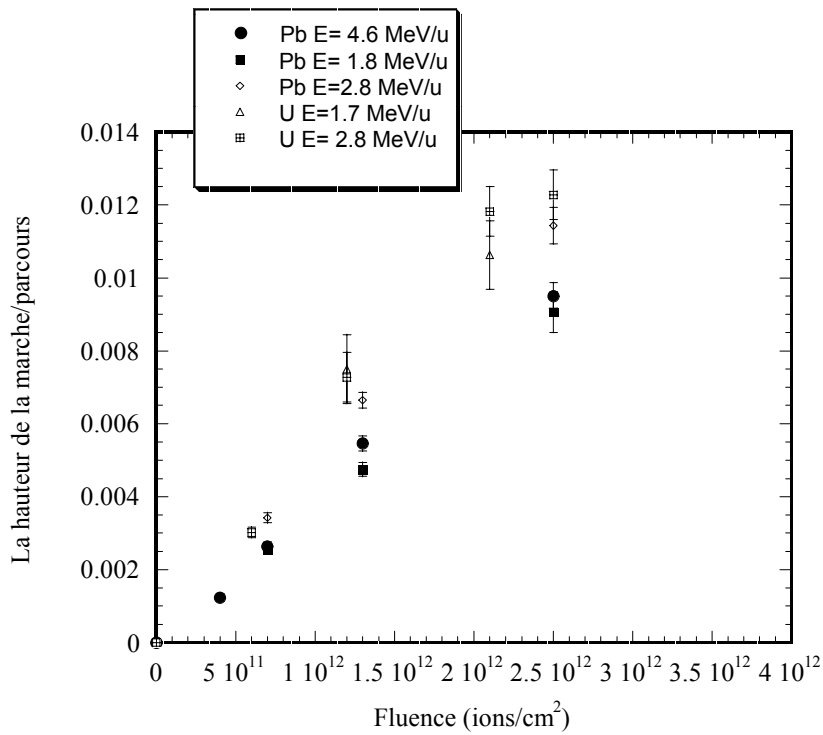


**Figure V-5 :** Ajustement de l'ensemble des résultats de pentes initiales déduites par C-RBS dans  $Al_2O_3$ , par une droite à l'exception du point situé à l'énergie de 0.48 MeV/u.

Dans le cas de l'irradiation de  $Al_2O_3$  avec des clusters de  $C_{60}$  [9], une amorphisation a été observée pour des pertes d'énergie allant de 41.4 keV/nm à 76.2 keV/nm. L'amorphisation a été observée aussi dans le cas de l'irradiation du saphir avec des ions d'iode, pour des fluences supérieures ou égales à  $2.8 \times 10^{14}$  ions/cm<sup>2</sup> [10].

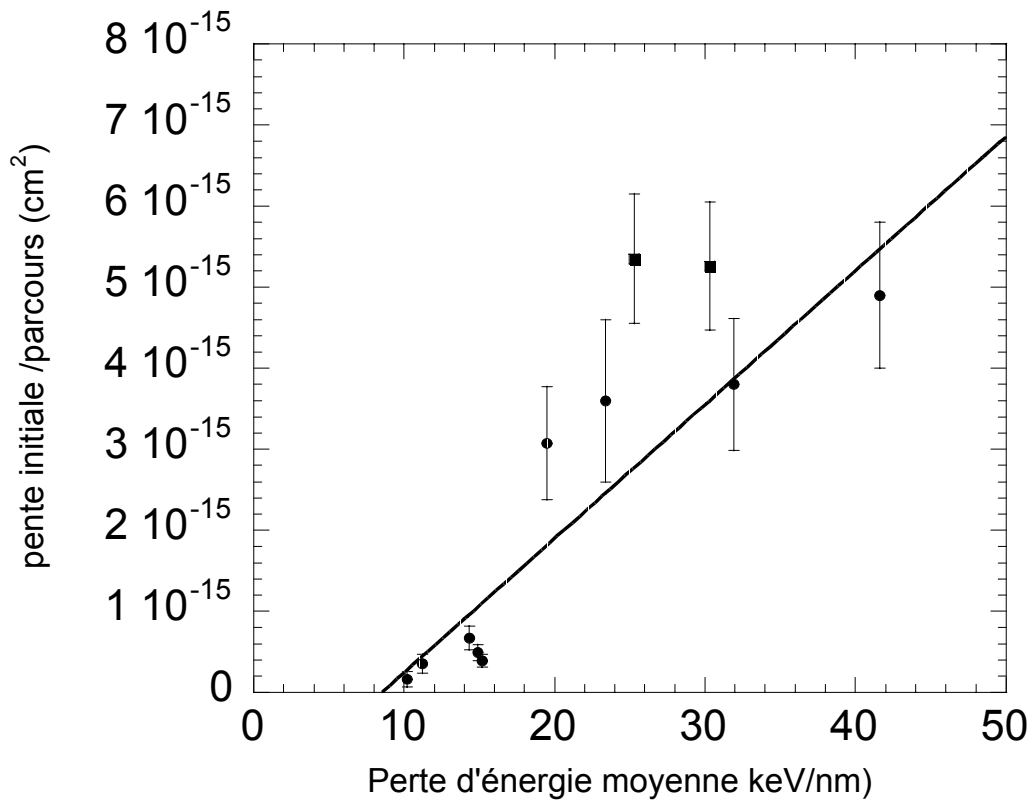
En ce qui concerne les résultats du gonflement, nos résultats obtenus avec l'irradiation par des ions de Pb sont globalement en accord avec ceux de Brenier *et al.* [11] obtenus avec

des ions de U (figure V-6), mais ces résultats ne montrent pas de saturation. comme dans le cas des irradiations avec des ions Xe et Kr.



