

**UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE**  
**HOUARI BOUMEDIENE**

**FACULTE DES SCIENCES**  
**( PHYSIQUE )**

*Thèse*

Présentée en vue de l'obtention du grade de

**MAGISTER**

Spécialité : *SCIENCES NUCLEAIRES*

Par :

**Réda ZEMIH**

**ETUDE DU COEFFICIENT DE REFLEXION  
D'IONS DE BASSE ENERGIE PAR DES  
SURFACES SOLIDES :  
EXPERIENCE ET SIMULATION NUMERIQUE**

Soutenue le : 05 Juin 2001

devant le jury composé de :

<b>N. BENDJABALLAH</b>	<b>Professeur (USTHB)</b>	<b>Président</b>
<b>A.C. CHAMI</b>	<b>Professeur (USTHB)</b>	<b>Examineur</b>
<b>M. ABDESSELAM</b>	<b>Maître de Conférences (USTHB)</b>	<b>Examineur</b>
<b>M. BENGUERBA</b>	<b>Maître de Conférences (USTHB)</b>	<b>Examineur</b>
<b>P. CAFARELLI</b>	<b>Maître de Conférences (UPS, Toulouse)</b>	<b>Examineur</b>
<b>M. BOUDJEMA</b>	<b>Professeur (USTHB)</b>	<b>Directeur de thèse</b>

*Juin 2001*

# INTRODUCTION

## PREMIERE PARTIE: GENERALITES ET RESULTATS THEORIQUES

<b>A. <u>GENERALITES</u></b>	<b>11</b>
<b>A1. Diffusion par un potentiel central</b>	<b>11</b>
<b>A2. Interaction ion-matière à basse énergie</b>	<b>12</b>
<b>A21. <u>Collisions simples</u></b>	<b>12</b>
Potentiel d'interaction	12
Angle de diffusion	13
Energie après diffusion	14
Section efficace de chocs nucléaires	15
Pouvoir d'arrêt nucléaire	16
<b>A22. <u>Collisions multiples</u></b>	<b>17</b>
<b>B. <u>SIMULATION NUMERIQUE</u></b>	<b>19</b>
<b>B1. Le code TRIM</b>	<b>19</b>
<b>B2. Le code MARLOWE</b>	<b>21</b>
<b>C. <u>MECANISMES D'ECHANGES DE CHARGES</u></b>	<b>24</b>
<b>C1. Echanges de charge en surface</b>	<b>24</b>
<b>C11. <u>Transition monoélectronique</u></b>	<b>24</b>
i. Transfert résonnant	24
ii. Neutralisation quasi-résonnante	24
<b>C12. <u>Transition biélectronique</u></b>	<b>25</b>
i. Neutralisation Auger (AN)	25
ii. Désexcitation Auger (AD)	25
iii. Autoionisation	26
<b>C13. <u>Mécanismes possibles dans notre étude</u></b>	<b>26</b>
<b>C2. Echange de charge en volume</b>	<b>28</b>
<b>D. <u>EFFET DE LA FORCE IMAGE ET DE LA VITESSE PARALLELE</u></b>	<b>30</b>
<b>D1. Force image</b>	<b>30</b>
<b>D2. Effets dynamiques de l'interaction</b>	<b>35</b>
<b>E. <u>LE COEFFICIENT DE REFLEXION</u></b>	<b>37</b>
<b>E1. Position du problème</b>	<b>37</b>
<b>E2. Définition</b>	<b>37</b>

**DEUXIEME PARTIE :            PROCEDURE EXPERIMENTALE**

<b><u>A. DISPOSITIF EXPERIMENTAL</u></b>	<b>40</b>
A1. Sources d'ions	40
A2. L'accélérateur	42
A3. Chambre de diffusion	43
A4. Système de Pompage	45
A5. Procédure	45
A6. Acquisition	46
<b><u>B. RESULTATS EXPERIMENTAUX</u></b>	<b>48</b>
B1. Conditions expérimentales	48
B2. Fraction de charge	48
B3. Distributions angulaires	50
B4. Réflexion spéculaire	51

**TROISIEME PARTIE :            ANALYSE DES RESULTATS**

<b><u>A. CALCUL DU COEFFICIENT DE REFLEXION PAR SIMULATION NUMERIQUE</u></b>	<b>53</b>
A1. Position du maximum du rendement	58
A2. Effets de la température et de l'énergie	61
A3 Sensibilité au choix du potentiel	62
A4. Représentation analytique des distributions angulaires du coefficient de réflexion	63
<b><u>B. ETUDE DE LA REFLEXION SPECULAIRE EN INCIDENCE RASANTE</u></b>	<b>67</b>
B1. Correction due à la force image	69
B2. Correction due au facteur géométrique	72
B3. Fractions de charge dans la voie d'entrée pour le systèmes alcalin-métal	76

**CONCLUSION GENERALE**

***A mes parents.***

***A ma sœur***

***et mes frères***

## **REMERCIEMENTS**

**Ce travail a été réalisé au sein de l'équipe interaction Ions-Surface du laboratoire Sciences Nucléaires et Interaction Rayonnements-Matière de l'USTHB, sous la direction du professeur M. Boudjema ; qu'il trouve ici l'expression de ma profonde et sincère reconnaissance pour le suivi de mon travail de recherche, durant lequel il m'a fait bénéficier de son expérience, de sa compétence et de ses nombreux conseils.**

**Je remercie le professeur N. Bendjaballah, directeur du laboratoire Sciences Nucléaires et Interaction Rayonnements-Matière, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire et de m'avoir honoré en acceptant de présider le jury de cette thèse.**

**J'exprime également ma profonde gratitude à MM M. Abdesselam et M. Benguerba, maîtres de conférences à l'U.S.T.H.B et à Mr P.Cafarelli, maître de conférences à l'U.P.S Toulouse, pour l'intérêt qu'ils ont manifesté en acceptant de juger ce travail.**

**Je tiens à exprimer mes vifs remerciements à Mr le professeur A.C. Chami pour sa disponibilité, sa sympathie et pour ses précieux conseils ainsi que d'avoir accepté de participer au jury.**

**Le soutien moral , la disponibilité et les qualités humaines très particulières de Mr Y. Boudouma maître de conférences à l'U.S.T.H.B m'ont été d'un grand besoin ; qu'il trouve ici mes sincères remerciements. Je remercie également Mr M. Hamhami maître assistant à l'U.S.T.H.B, M<sup>me</sup> K. Khalal-Kouache et M<sup>me</sup> B. Arezki maitres assistantes à l'U.S.T.H.B pour leur aide.**

**La collaboration avec l'équipe Ion-Surface du laboratoire CAR/IRSAMC de l'U.P.S Toulouse a été un élément décisif à la réalisation de ce travail. Je remercie tout particulièrement les professeurs C. Benazeth et P. Benoit Cattin de m'avoir permis d'effectuer des stages au sein de leur laboratoire et d'avoir mis à ma disposition tous les moyens nécessaires à la réalisation de ce travail. Un grand merci également à M<sup>me</sup> M. Richard-Viard et Mr P. Cafarelli pour l'aide et la sympathie qu'ils ont manifesté à mon égard.**

**Je remercie tous mes amis et collègues pour leur soutien et leurs encouragements.**

**Un grand merci à ma famille, qui m'a toujours soutenue surtout dans les moments difficiles.**

## Liste des figures

<b><u>figure I-1</u></b> : Schéma de la diffusion d'une particule par un centre diffuseur.	12
<b><u>figure I-2</u></b> : Comparaison entre la fonction d'écran de Molière et la fonction ZBL	13
<b><u>figure I-3</u></b> : fonction de diffusion $f(t^{1/2})$ .	17
<b><u>figure I-4</u></b> : Statistique sur le nombre de chocs effectués par les particules diffusées.	18
<b><u>figure I-5</u></b> : Trajectoire des ions à l'intérieur du solide vue par TRIM.	21
<b><u>figure I-6</u></b> : Procédure de recherche des partenaires de collision dans le code MARLOWE.	23
<b><u>figure I-7</u></b> : Les différents mécanismes d'échanges de charge dus à des transitions mono-électroniques.	25
<b><u>figure I-8</u></b> : Schéma représentant la neutralisation Auger et la désexcitation Auger.	26
<b><u>figure I-9</u></b> : Position relative du premier niveau d'ionisation de quelques atomes par rapport à la bande de valence du Nickel.	27
<b><u>figure I-10</u></b> : Diagramme de corrélation pour le système $Ne^+/Ni$ .	29
<b><u>figure I-11</u></b> : charge image induite par la présence d'un ion au voisinage d'une surface solide.	30
<b><u>figure I-12</u></b> : Evolution du potentiel et de la force image en fonction de la distance $Z$ normale à la surface effective du solide.	31
<b><u>figure I-13</u></b> : perturbation de la trajectoire des ions au voisinage d'une surface solide sous l'effet de la force image.	32
<b><u>figure I-14</u></b> : Déplacement des niveaux atomiques du projectile sous l'effet de la force image.	33
<b><u>figure I-15</u></b> : Modèle de la sphère de Fermi déplacée.	35
<b><u>figure I-16</u></b> : passage des électrons de la bande de valence du solide au dessus du niveau de Fermi sous l'effet de la vitesse parallèle.	36
<b><u>Figure II-1</u></b> : Les trois blocs du dispositif expérimental, bloc source, bloc accélération et chambre de diffusion, et l'optique associée.	41
<b><u>figure II-2</u></b> : Bloc de sources d'ions.	42
<b><u>figure II-3</u></b> : Principe de séparation en masse subie par le faisceau d'ions lors de son passage à travers le filtre de Wien.	42
<b><u>figure II-4</u></b> : Système de séparation des différents états de charge.	44

<b><u>figure II-5</u></b> :Exemple d'un spectre TOF.	47
<b><u>figure II-6</u></b> :Fraction de charge mesurée expérimentalement pour différents projectiles à 4keV et cibles de Nickel polycristallin.	49
<b><u>figure II-7</u></b> : Distribution angulaire du coefficient de rendement expérimental.	50
<b><u>Figure II-8</u></b> :Valeurs expérimentales du coefficient de réflexion spéculaire des particules de 4keV diffusées sur du Nickel.	51
<b><u>figure III-1</u></b> : Distributions angulaires du coefficient de réflexion de particules d'énergie de 4keV, par des surfaces solides de Ni, Si et Ge. Simulation TRIM.	54
<b><u>figure III-2</u></b> : Distributions angulaires du coefficient de réflexion de particules obtenues par simulation MARLOWE.	56
<b><u>figure III-3</u></b> : Distributions angulaires du coefficient de réflexion de particules. Résolution de l'équation de Boltzman.	57
<b><u>figure III-4</u></b> : Distribution des parcours, dans le solide, des particules diffusées.	57
<b><u>figure III-5</u></b> :Angle de diffusion $\theta_{MAX}=\eta$ $\alpha$ correspondant au maximum du rendement en fonction de l'angle d'incidence.	58
<b><u>figure III-6</u></b> : valeurs du paramètre $\eta$ , mesuré expérimentalement et calculé par TRIM et MARLOWE.	59
<b><u>figure III-7</u></b> : Variation de $\eta$ , écart du maximum de rendement par rapport à la réflexion spéculaire, en fonction du système en interaction. Simulation TRIM.	59
<b><u>figure III-8</u></b> : Influence de la valeur de $C_W$ sur la valeur de $\eta$ donnée par TRIM, cible Nickel.	60
<b><u>figure III-9</u></b> : Effet de la température sur les distributions angulaires du coefficient de réflexion de particules par des surfaces solides.	61
<b><u>figure III-10</u></b> : Distributions angulaires à géométrie constante et énergie variable.	62
<b><u>figure III-11</u></b> :Effet du choix du potentiel sur les distributions angulaire données par TRIM.	63
<b><u>Figure III-12</u></b> : ajustement de la position $R_{MAX}=f(\theta_{MAX})$ par la fonction $R_{MAX} = \frac{B}{\theta^\alpha}$ .	65
<b><u>figure III-13</u></b> : Comparaison entre les distributions angulaires du coefficient de réflexion simulées par TRIM et la forme analytique proposée dans ce travail.	65

<b><u>figure III-14</u></b> : Comparaison entre l'expérience et la simulation TRIM concernant la réflexion spéculaire des particules de 4keV diffusées sur du Nickel.	68
<b><u>figure III-15</u></b> : Trajectoire des particules au voisinage d'une surface solide.	69
<b><u>figure III-16</u></b> : Distribution énergétique des particules diffusées pour les Systèmes NeNi.	71
<b><u>figure III-17</u></b> : Valeurs des angles effectifs $\alpha_s$ ( $\beta_s$ ) en fonction de leurs valeurs nominales $\alpha_v$ ( $\beta_v$ ) pour énergie d'ions variables.	72
<b><u>figure III-18</u></b> : Coefficient de réflexion à incidence rasante pour la diffusion $He^+/Ni$ à 4keV. Simulation TRIM.	74
<b><u>figure III-19</u></b> : Coefficient de réflexion spéculaire à incidence rasante pour la diffusion $He^+/Ni$ à 4keV. Simulation MARLOWE.	75
<b><u>figure III-20</u></b> : Coefficient de réflexion spéculaire dans la diffusion $Na^+/Ni$ à 4keV, sans et avec corrections. Comparaison entre TRIM et l'expérience.	77
<b><u>figure III-21</u></b> : Coefficient de réflexion spéculaire dans la diffusion $Na^+/Ni$ à 4keV, sans et avec corrections. Comparaison entre MARLOWE et l'expérience.	78

## ***Liste des tableaux***

<b><u>tableau I-1</u></b> : fonction d'écran définissant les différents types de potentiel.	13
<b><u>tableau I-2</u></b> : Valeurs des constantes définies dans l'équation(I-4).	14
<b><u>tableau I-3</u></b> : Fit des paramètres de la fonction de diffusion.	16
<b><u>tableau I-4</u></b> : Comparaison entre $r_{min}$ , distance minimale d'approche, et $R_C$ , distance de croisement, pour He,Ne et Ar sur Ni.	29
<b><u>tableau I-5</u></b> : Ecart entre angles mesurés et angles effectifs pour différents valeurs de $r_s$ .	34
<b><u>tableau III-1</u></b> : Valeurs du libre parcours moyen $L_s = \pi P_{max}^2 L_s = \frac{1}{N}$ pour différents projectiles sur Nickel.	60
<b><u>tableau III-2</u></b> : Valeurs du paramètre $\eta$ .	64
<b><u>tableau III-3</u></b> : Probabilité de survie à la neutralisation Auger $He^+$ de 4keV sur du Nickel.	71
<b><u>tableau III-4</u></b> : facteur géométrique, déduit à partir de la diffusion $Ne^+/Ni$ à 4keV.	73

# **Introduction :**

La caractérisation des surfaces solides est devenue au fil des dernières années, une exigence pour de nombreuses technologies modernes telles que la catalyse hétérogène, la croissance épitaxiale ou l'étude des phénomènes de corrosion. Plusieurs techniques d'analyse ont été et sont encore développées en ce sens, utilisant des projectiles divers (photons, électrons plus ou moins rapides, particules plus ou moins lourdes, agrégats, etc ...) selon le type d'analyse recherchée (élémentaire ou structurale) ou la profondeur étudiée (couches superficielles ou couches profondes).

Le travail présenté ici s'inscrit dans le cadre particulier de la diffusion d'ions de basse énergie (Low Energy Ion Scattering, LEIS) dans laquelle on envoie des ions de quelques keV sur une surface solide pour analyser ensuite les particules diffusées en angle, en énergie ou en fractions de charge. Le couplage entre l'expérience et les techniques de simulation numérique (méthode Monte Carlo, dynamique moléculaire, équation de transport) permet alors d'accéder aux paramètres fondamentaux qui conditionnent l'utilisation de la LEIS en tant que technique d'analyse des surfaces (potentiels d'interaction, pouvoir d'arrêt aux faibles vitesses, probabilités d'échange de charge). L'intérêt de la LEIS réside dans sa sensibilité aux premières couches des surfaces et dans son caractère non destructif dus aux faibles courants d'ions utilisés. Ces deux qualités sont naturellement liées au rendement de la diffusion ou coefficient de réflexion, c'est à dire le nombre de projectiles réfléchis rapporté au nombre de projectiles incidents. Le coefficient de réflexion de particules par une surface solide constitue par ailleurs une importante grandeur dans certains domaines d'étude de matériaux soumis à irradiation comme l'élaboration de matériaux par dépôt ou par implantation ionique, le confinement de plasmas de fusion ou le comportement des parois de satellites ...