**Figure V-6 :** Comparaison de nos résultats de gonflement avec ceux de Brenier et al. [10]. Le point se trouvant à  $E=2.8\text{MeV/u}$  pour une fluence de  $6 \times 10^{11}$  ions/cm<sup>2</sup>. L'irradiation avec des ions d'uranium, fait par nous, est rajouté aux points de Brenier et al..

Nous nous sommes limités alors à la présentation de la pente initiale (figure V-7) que ce soit pour nos points ou pour ceux de Brenier et al.[11].



**Figure V-7 :** Comparaison de nos pentes initiales déduites des mesures de gonflement dans  $Al_2O_3$  (les cercles pleins) avec celles déterminées par Brenier et al. (les carrés pleins). L'ajustement linéaire est fait sur nos points.

En faisant un agrandissement de la figure V-7, il semble que les pentes initiales pour lesquelles les pertes d'énergies moyennes sont inférieures à 20 keV/nm suivent une évolution pratiquement linéaire qui permet de déterminer un seuil en  $dE/dx$  d'apparition du gonflement égal à  $(10 \pm 1.5)$  keV/nm.

En conclusion nos résultats de mesures de C-RBS et de gonflement sont en accord avec les résultats trouvés dans la littérature. Le seuil en perte d'énergie électronique pour la sensibilité de la surface et du volume est identique. Les diamètres à la surface ne sont pas corrélés à ceux déterminés dans le volume.

#### **V-4. Synthèse concernant le comportement des isolants soumis aux excitations électroniques :**

Notre étude a bien montré que dans le régime de perte d'énergie électronique pour les trois matériaux étudiés, le comportement de la surface est bien corrélé avec les modifications induites dans le volume du matériau. De plus cette étude a permis de constater que des techniques telles que la microscopie à force atomique, la profilométrie de surface et la rétrodiffusion de Rutherford sont des techniques plus adaptées que la microscopie électronique à transmission pour caractériser l'efficacité d'endommagement par des ions lourds dans les matériaux non amorphisables.

A travers ce travail nous avons pu constater des différences entre les mécanismes d'endommagement par irradiation avec les ions lourds rapides dans les matériaux amorphisables et les matériaux non amorphisables. Pour les matériaux amorphisables le type de défauts créés est bien connu : l'irradiation induit une amorphisation qui a été caractérisée par différentes techniques. Ce désordre total est responsable du gonflement du matériau après irradiation. Par contre dans les matériaux non amorphisables, nous ne connaissons pas exactement les défauts induits par l'irradiation, qui sont responsables du gonflement du matériau. Nous savons actuellement que, dans ces matériaux, il apparaît un désordre topologique qui augmente en fonction de la perte d'énergie électronique et que le désordre total n'est jamais atteint.

Les résultats récents sur le saphir n'ont fait que confirmer son comportement spécifique par rapport aux deux catégories de matériaux amorphisables et non amorphisables. Le seuil de sa sensibilité aux excitations électroniques est toujours plus élevé que les matériaux amorphisables ( $9.8 \pm 0.8$  keV/nm). Notre étude n'a pas permis d'observer une amorphisation de ce matériau, mais les résultats des irradiations avec les clusters affirment la nature amorphe des traces créées. De plus des irradiations avec des ions d'iode à des fluences allant jusqu'à  $2.8 \times 10^{14}$  ions/cm<sup>2</sup> (chapitre II) confirment l'amorphisation de ce matériau avec les ions.

## V-5. Confrontation de nos résultats expérimentaux avec le modèle de la pointe thermique

La présentation des modèles a été faite brièvement dans le chapitre II. Parmi tous les modèles cités, il n'y a que le modèle de la pointe thermique qui prédit quantitativement que le seuil d'endommagement en perte d'énergie électronique de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  doit être égal à 10 keV/nm au lieu de 20 keV/nm comme a été déterminé expérimentalement précédemment. Au vu de nos résultats, nous allons développer ce modèle pour faire une comparaison plus détaillée avec les résultats expérimentaux.

D'après le modèle de la pointe thermique, le projectile dépose son énergie sur les électrons de la cible. Dans une première étape, l'énergie est partagée entre les électrons, dans une deuxième étape, l'énergie est transférée aux atomes du réseau via l'interaction électron-phonon, conduisant à une augmentation importante de la température de la cible le long du parcours de l'ion. Il a été montré que le modèle de la pointe thermique peut décrire le recuit de défauts nucléaires créés dans le Fer et dans le Nickel, de plus ce modèle peut déterminer le seuil en perte d'énergie électronique de création de défauts dans les métaux en supposant que les traces résultent de la transformation de phase solide-liquide [12]. Comme le couplage électron-phonon est plus important dans les isolants que dans les métaux [13], ceci peut donner lieu dans les isolants à une augmentation de température plus importante le long de la trajectoire de l'ion.

### V-5-1. La description mathématique du modèle :

#### V-5-1-a. Définition des paramètres :

Le modèle de la pointe thermique est décrit mathématiquement par deux équations couplées [14], gouvernant la diffusion d'énergie dans le système d'électrons et dans le système du réseau. Elles sont données par :

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla(K_e \nabla T_e) - g(T_e - T) + A(r, t)$$
$$C_a \frac{\partial T_a}{\partial t} = \nabla(K(T) \nabla T) + g(T_e - T)$$

Où  $T_e$ ,  $T$ ,  $C_e$ ,  $C(T)$  et  $K_e$ ,  $K(T)$  sont les températures, la chaleur spécifique et la conductivité thermique respectivement du système électronique et du système atomique.  $g$  est la constante de couplage électron phonon [14].  $A(r,t)$  est la densité d'énergie déposée par l'ion incident à l'instant  $t$ , au rayon  $r$  [15,16].  $A(r,t)$  est normalisée de telle façon que l'intégration sur l'espace et sur le temps donne la perte d'énergie électronique totale.