Ainsi, après une première partie où on rappelle des considérations théoriques générales sur les collisions binaires dans les solides et les processus d'échange de charge, la deuxième partie du mémoire est consacrée à l'étude de la distribution angulaire de ce coefficient de réflexion. On en présentera une étude expérimentale que nous avons réalisée auprès du dispositif du groupe Ions-Surfaces du Laboratoire Collisions, Agrégats et Réactivité de l'Université Paul Sabatier de Toulouse. L'étude porte sur des ions monochargés de 4 keV (H, D, He, Li, N, Ne, Na et Ar) en collision avec une surface de nickel polycristallin pour des angles d'incidence variant de 2° à 20°. Une approche

numérique est effectuée à l'aide de deux codes de simulation basés sur l'approximation des collisions binaires, TRIM (Zie85) dans sa version modifiée dans notre équipe et MARLOWE (Rob74)). Des propriétés générales du coefficient de réflexion sont alors établies concernant, entre autres, la forme des distributions angulaires, la position du maximum de rendement, l'influence de la température de la cible, de l'énergie de la collision ou du choix du potentiel d'interaction. A partir de ces considérations et de la comparaison à l'expérience, on élabore une forme empirique simple du rendement de la diffusion qui peut, dans certaines études, remplacer avantageusement l'utilisation, souvent prohibitive, des codes de calculs. C'est le cas, notamment, lorsqu'il s'agit de procédures d'optimisation de paramètres nécessitant de nombreux passages par la simulation numérique.

On en présente un exemple dans la troisième partie de ce mémoire où on s'intéresse plus particulièrement à l'étude de la réflexion spéculaire aux petits angles d'incidence (entre 1 et 10°). Dans ce domaine angulaire, deux phénomènes se conjuguent pour provoquer un désaccord apparent entre l'expérience et les prédictions de la simulation numérique. Le premier phénomène est lié au dispositif expérimental utilisé (effet de géométrie, décalage entre les centres de rotation de la cible et de la ligne de temps de vol). Le second provient de l'existence de la force image, particulièrement importante aux petits angles d'incidence ou d'émergence. Cet effet dépend de deux grandeurs (le potentiel image et la fraction de charge) dont les valeurs sont prises comme paramètres d'ajustement dans une comparaison expérience - simulation puis confrontées aux valeurs prévues par la théorie.

***Première partie :  
Généralités et résultats  
théoriques.***

La spectroscopie d'ions lents (**LEIS**) consiste à envoyer un faisceau d'ions de faible énergie ( $E \leq 20$  keV) sur une surface solide et à détecter le faisceau diffusé dans un angle solide  $\Delta\Omega$ . Bien que le faisceau initial soit formé de particules de même charge et de même énergie, l'analyse du faisceau diffusé montre une variété dans les états de charge (négatif, neutre, positif), ainsi qu'un étalement du spectre énergétique. Ceci prouve l'existence d'échanges entre les projectiles et la cible. Dans ce chapitre, on définira les différentes grandeurs physiques liées à ces échanges : potentiel d'interaction, section efficace de diffusion et probabilité d'échanges de charge. On commencera par décrire la collision binaire élastique. Le cas réel des collisions multiples sera considéré comme une succession de collisions simples. On présentera les codes de simulation utilisés dans ce travail. On définira les mécanismes d'échanges de charge possibles et on décrira l'effet du potentiel image et de la vitesse du projectile, qui vont modifier les positions relatives des niveaux d'énergie du projectile et de la structure de bande du solide.

## **A. GENERALITES :**

### **A1. DIFFUSION PAR UN POTENTIEL CENTRAL :**

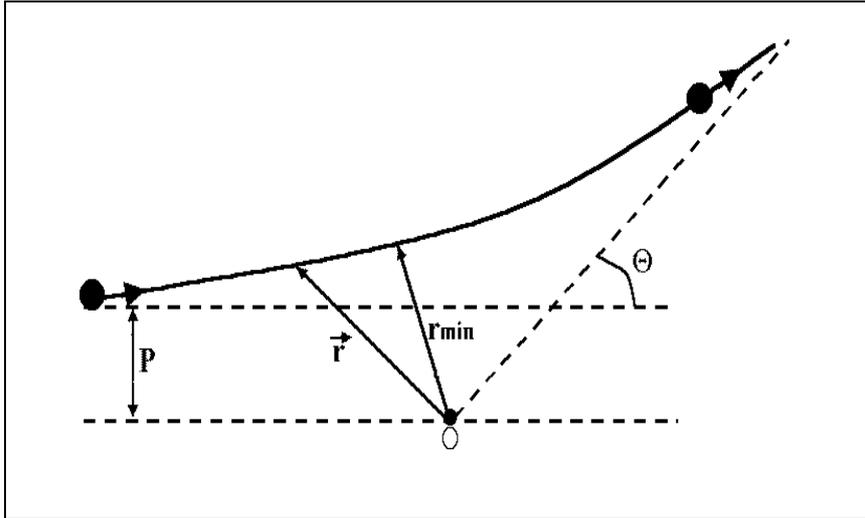
Le problème considéré est le suivant : une particule d'énergie  $E$  et de masse  $M$  venant de l'infini, s'approche avec un paramètre d'impact  $P$  d'une zone où règne un potentiel central sous l'effet duquel elle est défléchie d'un angle  $\Theta$  par rapport à sa direction initiale. L'angle de diffusion  $\Theta$  est fonction du paramètre d'impact  $P$  et de l'énergie de la particule incidente.

La combinaison des équations de conservation du moment cinétique et de l'énergie conduit à la forme généralisée suivante pour l'angle de diffusion :

$$\Theta = \pi - 2 \int_{r_{\min}}^{\infty} \frac{P dr}{r^2} \left( 1 - \frac{P^2}{r^2} - \frac{V(r)}{E} \right)^{-1/2} \quad \text{I-1}$$

Où  $V$  est le potentiel diffuseur et  $r_{\min}$  la distance minimale d'approche qui est solution de

$$\text{l'équation : } 1 - \frac{V(r)}{E} - \left( \frac{P}{r_{\min}} \right)^2 = 0$$



**figure I-1** : Schéma de la diffusion d'une particule par un centre diffuseur.

## **A2. INTERACTION ION-MATIÈRE A BASSE ENERGIE :**

Dans la gamme des basses énergies utilisées ici, l'étude de la diffusion de particules par des surfaces solides peut se faire dans le cadre d'une description classique de collisions binaires élastiques. En effet, la longueur d'onde associée aux ions incidents, donnée par la relation de *De Broglie*  $\lambda = \frac{h}{\sqrt{2M_1 E_0}}$ , est toujours inférieure à  $10^{-2} \text{Å}$  ( $2.3 \cdot 10^{-3} \text{Å}$  par exemple pour He à 4keV), donc très petite devant les distances interatomiques qui sont de l'ordre de quelques Å. De plus, l'approximation de collisions binaires est justifiée du fait que la distance de plus courte approche pour qu'il y ait une collision significative ( $< 1 \text{Å}$ ), est petite devant la distance entre les atomes du solide [LEH77] et [CHA96].

### **A21. COLLISIONS SIMPLES :**

Dans l'approximation des collisions simples, on considère que la trajectoire finale de la particule est le résultat d'un seul choc avec un atome cible. Les particules diffusées suivant le même angle de diffusion, vont avoir presque la même énergie finale. Par conséquent, les spectres énergétiques vont être très étroits.

- **POTENTIEL D'INTERACTION :**

L'utilisation d'un potentiel coulombien est justifiée à haute énergie. Dans notre gamme d'énergie par contre, la particule incidente  $Z_1 e$  sent la présence des électrons de la

cible  $Z_2e$ . Cela se traduit par la présence d'un terme supplémentaire qui prend en compte la décroissance importante du potentiel d'interaction, par rapport au potentiel coulombien lorsque la distance inter-nucléaire entre les deux partenaires augmente. On utilise dans ce cas, un potentiel du type coulombien écranté :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi\left(\frac{r}{a}\right) \quad \text{I-2}$$

Où  $a$  est la longueur d'écran et  $\Phi\left(\frac{r}{a}\right)$  la fonction d'écran pour laquelle de nombreuses approximations analytiques, généralement de la forme  $\sum_{i=1}^n \alpha_i e^{-\beta_i (r/a)}$ , ont été proposées [Nas96].

Les deux formes les plus utilisées, le potentiel de Molière [Mol47] et le potentiel universel ZBL[Zie85] sont présentées dans le tableau (I-1). Dans la figure(I-2) ; on présente une comparaison entre ces deux potentiels.

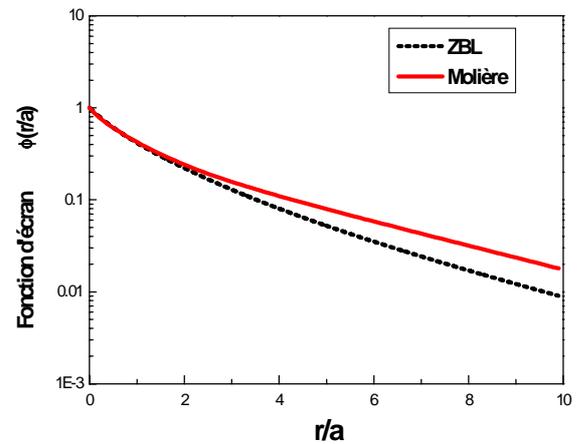


Figure I-2 : Comparaison entre la fonction d'écran de Molière et la fonction ZBL

	$\alpha_1$	$\alpha_2$	$\alpha_3$	$\alpha_4$	$\beta_1$	$\beta_2$	$\beta_3$	$\beta_4$
Molière <sup>(a)</sup>	0.35	0.55	0.1	-	0.3	1.2	6	-
ZBL <sup>(b)</sup>	0.18175	0.50986	0.28022	0.028171	3.1998	0.94229	0.4029	0.20162

Tableau(I-1) : fonction d'écran définissant les différents types de potentiel. <sup>(a)</sup>[Mol47], <sup>(b)</sup>[Zie85].

### • ANGLE DE DIFFUSION :

L'étude de la collision binaire élastique entre deux particules dans le référentiel du centre de masse, se réduit à un problème à un seul corps de masse

$\mu = \frac{M_1 M_2}{M_1 + M_2}$  et d'énergie  $E_c = \frac{M_2}{M_1 + M_2} E_0$  dans un potentiel central  $V(r)$ . Le problème est

donc analogue à celui traité dans le paragraphe 1, l'angle de diffusion  $\Theta$  sera donné, par conséquent, par la relation (I-1), en remplaçant  $M$  par  $\mu$  et  $E$  par  $E_c$ . Pour des potentiels réels, cette équation n'admet pas de solutions analytiques exactes. Cependant, des formes

analytiques approchées sont possibles. L'une d'entre elles, utilisée dans le programme TRIM a été proposée par Biersack et al [BIE80] avec 5 paramètres ( $C_i$   $i=1 \rightarrow 5$ ) qui dépendent de la forme du potentiel d'interaction. L'angle de diffusion est donné par l'expression suivante :

$$\cos \frac{\Theta}{2} = \frac{B + R_c + \Delta}{R_0 + R_c}, \quad \text{I-3}$$

$$\text{dans laquelle on a posé : } B = \frac{P}{a}, \quad R_0 = \frac{r_{\min}}{a} \quad \text{et} \quad R_c = \frac{\rho}{a}$$

avec :

$$a, \text{ longueur d'écran et } r_{\min}, \text{ distance minimale d'approche, définie dans I-1. } E_c = \frac{E}{1 + M_1/M_2}$$

est l'énergie disponible dans le référentiel du centre de masse,  $\rho = \frac{-2[E_c - V(r_0)]}{V'(r_0)}$  est le rayon de

courbure dans le référentiel du centre de masse et  $\Delta$  un rayon de courbure adimensionnel. C'est un paramètre qui va dépendre du choix du potentiel et qui est donné par :

$$\Delta = A \frac{R_0 - B}{1 + G} \quad A = 2\alpha\epsilon B^\beta \quad \text{et} \quad G = \gamma \left[ \left(1 + A^2\right)^{1/2} - A \right]^{-1} \quad \text{I-4}$$

$$\text{où } \alpha = 1 + C_1 \epsilon^{-1/2}, \quad \beta = \frac{C_2 + \epsilon^{1/2}}{C_3 + \epsilon^{1/2}} \quad \text{et} \quad \gamma = \frac{C_4 + \epsilon}{C_5 + \epsilon} \quad \text{et} \quad \epsilon = \frac{M_2 E_0}{(M_1 + M_2) Z_1 Z_2 e^2 / a}$$

	Molière	Universel
$C_1$	0.6743	0.99229
$C_2$	0.009611	0.011615
$C_3$	0.005175	0.007122
$C_4$	10.00	14.813
$C_5$	6.314	9.3066

**Tableau(I-2) :** Valeurs des constantes définies dans l'équation(I-4).

L'angle de diffusion  $\theta$  et l'angle de recul  $\varphi$  dans le référentiel du laboratoire sont alors déduits de l'angle de diffusion  $\Theta$  dans le référentiel du centre de masse par les relations suivantes :

$$\begin{cases} \theta = \arctan \left( \frac{A \sin \Theta}{1 + A \cos \Theta} \right) \\ \varphi = \left( \frac{\pi - \Theta}{2} \right) \end{cases} \quad \text{I-5}$$

• **ENERGIE APRES DIFFUSION :**

Lors du choc entre deux particules, la particule incidente (d'énergie E) cède une partie de son énergie à la particule cible supposée initialement au repos. En se basant sur les équations de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement dans un référentiel lié au laboratoire, on montre que :

$$\begin{aligned} E'_1 &= K_d(\theta, A)E && \text{Energie du projectile après diffusion.} \\ E'_2 &= K_r(\Phi, A)E && \text{Energie de recul de la particule cible.} \end{aligned}$$

$K_d$  et  $K_r$  sont respectivement les facteurs cinématique de diffusion et de recul donnés par les expressions suivantes :

$$\begin{aligned} K_d(\theta, A) &= \left[ \frac{\cos\theta \pm \sqrt{A^2 - \sin^2\theta}}{1+A} \right]^2 && A = M_2/M_1 \begin{cases} + A \geq 1 \\ \pm A < 1 \end{cases} && \mathbf{I-6} \\ K_r(\Phi, A) &= \frac{4A \cos^2 \phi}{(1+A)^2} && \phi \leq 90^\circ \end{aligned}$$

• **SECTION EFFICACE DE CHOCS NUCLEAIRES :**

La section efficace différentielle de diffusion s'écrit, pour un paramètre d'impact P :

$$d\sigma = 2\pi P d \quad \mathbf{I-7}$$

L'introduction des grandeurs réduites :  $\chi = \frac{r}{a}$ ,  $C = \frac{P}{a}$  et  $\varepsilon = \frac{M_2 E_0}{(M_1 + M_2) Z_1 Z_2 / a}$  ramène

la dépendance de l'angle de diffusion (**I-1**) à deux paramètres, C et  $\varepsilon$ , au lieu de six. On peut donc écrire :  $P = a g(\varepsilon, \theta)$ . **Lindhard, Nielsen et Scharff (L.N.S) [LIN68]** ont montré qu'avec un potentiel du type coulombien écranté la relation (**I-7**) s'écrit :

$$f(t^{1/2}) = \frac{8 \varepsilon \sin^3(\theta/2)}{a^2} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right) \quad \mathbf{I-8}$$

avec  $t^{1/2} = \varepsilon \sin(\theta/2)$

La fonction  $f(t^{1/2})$  est obtenue numériquement. Cependant plusieurs formes analytiques sont proposées. L'une des formes les plus utilisées est la forme en puissances [NAS96] :

$$f(t^{1/2}) = At^{1/2-m} \left[ 1 + (2At^{1-m})^q \right]^{-1/q} \quad \text{I-9}$$

avec:

	A	m	q
Moliere	3.07	0.216	0.530
ZBL	5.01	0.203	0.413

**Tableau(I-3) :** Fit des paramètres de la fonction de diffusion, équation(I-9-), d'après WINTERBON [WINT72],

• **POUVOIR D'ARRET NUCLEAIRE :**

Le pouvoir d'arrêt nucléaire  $S_n$  est défini par :

$$S_n(\varepsilon) = \frac{1}{N} \left( \frac{dE}{dx} \right)_n = \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T \frac{d\sigma(E)}{dT} dT \quad \text{I-10}$$

où  $N$  est la densité des atomes cibles en atome/cm<sup>3</sup>,  $T$  est l'énergie transférée lors du choc,  $T_{\min}$  et  $T_{\max}$  sont respectivement le minimum et le maximum d'énergie transférable au projectile et  $\frac{d\sigma(E)}{dT}$  est la section efficace différentielle de transfert d'énergie.