Les paramètres thermiques du système électronique sont inconnus pour les isolants. Baranov et al. [17] suggèrent que les électrons chauds dans la bande de conduction des isolants se comportent comme les électrons chauds dans les métaux. Dans ce cas, le modèle du gaz d'électrons libres peut être appliqué, conduisant à une valeur de chaleur spécifique qui dépend du nombre d'électrons  $N_e$  qui participent dans le processus de la diffusion d'énergie :

$C_e = \frac{3}{2} N_e k_B$  où  $k_B$  est la constante de Boltzmann. En supposant une densité d'électrons d'approximativement de  $5 \times 10^{22}$  électrons/cm<sup>3</sup>, la chaleur spécifique est égale à  $1 \text{ J cm}^{-3} \text{ K}^{-1}$  [18]. La conductivité thermique est liée à diffusivité thermique par la relation  $K_e = D_e C_e$ . Dans le cadre du modèle d'électrons libres,  $D_e = (1/3)lv_f$ ,  $l$  est le libre parcours moyen des électrons et  $v_f$  est la vitesse de Fermi (autour de  $10^8 \text{ cm s}^{-1}$ ). Cette relation décrit assez bien la diffusion d'énergie sur les électrons à température ambiante dans les métaux nobles comme l'or [18,19] en utilisant une valeur de  $l$  de 40 nm. A température électronique élevée, utilisant une valeur minimale de  $l$  égale à la distance inter-atomique, la relation précédente conduit à  $D_e = 2 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ . Connaissant  $C_e$  et  $D_e$ , la conductivité thermique  $K_e$  est égale à  $2 \text{ J cm}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-1}$ .

La constante de couplage  $g$  est inconnue dans les isolants. Cependant,  $g$  est lié au temps d'interaction électron réseau  $\tau_a$  par la relation  $\tau_a = C_e/g$  [20] et au libre parcours moyen de l'interaction électron réseau par la relation  $\lambda^2 = D_e \tau_a = D_e C_e/g = K_e/g$ . Dans les présents calculs  $\lambda$  va être le seul paramètre libre.

Les deux équations sont résolues numériquement, en tenant compte d'une part de la dépendance en température des paramètres thermodynamiques du réseau qui sont déterminés à partir des mesures effectuées à l'équilibre et d'autre part des transitions de phases "solide-liquide" et "liquide-vapeur".

Ce modèle a été appliqué dans un premier temps pour les matériaux amorphisables [20,21]. Pour les matériaux de ce type, nous avons pris le SiO<sub>2</sub> cristallin. Le couplage électron-phonon a été déterminé en supposant que les diamètres des traces amorphes résultent de la trempe du liquide formé le long du passage de l'ion incident. Dans le cadre de ce modèle, la pulvérisation des atomes de surface peut être associée à la vaporisation. Très

récemment [22] le taux de pulvérisation du SiO<sub>2</sub> quartz a été mesuré. Ce taux a été reproduit par le modèle de la pointe thermique, en utilisant la même valeur du couplage électron-phonon. Ceci confirme l'idée d'une élévation de température le long du passage de l'ion. Ensuite ce modèle a été appliqué à deux matériaux non amorphisables, LiF [23] et le CaF<sub>2</sub> [24]. Il a été impossible de reproduire les traces observés dans le CaF<sub>2</sub> [25], en supposant qu'elles résultent de la trempe d'un liquide. Il a fallu faire l'hypothèse suivante : les traces résultent des atomes qui ont reçu une énergie supérieure à celle nécessaire pour atteindre la vaporisation. La valeur du couplage électron-phonon est alors égale à 3.8 nm. En faisant la même hypothèse pour le LiF, on arrive alors à reproduire les traces observées par la diffusion X aux petits angles (SAXS) et en plus, on associe le gonflement de ce matériau à la phase liquide avec la même valeur du couplage électron-phonon. Cette même association pour les mesures de gonflement a été faite récemment pour le CaF<sub>2</sub> [26]. En conséquence les seuils d'apparition de défauts spécifiques dans le LiF et le CaF<sub>2</sub> sont donc corrélés aux transitions de phase solide-liquide et liquide-vapeur.

Maintenant nous allons voir comment le modèle de la pointe thermique interprète les résultats du saphir.

#### ***V-5-1-b. Les paramètres utilisés***

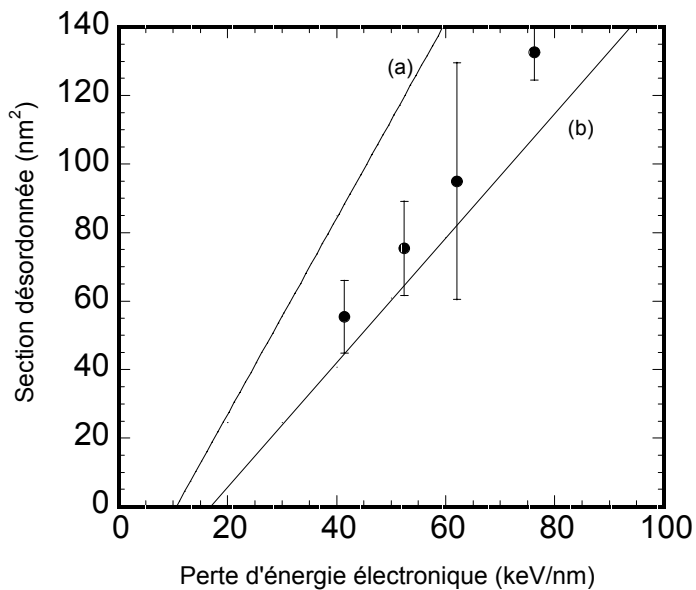
Les paramètres nécessaires pour effectuer le calcul sont donnés dans le tableau V-2.

Chaleur latente de fusion (J.g <sup>-1</sup> )	1089 [27]
Chaleur latente de vaporisation (J.g <sup>-1</sup> )	4715 [28]
Température de fusion(K)	2327 [27]
Température de vaporisation (K)	3253 [27]
Potentiel d'ionisation	10
Masse molaire moyenne (g.mole <sup>-1</sup> )	20.4
Masse volumique (g.cm <sup>-3</sup> )	3.97 [27]

***Tableau V-2 : Les paramètres nécessaires pour le calcul de pointe thermique***

La chaleur spécifique et la conductivité thermique sont données dans la référence [27]

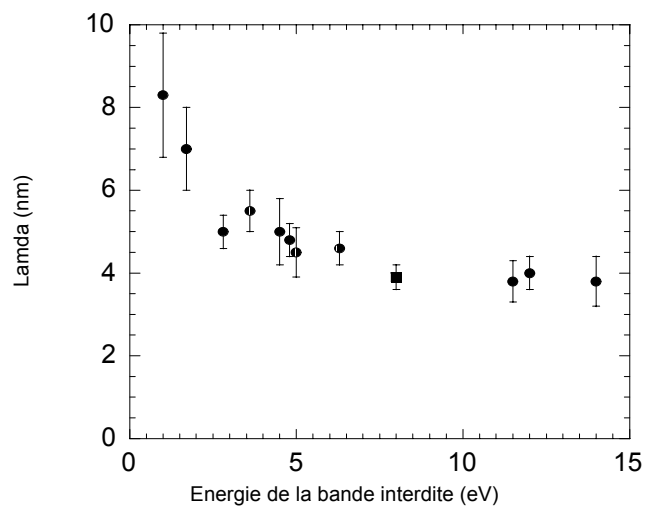
Connaissant la valeur du seuil en  $dE/dx$  d'apparition de défauts dans le  $Al_2O_3$ , nous avons tenté de déterminer le libre parcours moyen de l'interaction électron réseau qui permet d'obtenir ce seuil. Ce seuil, déterminé en utilisant l'ensemble des résultats expérimentaux, est  $9.8 \pm 0.8$  keV/nm. En prenant l'hypothèse que ces défauts résultent de la trempe d'une phase liquide, une valeur de  $\lambda$  égale à  $3.9 \pm 0.3$  nm a été déduite. En utilisant cette valeur de  $\lambda$ , nous avons constaté que les traces amorphes du saphir observées par microscopie électronique, suite aux irradiations par les clusters  $C_{60}$ , correspondent aux changements de phases (solide-vapeur). La figure V-9 présente le résultat de calcul du modèle de la pointe de la thermique en utilisant  $\lambda = 3.9$  nm, de la section (section =  $\pi \cdot R^2$ , R le rayon évaporé (b) ou fondu (a)) qui a subit une évaporation (b) ou une fusion (a), en fonction de la perte d'énergie électronique. Les points expérimentaux (irradiation par les clusters) ont été également présentés sur la même figure.



**Figure V-9 :** le calcul de la pointe thermique dans le cas de l'irradiation du saphir avec les clusters  $C_{60}$ . (a) présente le calcul des sections présentant le changement de phase solide liquide dans le cas des ions, (b) présente le calcul des sections présentant le changement de phase solide vapeur. Les cercles pleins présentent les sections expérimentales déterminées par Canut et al.[9].



Cette valeur de  $\lambda = 3.9 \pm 0.3$  nm a été comparée à la systématique de l'évolution de ce paramètre, déduit pour plusieurs isolants en fonction de l'énergie de la bande interdite  $E_g$  (figure V-10). Pour le  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ayant une bande interdite à  $E_g = 8$  eV, sa valeur du couplage électron-phonon est en accord avec le comportement général. Cet accord confirme aussi les hypothèses faites précédemment pour le  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , en supposant que l'amorphisation est associé à la transformation solide-vapeur [24]. La décroissance de  $\lambda$  en fonction de l'énergie de la bande interdite (figure V-10) est en accord avec la description de Katin et al.[29].



**Figure V-10 :** Evolution de  $\lambda$  en fonction de l'énergie de la bande interdite ' $E_g$ ' pour les isolants. Le point du saphir est présenté par un carré plein.

Le tableau suivant donne le libre parcours moyen de l'interaction électron réseau  $\lambda$  ainsi que l'énergie de la bande interdite pour les isolants présentés sur la figure V-10.

matériau	$E_g$ (eV)	$\lambda$ (nm)
LiF	14	$3.8 \pm 0.6$
SiO <sub>2</sub>	12	$3.8 \pm 0.4$
CaF <sub>2</sub>	11.5	$3.8 \pm 0.5$
Y <sub>3</sub> Al <sub>5</sub> O <sub>12</sub>	6.3	$4.6 \pm 0.4$
UO <sub>2</sub>	5	$4.5 \pm 0.6$
Gd <sub>3</sub> Ga <sub>5</sub> O <sub>12</sub>	4.8	$4.8 \pm 0.4$
LiNbO <sub>3</sub>	4.5	$5.0 \pm 0.8$
SnO <sub>2</sub>	3.6	$5.5 \pm 0.5$
Y <sub>3</sub> Fe <sub>5</sub> O <sub>12</sub>	2.8	$5.0 \pm 0.4$
GeS	1.7	$7.0 \pm 1.0$
BaFe <sub>12</sub> O <sub>19</sub>	1	$8.2 \pm 1.3$

**Tableau V-3** : La valeur des bandes interdites ainsi que la valeur du libre parcours moyen de l'interaction électron réseau pour différents isolants.