En fonction de  $f(t^{1/2})$ , la relation (I-10) s'écrit :

$$\left( \frac{dE}{dx} \right)_n = \frac{-N\pi\pi a_{\max}}{\varepsilon^2} \int_0^{T_{\max}} T f(t^{1/2}) dt^{1/2} \quad \text{I-11}$$

En introduisant la distance réduite  $\rho_1 = 4\pi a^2 x N \frac{M_2 M_1}{(M_1 + M_2)^2}$  [LIN63], on aboutit à la section efficace nucléaire réduite dans la théorie LSS :

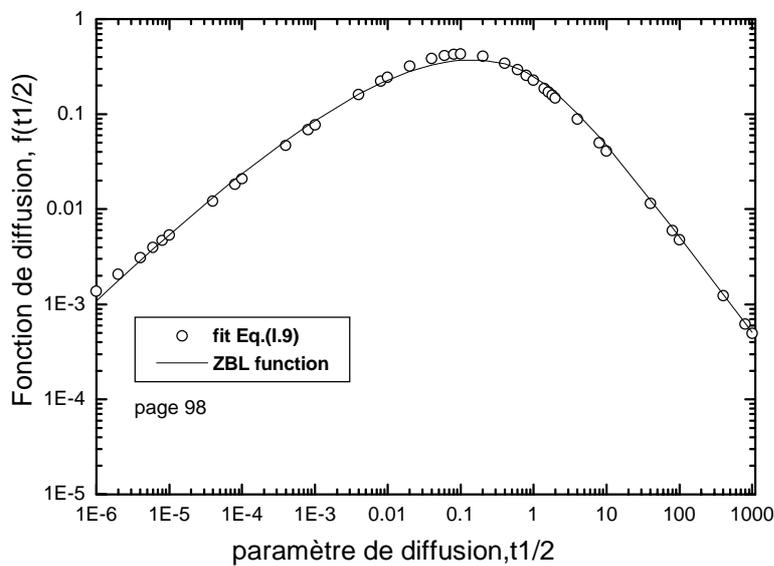
$$S_n(\varepsilon) = \frac{1}{\varepsilon} \int_0^\varepsilon f(t^{1/2}) dt^{1/2} = \frac{\varepsilon}{\pi a^2 \gamma E} S_n(E), \quad \varepsilon < 30 \quad \text{I-12}$$

$$\text{avec : } \gamma = \frac{4M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2}$$

$S_n$  est calculé numériquement en fonction de  $f(t^{1/2})$ . Cependant, pour le potentiel ZBL, le pouvoir d'arrêt nucléaire peut être décrit par la forme suivante :

$$S_n(\varepsilon) = \frac{0.5 \ln(1 + 1.1383 \varepsilon)}{\varepsilon + .01321 \varepsilon^{.21226} + .19593 \varepsilon^{.5}} \quad I-13$$

Le calcul de la fonction  $f(t^{1/2})$  à partir de **I-12** en utilisant le pouvoir d'arrêt ZBL **I-13** est en très bon accord avec le fit **I-9** de *Winterbon [WINT72]*, voir **figure I-3**.



**figure I-3 :** fonction de diffusion  $f(t^{1/2})$ , comparaison entre le fit donné par l'équation **(I-9)**, les paramètres obtenus par **[WINT72]** et celui obtenu à partir de  $S_n(\varepsilon)$  ZBL.

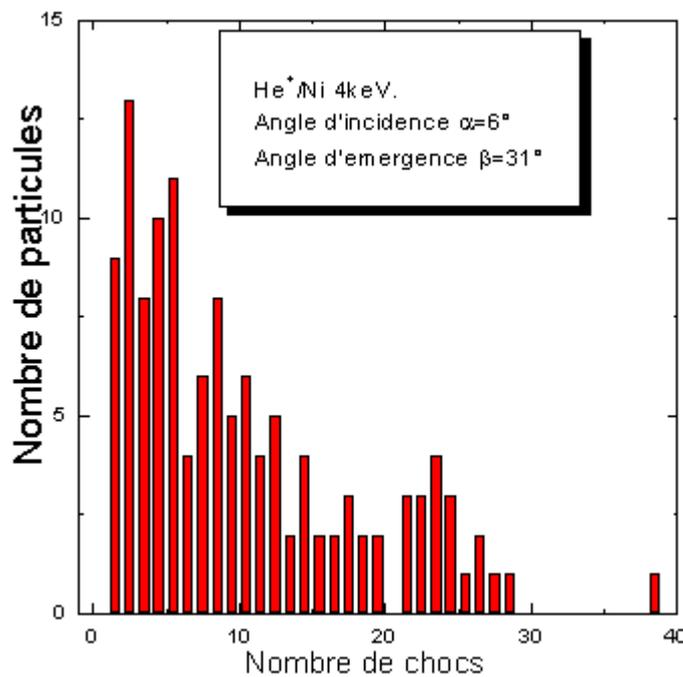
## A22. COLLISIONS MULTIPLES :

La collision simple n'est favorisée que dans des conditions très spécifiques (tel que le libre parcours moyen de chocs est grand devant les distances inter atomiques). Généralement, ce n'est pas le cas. Il a été montré **[Arz98]** que l'analyse des spectres de diffusion par collision simple, dans notre gamme d'énergie, n'explique pas la largeur des spectres expérimentaux. En effet, dans le cadre de cette approximation les spectres

énergétiques sont étroits, du fait que toutes les particules diffusées sous un angle donné perdent la même énergie par collision. La perte d'énergie électronique ne peut à elle seule expliquer l'élargissement observé des spectres. L'introduction de chocs multiples se traduit en premier lieu par un élargissement des spectres énergétiques, conforme aux observations expérimentales. Une étude par simulation numérique, de la statistique du nombre de collisions subies par les particules, montre que la plupart des particules sont éjectées après plusieurs chocs (*figure I-4*). La fraction de particules qui ont subi un seul choc est très faible. C'est le même résultat auquel [JAC81], [OVE87] et [NIE82] ont abouti.

Dans le cadre de cette approximation de collisions binaires, l'énergie perdue par une particule (par chocs nucléaires) après  $n$  collisions est donnée par :

$$E - E_n = \left( 1 - \prod_{i=1}^n K(\theta_i, A) \right) E \quad \text{I-14}$$



*figure I-4* : Statistique sur le nombre de chocs effectués par les particules diffusées.

## **B. Simulation Numérique :**

Il existe trois principaux types de code de calcul appliqués à l'interaction ions-solide (**Monte Carlo, Dynamique moléculaire, équation de transport**). Dans ce travail, on a utilisé deux codes de calcul basés sur l'approximation de collisions binaires (BCA) : MARLOWE établi par *Robinson et Torrens [ROB74]* et TRIM établi par *Biersack et Haggmark [BIE80]* et *Ziegler et al [ZIE85]*. Le premier permet de reproduire la structure cristalline du milieu et donc de déterminer les paramètres de diffusion en tout point. On a recours à des méthodes aléatoires pour fixer quelques paramètres tels que la position ou la direction initiale de la particule primaire. Le second consiste à simuler la trajectoire d'un ion d'énergie  $E$  qui produit des chocs aléatoires dans un milieu amorphe de densité  $N$ .

Dans ces codes, on ne tient pas compte des phénomènes d'échanges de charge ni de l'effet du potentiel image.

### **◆ PRESENTATION GENERALE DES CODES DE CALCUL :**

#### **B.1. TRIM :**

Le code TRIM est décrit en détail dans *Ziegler et al [ZIE85]*. Il a été développé essentiellement pour simuler l'interaction ions-solide à haute énergie, puis il a été étendu avec succès aux faibles vitesses [*Hou94*]. La version originale de TRIM était destinée à l'étude de l'implantation ionique et du sputtering. On utilise pour notre part une version modifiée de TRIM [*KHAL98*] adaptée à l'étude du phénomène de la diffusion.

Les principales hypothèses utilisées dans la simulation du processus de diffusion sont :

- La cible est non ordonnée (l'arrangement des atomes dans la cible est aléatoire, cependant la densité est constante).
- L'interaction entre l'ion incident et les atomes individuels de la cible est traitée dans le cadre de l'approximation de collisions binaires.
- Les pertes d'énergies nucléaires et électroniques sont traitées comme étant des processus indépendants.
- Pour des cibles polyatomiques, chaque type d'atome contribue à la perte d'énergie électronique avec un facteur proportionnel à sa densité (relation de Bragg).