### **V-6. Comportement des isolants sous irradiation par des impulsions lasers femtosecondes**

A première vue le modèle de la pointe thermique semble tenir compte de l'ensemble des résultats expérimentaux du saphir. Il est à remarquer que nous avons obtenu une valeur du couplage électron phono  $\lambda$  pour le saphir qui est très proche de la valeur déterminée pour le SiO<sub>2</sub> cristallin  $\lambda = (4.0 \pm 0.3)$  nm [30]. Afin de faire une comparaison quantitative entre les deux matériaux, nous allons décrire les résultats expérimentaux obtenus lors de l'irradiation de ces deux matériaux avec les lasers femtosecondes. Ces lasers présentent un autre moyen d'induire une forte et courte excitation électronique dans les matériaux.

Le développement des lasers d'impulsion femtoseconde est un outil d'un grand intérêt dans la comparaison des modifications induites dans les matériaux irradiés par des impulsions lasers ultracourtes et des faisceaux d'ions lourds. Avec de tels lasers une grande quantité d'énergie peut être donnée à la cible sur une échelle de temps de la femtoseconde comparable à la situation lors du bombardement avec des ions énergétiques. De plus les expériences du

type pompe-sonde permettent de répondre à un certain nombre de questions qui concernent les phénomènes de transport d'énergie dans le matériau. Le principe des expériences pompe-sonde consiste à envoyer une première impulsion qui est la pompe avec une intensité donnée puis envoyer la deuxième impulsion (sonde) avec un certain retard et une intensité beaucoup plus faible afin d'étudier l'effet de la pompe en fonction de ce retard (L'échelle de temps du retard est de l'ordre du picoseconde ou moins). Lors de notre étude nous nous sommes intéressés au cas particulier des solides qui sont optiquement transparents à ces impulsions lasers comme le  $\text{SiO}_2$  cristallin (amorphisable sous irradiations par des ions) et le  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (comportement particulier sous irradiation avec les ions). Aujourd'hui, il n'y a aucun doute que plusieurs propriétés des diélectriques, particulièrement leurs sensibilités aux radiations ionisantes sont déterminées par le devenir des excitations électroniques résultantes de leur injection dans la bande de conduction de ces matériaux.

Les travaux qui ont été faits sur ces diélectriques irradiés par des impulsions de durée sub-picoseconde peuvent être séparés en deux catégories : la première catégorie concerne l'étude du devenir des électrons suite à des irradiations intenses (quelques  $\text{TW}/\text{cm}^2$ ) [31] et la seconde concerne l'étude de la conséquence de ces intenses irradiations sur la cible [32].

Dans la première catégorie d'études, les auteurs essayent de suivre l'évolution des électrons qui sont injectés dans la bande de conduction suite à des processus d'absorption de multi-photons, en utilisant l'interférométrie séquentielle [33] qui est une technique du type pompe-sonde, qui permet de mesurer le changement de phase d'une impulsion sonde, due aux changements d'indice de réfraction induits dans le solide par une impulsion pompe. Ce déphasage est proportionnel à la densité d'électrons injectés dans la bande de conduction par l'impulsion pompe.

Ces expériences montrent qu'il existe une grande différence entre le comportement du  $\text{SiO}_2$  cristallin et du  $\text{Al}_2\text{O}_3$  [34]. Une fois que les électrons se trouvent dans la bande de conduction, leur densité diminuent rapidement dans le cas du  $\text{SiO}_2$  avec une décroissance temporelle de 150 fs, cette décroissance extrêmement rapide de la densité des porteurs libres dans la bande de conduction est incompatible avec le mécanisme de recombinaison radiative, pour lequel la constante temporelle de décroissance est supérieure d'un ordre de grandeur. Ceci est indicatif de piégeage des électrons dans des états profonds dans la bande interdite et probablement la formation des excitons auto piégés. Un exciton auto piégé se forme suite à la liaison d'un électron avec un trou (exciton). Cet exciton ainsi formé peut être piégé dans sa propre déformation de réseau. Ce processus d'auto piégeage se produit dans les matériaux de fort couplage électron phonon.

Dans  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , la densité électronique dans la bande de conduction reste constante au cours du temps et un examen plus détaillé des données montre une décroissance au bout de 100 ps. Il est à noter que dans ce type d'expériences, la densité des électrons mesurée englobe les électrons libres et les électrons piégés dans des états proches de la bande de conduction. Ceci a conduit les auteurs à supposer que les électrons dans le cas du  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , restent libres ou piégés dans des états proches de la bande de conduction.

Les conséquences des irradiations par des impulsions laser femtoseconde sur les cibles sont les claquages des matériaux [35] et des modifications qui apparaissent à la surface telle que l'ablation. Le groupe de Campbell [36] a beaucoup travaillé sur les modifications produites en surface dans différents diélectriques.

L'étude de la pulvérisation [37] du saphir en utilisant une combinaison de la spectrométrie de masse de temps de vol et les techniques femtoseconde de pompe sonde [38], a révélé l'existence de deux phases d'ablation distinctes : une phase douce et une phase forte. La phase douce est caractéristique de l'explosion coulombienne [39] : l'impulsion laser introduit une forte ionisation de la surface. L'émission d'électrons de la surface va laisser une grande charge positive qui n'est pas compensée. La quantité de charge non compensée va être neutralisée soit par la perte de charge dans le processus d'éjection d'ions ou par les électrons arrivant du volume. Ce dernier processus se produit pendant un temps plus long pour les diélectriques que pour les métaux. Quand la densité de charge est suffisante pour l'explosion coulombienne la durée de ce mécanisme est de l'ordre de 1 ps. Dans ce cas les ions  $\text{Al}^+$  et  $\text{O}^+$ , détectés ont le même moment.

La phase forte : Dans ce cas les ions  $\text{Al}^+$  et  $\text{O}^+$  ont des vitesses plus faibles avec des énergies cinétiques égales. Durant cette phase, ils ont observé l'émission d'une lumière qui est interprétée due aux effets du gaz ionisant. Des mesures des distributions angulaires, non résolues en masse, des ions émis montrent une distribution en  $\cos\theta$ .

Des résultats complémentaires [40] à ces expériences concernant le début d'ablation pour différents diélectriques (voir table1) par le même groupe, ont montré que la majorité de l'enlèvement de matière de la surface est constitué principalement par des particules neutres se déroulant sur une échelle de temps de quelques ps, permettant de mesurer un temps de début d'ablation pour le saphir autour de 10 ps. Ceci signifie que pour des temps inférieurs, le taux de particules chargés est tellement faible qu'il n'a pas pu être détecté.

Matériaux diélectriques	Début d'ablation (ps)	Force de couplage électron-phonon [41]
SiO <sub>2</sub> amorphe	2-3	Fort
SiO <sub>2</sub> cristallin	2-3	Fort
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	12	Moyen
MgO	20	Moyen
LiF	4-5	Fort
MgF <sub>2</sub>	4-5	Fort
CaF <sub>2</sub>	4-5	Fort
NaCl	4-5	Fort

**Table 1 :** Temps d'apparition de l'ablation de matière après des excitations laser ultracourtes à une longueur d'onde égale à 800 nm et une durée d'impulsion égale à 120 fs, pour plusieurs diélectriques [41].

Ces expériences montrent que le début d'ablation diffère d'un matériau à un autre. La pulvérisation dans le SiO<sub>2</sub> cristallin et le SiO<sub>2</sub> amorphe commence très tôt comparée au début du phénomène de pulvérisation dans le cas MgO et au saphir. Ceci a été interprété comme une conséquence directe des différences qui existent entre le couplage électron phonon des différents diélectriques. Plus le couplage électron phonon est fort plus l'énergie des électrons est transférée rapidement au réseau. Dans le cas du SiO<sub>2</sub> cristallin comme nous avons vu, la constante de décroissance temporelle des électrons dans la bande de conduction est de 150 fs [34]. Dans ce cas, une grande proportion de l'énergie d'excitation électronique est efficacement transférée au réseau. L'enlèvement de matière dans le saphir se fait sur un temps plus long, ceci est dû au temps plus long du couplage électron phonon que dans le cas du SiO<sub>2</sub> cristallin. Dans le cas du Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> les électrons restent dans la bande de conduction ou piégés dans des états polarons qui sont proches de la bande de conduction pendant 100 ps [34].

## V-7. Confrontation des résultats de la pointe thermique et les résultats expérimentaux déduits par les lasers

Dans le cadre du modèle de la pointe thermique développé pour décrire les transformations induites dans les matériaux par irradiation avec des ions lourds, il est possible de déduire un temps d'interaction électron-phonon pour le quartz ( $\text{SiO}_2$ ) et le saphir ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) sont respectivement 80 et 76 fs. Compte tenu des hypothèses faites dans ce modèle, cette différence dans les valeurs du couplage électron-phonon n'est pas significative et en conséquence ces deux matériaux ont un comportement identique pour ce qui est du transfert de l'énergie des électrons vers les atomes.

Dans le cas des irradiations des lasers pulsés à la femtoseconde, le devenir de l'énergie déposée sur les électrons est différent selon le matériau ( $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Dans le cas de  $\text{SiO}_2$ , il a été mesuré une valeur du temps de relaxation de l'énergie de l'ordre de 150 fs [34] vers le réseau. Cette valeur semble être indépendante de la puissance déposée sur les électrons et est très proche de celle déduite par l'interprétation de l'apparition de l'endommagement induit par les ions lourds. Dans le cas de  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , Le temps de relaxation est de 100 ps pour des petites puissances avec d'énergie du laser [34] alors qu'il est de 10 ps pour des grandes puissances. Même dans ce dernier cas ce temps est très long par rapport à ce qui a été déterminé avec les ions lourds. Cette évolution indique que le temps de transfert de l'énergie des électrons vers le réseau est dépendant de la densité d'énergie d'excitation dans le cas du saphir.

Une extrapolation de cette dernière interprétation peut expliquer la formation de trace amorphe dans le saphir irradié par des clusters de  $\text{C}_{60}$ . En effet avec ces, la densité d'énergie déposée sur les électrons augmente car le dépôt d'énergie linéique est deux fois plus grand que celui d'un ion uranium au maximum du pic de Bragg et sa distribution radiale est confinée dans un cylindre de 1 nm. Cette grande densité d'énergie favorise le transfert rapide de l'énergie entre les électrons et le réseau donnant lieu à des traces amorphes. Alors que l'apparition de l'amorphisation dans le cas des grandes fluences [10] peut être expliquée par l'accumulation de défauts qui finit par atteindre le désordre total.