- La perte d'énergie électronique à faible vitesse est basée sur le traitement de *Lindhard et Scharff* et à haute vitesse sur la formule de *Bethe*.

Dans ce code de calcul, on utilise l'un des potentiels écrantés définis dans le *tableau(-I-1)*. Nous avons choisi pour ce travail le potentiel universel (potentiel ZBL) qui a montré sa validité pour une grande variété de systèmes dans le domaine des basses énergies.

### PROCEDURE DE CALCUL :

Une particule d'énergie initiale  $E_0$  arrive sur une surface solide avec un angle  $\alpha$  (par rapport au plan de la surface, voir *figure I-5*). La simulation de la trajectoire de cette particule par TRIM s'effectue comme suit :

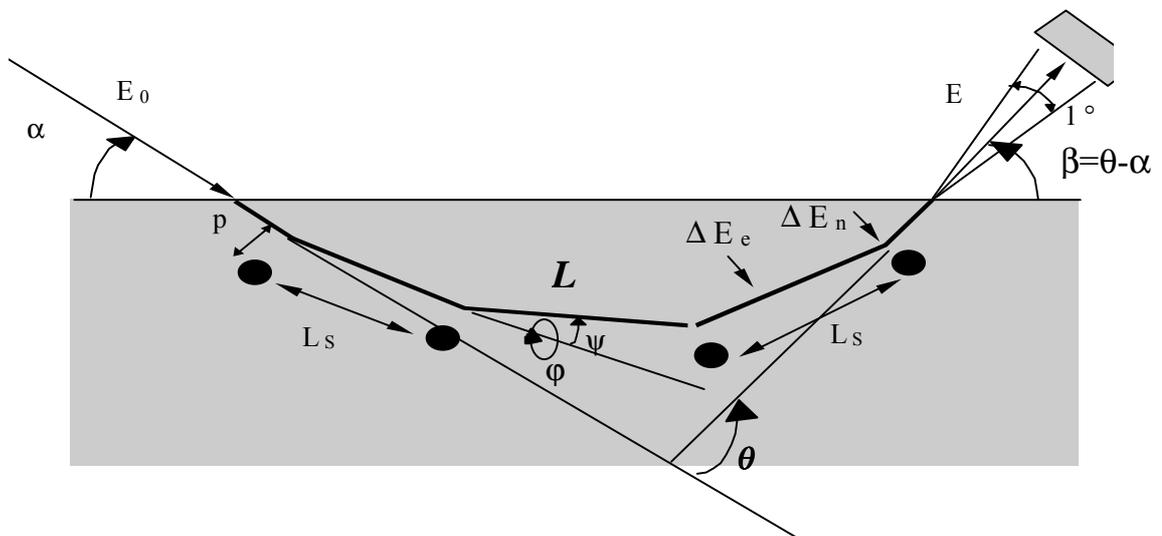
- Le premier choc se produit après un parcours  $L$  tel que  $L=R1 \text{ MIN}(L_s, C_w)$ ,  $R1$  étant un nombre aléatoire compris entre 0 et 1,  $L_s$  le libre parcours moyen défini à partir du paramètre d'impact maximum  $P_{\text{MAX}}$  ( $P_{\text{max}}$  est calculé en fixant un angle de diffusion  $P_{\text{simin}}$  (voir annexe (1)) au-dessous duquel on néglige toute diffusion) et de la densité  $N$

du milieu par  $\pi P_{\text{max}}^2 L_s = \frac{1}{N}$  et  $C_w$  la distance entre les plus proches voisins des atomes cibles. Cette dernière grandeur prend en compte le fait que, même pour des systèmes non ordonnés, il existe un ordre à courte distance déterminé par les paramètres de maille cristalline. Ainsi pour un réseau cubique à face centrées (cas du Nickel) de paramètre de maille  $a_0$ , la distance entre plus proches voisins est donnée par  $a_0/\sqrt{2}$ .

- Le paramètre d'impact est choisi en fonction du paramètre d'impact maximum par :  $P=P_{\text{max}}\sqrt{R_2}$  où  $R_2$  est un nombre aléatoire compris entre 0 et 1.
- La nouvelle direction du mouvement est calculée à partir de l'équation(I-1), l'angle azimutal  $\phi$  étant choisi aléatoirement entre 0 et  $2\pi$  par le tirage d'un troisième nombre aléatoire  $R_3$   $\phi=2\pi R_3$ .
- L'angle de diffusion étant connu, la perte d'énergie par choc nucléaire est calculée à partir de l'équation(I-6). La perte d'énergie électronique est calculée à partir d'un sous programme indépendant.

A la fin de la première collision, on dispose de toutes les informations nécessaires sur l'état de la particule ( parcours, énergie, position et nouvelle direction du mouvement)

qui vont représenter les nouvelles conditions initiales pour simuler la deuxième collision de la même façon que pour la première, hormis la condition sur  $C_w$ . La simulation des séquences de collisions est arrêtée lorsque la particule atteint une énergie fixée par l'utilisateur ou est éjectée du solide. Un certain nombre d'autres paramètres sont choisis par l'utilisateur pour fixer les conditions de la simulation sous forme d'un fichier d'entrée dont on donne un exemple en annexe(1).



*figure I-5 : Trajectoire des ions à l'intérieur du solide.*

## **B2. MARLOWE :**

Le programme MARLOWE permet de suivre l'ensemble des particules intervenant lors d'une cascade : projectile, cible ou même projectile stoppé dans le solide. Il utilise les hypothèses suivantes :

La cible a une structure cristallographique déterminée. On peut simuler un polycristal par rotation aléatoire du cristal avant chaque cascade, l'amorphe est simulé par rotation du cristalite représentant le proche environnement du projectile après chaque diffusion.

L'interaction entre ion incident et atome cible est traitée dans le cadre de l'approximation de collisions binaires. Des collisions simultanées avec plusieurs atomes cibles sont cependant possibles.

Il prend en compte les déplacements dus à l'agitation thermique des atomes du réseau.

Un atome cible qui acquiert une énergie suffisante pour surmonter une énergie de liaison  $E_B$ , peut participer à la cascade, de même qu'un projectile arrêté peut jouer le rôle d'atome cible pour un autre atome de la cascade.

### **PROCEDURE DE CALCUL :**

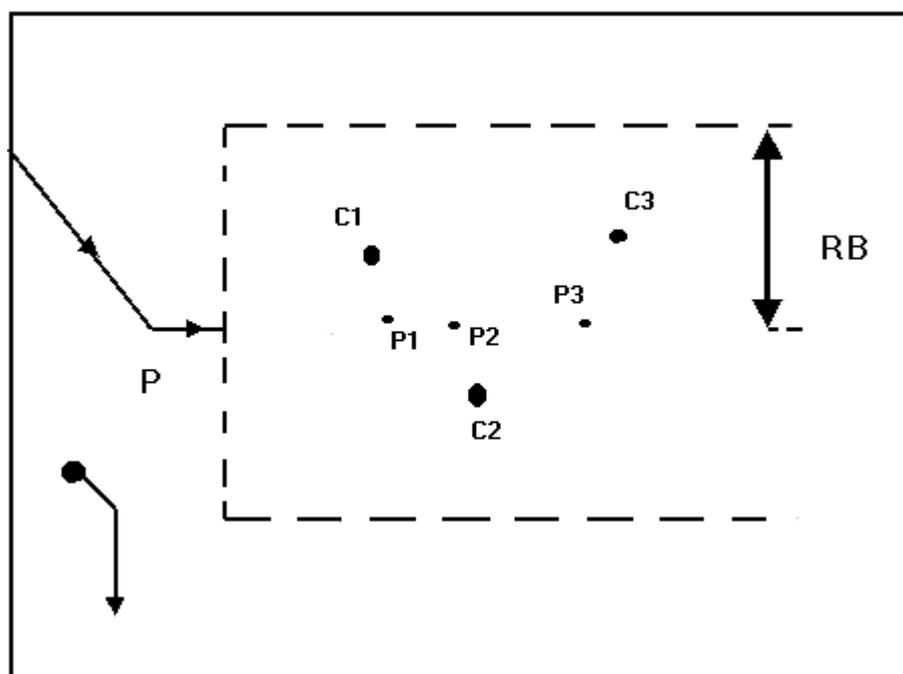
Après une collision au point P avec un atome C, le projectile parcourt une distance  $X_1$ . Le programme génère par la suite un cylindre de rayon  $R_B$ , dans lequel, la structure cristallographique cible est reproduite (*figure I-6*) puis :

- Il détermine pour chaque atome  $C_1, C_2, \dots$  du cylindre le point de diffusion  $P_1, P_2, \dots$
- La diffusion du projectile se fera au point de diffusion le plus proche.
- La nouvelle direction du mouvement est calculée. Les pertes d'énergies élastique et inélastique sont prises en compte pour calculer l'énergie finale après diffusion.
- Le calcul est arrêté lorsque tous les atomes de la cascade ont quitté la cible ou lorsque leur énergie devient inférieure à une valeur seuil.