## V-8. Références

- [1] M. Toulemonde, S. Bouffard, F. Studer, Nucl. Instr. Meth B91, 108, (1994)
- [2] A. Meftah, privée communication
- [3] A. Meftah, F. Brisard, J. M. Costantini, M. Hage-Ali, J.P. Stoquert and M. Toulemonde, Phys. Rev. B 48, 920, (1993)
- [4] M. Boccanfuso, thèse de doctorat de l'université de Caen France (2001)
- [5] C. Müller, M. Cranney, A. El-Said, N. Ishikawa, A. Iwase, M. Lang, R. Neumann, Nucl. Instr. Meth B191, 246, (2002)
- [6] B. Canut, A. Benyagoub, G. Marest, A. Meftah, N. Moncoffre, S.M.M. Ramos, F. Studer, P. Thevenard, M. Toulemonde, Phys. Rev. B 51, 12194, (1995)
- [7] A. Sigrist, R. Balzer, Helv. Phys. Acta. 50, 49 (1977)
- [8] B. Canut, S.M.M. Ramos, P. Thevenard, N. Moncoffre, A. Benyagoub, G. Marest, A. Meftah, M. Toulemonde, F. Studer, Nucl. Instr. Meth B80/81, 1114, (1993)
- [9] S.M.M. Ramos, N. Bonardi, B. Canut, S. Bouffard, S. Della-Negra, Nucl. Instr. Meth. B143, 319, (1998)
- [10] T. Aruga, Y. Katano, T. Ohmichi, S. Okayasu, Y. Kazumata, Nucl. Instr. Meth. B 166-167, 913, (2000)
- [11] R. Brenier, B. Canut, S.S.M. Ramos and P. Thevenard, Nucl. Instr. Meth. B 90, 339 (1994)
- [12] Ch. Dufour, Z.G. Wang, E. Paumier, M. Toulemonde, Bull. Mater. Sci., Vol. 22, No. 3, 671, (1999)
- [13] R.F. Haglung, R. Kelly, Math. Phys. Medd. 43, 527, (1993)
- [14] M.I. Kaganov, I. M. Lifshitz, L.V. Tanatarov, Sov. Phys. JETP 4, 173, (1957)
- [15] M.P. R. Waligorski, R.N. Hamm, R. Katz, Nucl. Tracks Radiat. Meas. 11, 309, ( 1986)
- [16] B. Gervais, S. Bouffard, Nucl. Instr. Meth. B88, 355, (1994)
- [17] I.A. Baronov, Yu. V. Martinenko, S.O. Tsepelevitch, Yu. N. Yavlinskii, Sov. Phys. Usp. 31, 1015, (1988)
- [18] Ch. Dufour, A. Audouard, F. Beuneu, J. Dural. J.P. Girard, A. Hairie, M. Levalois. E. Paumier, M. Toulemonde, J. Phys. : Condens. Matter 5, 4573, (1993)
- [19] Ch. Dufour, Z.G. Wang, M. Levalois, P. Marie, E. Paumier, F. Pawlak, M. Toulemonde, Nucl. Instr. Meth. B107, 218, (1996)
- [20] M. Toulemonde, J.M. Costantini, Ch. Dufour, A. Meftah, E. Paumier, F. Studer, Nucl. Instr. Meth. B 116, 37, (1996)

- [21] A. Meftah, M. Djebara, N. Khalfaoui, M. Toulemonde, Nucl. Instr. Meth. B 146, 431 (1998)
- [22] M. Toulemonde, W. Assmann, C. Trautmann, F. Grüner, Phys. Rev. Lett. 88, 057602, (2002)
- [23] C. Trautmann, M. Toulemonde, K. Schwartz, J. M. Costantini, A. Muller Nucl. Instr. Meth. B 164, 165, (2000)
- [24] M. Toulemonde, Ch. Dufour, A. Meftah, E. Paumier, Nucl. Instr. Meth. B 166, 903 (2000)
- [25] J. Jensen, A. Dunlop, S. Della-Negra, Instr. Meth. B 141, 753 (1998)
- [26] M. Boccanfuso, thèse de l'université de Caen France (2001)
- [27] Smithells Metals, Eric A Brands, Six Edition (1983)
- [28] Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie, Verlag Chemie
- [29] V.V. Katin, Yu.V. Martinenko, Yu.N. Yavlinskii, Sov. Techn. Phys. Lett. 13, 276, (1987)
- [30] M. Toulemonde, J.M. Costantini, Ch. Dufour, A. Meftah, E. Paumier, F. Studer, Nucl. Instr. Meth. B 116, 37, (1999)
- [31] P. Martin, S. Guizard, Ph. Daguzan, G. Petite, P. D'Oliveira, P. Meynadier and M. Perdrix, Phys. Rev. B 55, 5799, (1997)
- [32] H. Varel, D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, R. Herrmann, F. Noack, E.E.B. Campbell Appl. Phys. A 62, 293, (1996)
- [33] P. Audbert, Ph. Daguzan, A. Dos Santos, J.C. Gautier, J.P. Geindre, S. Guizard, G. Hamoniaux, K. Krastev, P. Matin, G. Petite, and A. Antoetti, Phys. Rev. Lett. 73, 1990 (1994)
- [34] G. Petite, P. Daguzan, S. Guizard and P. Martin, Nucl. Instr. Meth. B 107, 97 (1996)
- [35] F. Quéré Thèse de l'université de Paris VI (2000)
- [36] D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, H. Varel, M. Wähler, E.E.B. Campbell, Appl.Surf.Sci. 120, 65 (1997)
- [37] A.C. Tam, J.L. Brand, D.C. Cheng, W. Zapka, Appl. Phys. Lett. 55 (20) (1994) 2045
- [38] R. Stoian, H. Varel, A. Rosenfeld, D. Ashkenasi, R. Kelly, E.E.B. Campbell, Appl. Surf. Sci, 165, 44, (2000)
- [39] R. Stoin, D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, M. Wittmann, R. Kelly and E.E.B. Campbell, Nucl. Instr. Meth. B 166-167, 682, (2000)
- [40] A. Rosenfeld, D. Ashkenasi, H. Varel, M. Wähler, E.E.B. Campbell, Appl. Surf. Sci, 127-129, 76 (1998)



[41] R. F. Haglund, R. Kelly, Electronic processes in sputtering by laser beams, in P. Sigmund (Ed.), *Fundamental Processes in Sputtering of Atoms and Molecules (SPUT2)*, 1993, pp. 527-592

## *Conclusion*



## *Conclusion*

Ce travail a permis de dégager un certain nombre de résultats importants tant sur le plan de l'expérience que sur le plan de la physique.

Que ce soit pour le  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , la microscopie à force atomique (AFM) s'est révélée être un outil puissant pour déterminer la sensibilité des isolants aux excitations électroniques induites par des ions lourds. Pour  $\text{CaF}_2$ , les observations AFM ont montré qu'en dessous d'un seuil en  $dE/dx$  de création de traces qui correspond à la formation de colloïdes observées par microscopie électronique, il y a aussi l'apparition de bosses en surface, qui est la partie visible d'une création de défauts localisés et étendus dans le volume. Le rendement de création de ces défauts qui apparaissent au dessus d'une valeur seuil en  $dE/dx = 5.1 \pm 0.8$  keV/nm ne devient égal à l'unité qu'au dessus de 13 keV/nm. La hauteur des bosses semble constante entre 5 et 10 keV/nm et augmente linéairement au dessus de 10 keV/nm. Au contraire de ce qui est observé dans la masse, le diamètre des traces en surface reste constant dans toute la gamme de  $dE/dx$  étudiée. De plus il y a une forte corrélation entre l'apparition des bosses en surface et le désordre topologique vu par C-RBS et les mesures de gonflement. Dans le cas des mesures de C-RBS, la saturation du désordre augmente avec la perte d'énergie et n'atteint jamais 100%. L'ensemble des résultats obtenus montre la cohérence de ces techniques de caractérisation de l'endommagement dans un matériau non amorphisable.

Pour  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  qui est un matériau amorphisable, la création de bosses en surface par irradiation avec des ions lourds est en concordance totale avec tous les résultats expérimentaux précédents, à l'exception des diamètres des bosses qui ne présentent aucune dépendance avec la perte d'énergie électronique.

Pour  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , le seuil de création de défauts apparaît pour une valeur de  $dE/dx = 9.4 \pm 0.8$  keV/nm que ce soit à la surface ou dans le volume. Ce seuil est plus petit que le seuil de changement de phase (amorphisation) qui est de l'ordre de 18 keV/nm. C'est un comportement similaire à celui du  $\text{CaF}_2$  qui présente d'abord une création de défauts étendus, ensuite pour une valeur supérieure de  $dE/dx$ , un changement de phase lié à la formation de colloïdes. Comme pour  $\text{CaF}_2$  et  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ , la hauteur des bosses à la surface de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  augmente avec la perte d'énergie électronique, alors que les diamètres restent constants. De plus le désordre topologique à saturation mesuré par C-RBS augmente également avec la

perte d'énergie et n'atteint jamais la valeur 1. Contrairement à toutes les observations faites précédemment, le gonflement à saturation, dans  $\text{Al}_2\text{O}_3$  augmente avec le dépôt d'énergie électronique.

De l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus, nous pouvons conclure que l'idée initiale qui suggérait que les matériaux non amorphisables étaient moins sensibles aux excitations électroniques que les matériaux amorphisables, n'est pas réaliste. Elle résultait de la faible sensibilité à la microscopie électronique à transmission pour observer des défauts étendus dans ce type de matériaux. Même si les matériaux non amorphisables présentent la même sensibilité aux irradiations par les ions lourds que les matériaux amorphisables, les défauts ainsi créés dans les deux types de matériaux ne sont pas identiques. Dans les matériaux amorphisables, l'irradiation par des ions lourds, provoque un désordre total, qui est responsable du gonflement. Mais dans les matériaux non amorphisables le désordre n'est jamais total, et nous ne connaissons pas le type de défauts qui contribuent au gonflement du matériau.

Cette étude ne fait que confirmer le comportement spécifique du  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , lorsqu'il est soumis aux irradiations des ions lourds : par rapport aux deux types de matériaux (amorphisables et non amorphisables), il présente une faible sensibilité aux excitations électronique (seuil en  $dE/dx$  autour de 10 keV/nm). De plus lors de notre étude nous avons remarqué que le désordre provoqué par les ions lourds, augmente avec le  $dE/dx$  et n'atteint jamais l'amorphisation.

En utilisant le seuil en  $dE/dx$  déterminé pour  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , les calculs du modèle de la pointe thermique ont permis de déterminer un libre parcours moyen de l'interaction électron réseau  $\lambda = 3.9 \pm 0.3$ . Cette valeur suit la systématique de l'évolution de ce paramètre pour l'ensemble des isolants en fonction de l'énergie la bande interdite. Cette valeur de  $\lambda$ , conduit à une valeur du temps moyen de l'interaction électron-phonon égal à 76 fs. Cette valeur est très petite par rapport aux valeurs déduites des expériences d'irradiation du saphir avec des lasers femtosecondes (soit 10 ps lorsque l'énergie déposée est de l'ordre de quelques dizaines de  $\text{TW}/\text{cm}^2$  et 100 ps pour quelques  $\text{TW}/\text{cm}^2$ ). Ceci semble suggérer que le couplage électron-phonon dans le saphir s'accroît lorsque la densité d'excitation électronique déposée augmente. Aucune explication ne peut être donnée au sujet de cette corrélation dans l'état actuel de nos connaissances.