Dans la situation où deux points de diffusion se confondent (lorsque la distance entre les deux points est inférieure à une valeur  $\Delta_{MAX}$  généralement prise égale à 25 picomètres), le calcul se fait comme suit :

- Calcul de la nouvelle direction du mouvement sous l'effet du 1<sup>er</sup> atome cible (en négligeant la présence de l'atome 2).
- Calcul de la nouvelle direction du mouvement sous l'effet du 2<sup>eme</sup> atome cible (en négligeant la présence de l'atome 1).
- La somme des deux vecteurs vitesse donne la direction finale de chaque particule. L'énergie finale est obtenue en écrivant la conservation de l'énergie totale.

Comme pour le code TRIM, un certain nombre de paramètres conditionnant la simulation sont définis dans un fichier d'entrée (annexe(2)).



*figure I-6* : Procédure de recherche des partenaires de collision dans le code MARLOWE

## **C. MECANISMES D'ECHANGES DE CHARGE :**

### **CI. ECHANGES DE CHARGE EN SURFACE :**

Lors du passage d'un ion dans la matière, les nuages électroniques du projectile et de la cible s'interpénètrent et donnent lieu à des transferts électroniques d'un atome à l'autre. Ces échanges de charge ont été mis en évidence expérimentalement par *Suurmerijer [SUU73]* qui, par analyse en charge du flux diffusé dans l'interaction d'un faisceau d'ions d'énergie de l'ordre du keV avec des surfaces solides, a observé la présence de particules neutres. Ces échanges de charge se font par des mécanismes différents en surface et en volume du solide. *Haggstrum [HAG54,56,77]* a donné une description qualitative des processus responsables d'échanges de charge en surface. Dans cette description, la structure en bande de la surface et les positions relatives des états liés du projectile déterminent la nature du transfert d'électrons et son sens. Deux types de transitions sont possibles : transition à un électron (mono-électronique) et transition à deux électrons (bi-électronique) [*Hoh92*].

#### **CI1. Transition monoélectronique :**

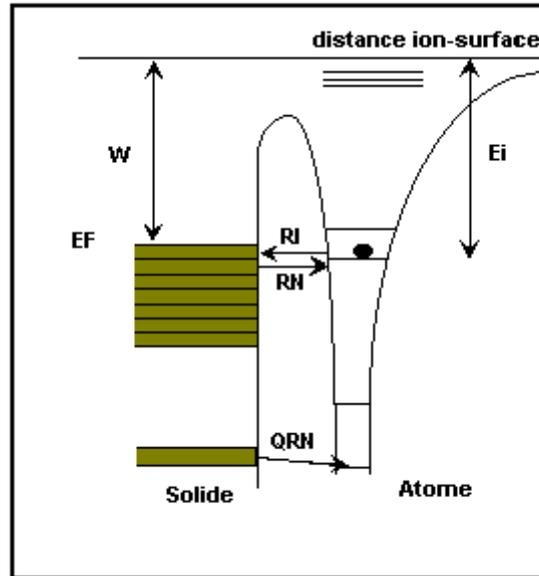
Un électron est échangé, par effet tunnel, entre la surface solide et l'atome. C'est une transition à énergie constante. Dans ce cadre deux types de transfert sont possibles (*figure I-7*) :

##### **i. Transfert résonnant :**

Un électron est échangé entre la bande de valence du solide et un état de l'ion incident situé au même niveau. Suivant le sens de la transition, on parle soit de neutralisation résonnante (**RN**) soit d'ionisation résonnante (**RI**). A cause de l'extension spatiale des fonctions d'ondes électroniques, ce processus peut se produire à des distances ion-surface relativement grandes (quelques unité atomique). C'est le processus d'échanges de charge dominant dans les collisions alcalin-métal.

##### **ii. Neutralisation quasi-résonnante :**

Elle est similaire à la neutralisation résonnante, mais elle fait intervenir les bandes profondes du solide.



**figure I-7 :** Les différents mécanismes d'échanges de charge dus à des transitions mono-électroniques.

### **C12. Transition biélectronique :**

Deux électrons sont impliqués dans le transfert. Un électron assure la transition et cède de l'énergie au deuxième qui est éjecté dans le vide. Trois principaux mécanismes sont possibles (**figure I-8**).

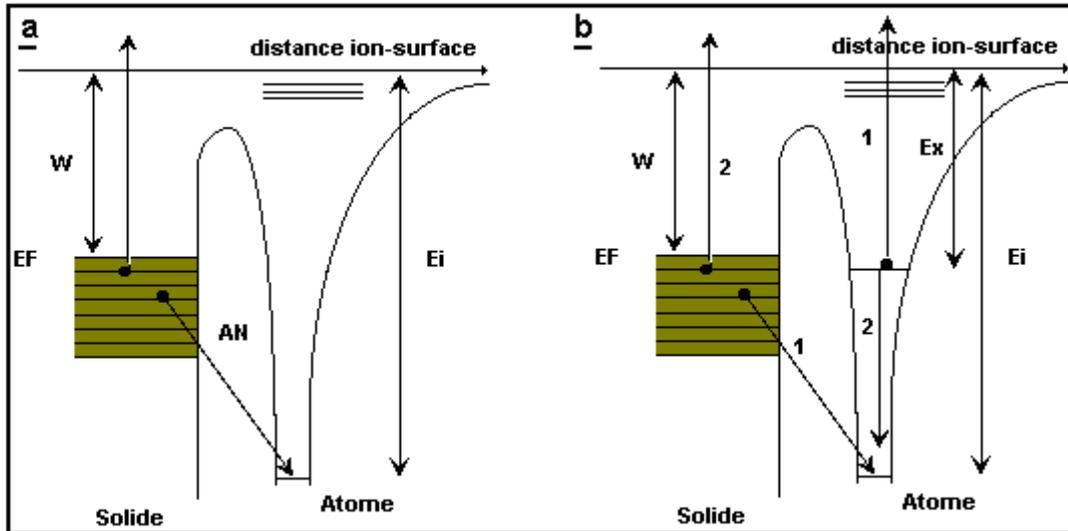
#### **i. Neutralisation Auger (AN) :**

Les deux électrons appartiennent à la bande de valence du solide, l'un est capturé à un niveau plus profond du projectile, l'autre est éjecté dans le vide. Ce processus n'est énergétiquement possible que si  $E_i$ , énergie de l'état de capture, est supérieure au travail de sortie  $W$  du solide. Impliquant des niveaux dont les énergies de liaison sont largement supérieures au travail de sortie, c'est le mécanisme prépondérant de neutralisation d'ions de gaz rares au voisinage des surfaces métalliques.

#### **ii. Désexcitation Auger (AD) :**

Il fait intervenir un électron de la bande de valence du solide et un électron du projectile situé à un niveau excité  $E_x$ . Deux cas de figure se présentent. Le résultat est le même, un électron est capturé sur un niveau profond inoccupé du projectile, le deuxième électron est éjecté dans le vide avec une énergie maximale  $E_{MAX} \cong \Delta E - W$ .  $W$  : travail de

sortie de la surface,  $\Delta E$  écart énergétique entre le niveau excité et le niveau initialement inoccupé du projectile.



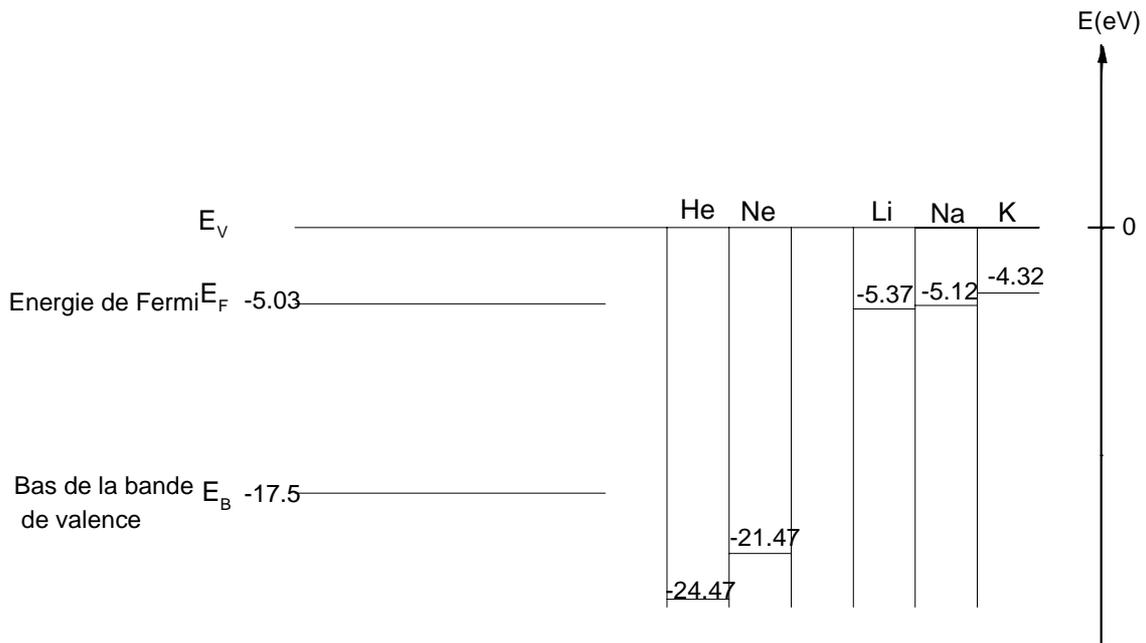
**figure 1-8 :** Schéma représentant : a) Neutralisation Auger (AN). B) désexcitation Auger (AD)

### iii. Autoionisation :

Les deux électrons appartiennent au projectile qui se trouve dans un état doublement excité. Un électron passe sur un état inoccupé du projectile provoquant l'émission du deuxième électron.

### C13. Mécanismes possibles dans notre étude :

Dans ce travail, on utilise deux types de projectiles : des ions de gaz rares ( $\text{He}^+$ ,  $\text{Ne}^+$ ) et des ions alcalins ( $\text{Li}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ) dont on montre sur la **figure 1-9** les niveaux de valence comparés à la bande de valence du Nickel.



**figure I-9** : Position relative du premier niveau d'ionisation de quelques atomes par rapport à la bande de valence du Nickel.

Les gaz rares sont caractérisés par une grande énergie d'ionisation, le processus résonnant est donc impossible [Hag61], [Ech90]. De nombreux travaux ont d'ailleurs montré que seule la neutralisation Auger est possible pour les ions de gaz rares en mettant en évidence leur fort taux de neutralisation [Hag61], [Nar89], [AON87], [Hag88], [Sou95], [Lor94] et [Nar93].

Les ions alcalins, caractérisés par une faible énergie d'ionisation, ne se neutralisent pas par processus Auger (la condition énergétique nécessaire n'étant pas vérifiée). Énergétiquement donc, seule la neutralisation ou la réionisation résonnante est possible. Cependant, le fait que les états de valence des alcalins soient, en général, situés au-dessus du niveau de Fermi des solides rend la neutralisation résonnante faiblement probable. De plus, le taux de neutralisation diminue quand on passe des alcalins légers aux alcalins plus lourds. Ces considérations sont illustrées par la **figure III-1** qui représente les fractions de charge que nous avons mesurées pour les deux types de projectiles en diffusion spéculaire à différents angles d'incidence. On y constate en effet que :

- La fraction de charge est très faible pour les gaz rares entre (1% et 2% pour  $\text{Ne}^+/\text{Ni}$ ).
- Pour les systèmes alcalins, la fraction de charge est importante et augmente avec le numéro atomique du projectile passant de 60% environ pour  $\text{Li}^+$  à 80% environ pour  $\text{Na}^+$ .

## **C2. ECHANGE DE CHARGE EN VOLUME :**

A l'intérieur du solide, des échanges de charge entre projectile et cible sont possibles lors des collisions proches. Ainsi une particule qui a survécu à la neutralisation en surface peut être neutralisée en volume de même qu'une particule neutralisée en surface peut être réionisée en volume [Sou86], [Tsu86] et [Mud88]. Ces échanges ne s'effectuent pas selon les mêmes mécanismes qu'en surface.

Pendant la collision, l'atome projectile se rapproche de l'atome cible. Lorsque la distance inter nucléaire diminue, les couches atomiques se recouvrent partiellement formant ainsi une quasimolécule. Les transitions électroniques dans un tel système sont expliquées par le modèle de promotion électronique [Fan65][Lic67][Bar72], qui donne une évaluation de la variation de l'état énergétique d'un électron avec la distance internucléaire. On utilise pour cela des diagrammes de corrélation adiabatique des orbitales moléculaires dont on donne sur la *figure I-10* un exemple correspondant au système  $\text{Ne}^+/\text{Ni}$ . Le passage des états sphériques des atomes séparés à grande distance vers les états sphériques d'atome uni est effectué en respectant des règles de conservation du nombre quantique magnétique  $m_l$  et du nombre de nœuds des fonctions d'onde établies par Barat et Lishten [Bar72]. Des transitions électroniques se produisent entre états pour lesquels on a  $\Delta\lambda = 0$  (couplage radial) ou  $\Delta\lambda = \pm 1$  (couplage rotationnel),  $\lambda$  étant le nombre quantique orbital de l'atome uni auquel est corrélé l'état moléculaire. De telles promotions sont possibles pour une distance minimale d'approche  $r_{\min}$  entre projectile et cible inférieure à une valeur seuil  $R_c$  (appelée distance de croisement).

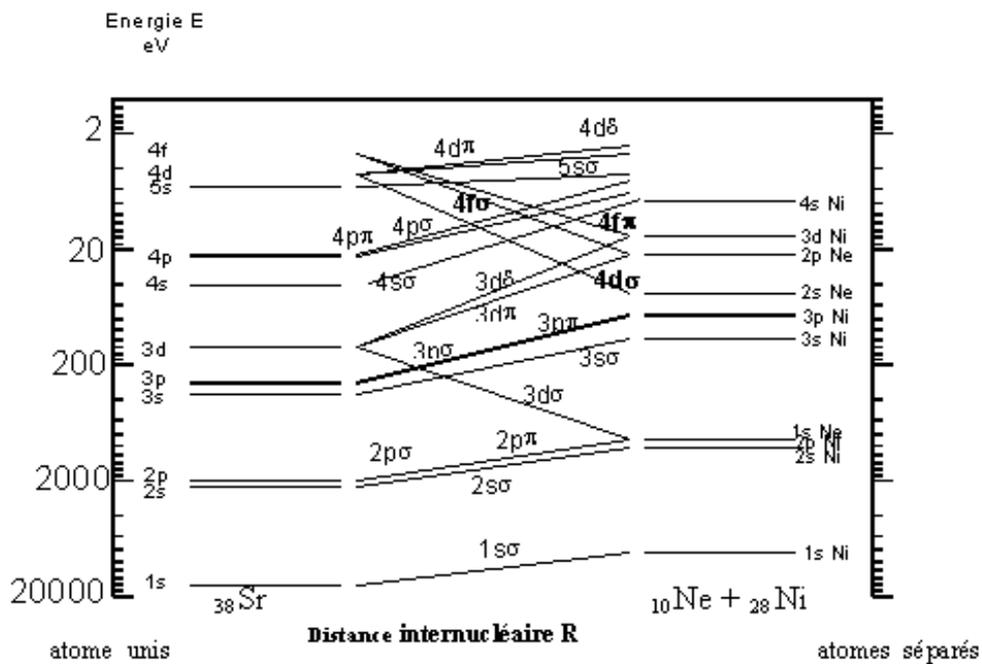
Dans le *tableau(I-4)*, on donne les valeurs de  $R_c$  obtenues dans notre équipe [Bel00] comparée à  $r_{\min}$  pour quelques systèmes. Ces valeurs de  $R_c$  sont déduites de l'étude de la variation de la fraction de charge en fonction de l'énergie des ions incidents

pour un angle de diffusion constant. Les valeurs de  $r_{\min}$  correspondent à des ions de 4keV diffusés à  $10^\circ$ .

Systèmes	$R_c$ ( $\text{A}^\circ$ )	$r_{\min}$ ( $\text{A}^\circ$ )
He/Ni	0.27	0.34
Ne/Ni	0.4	0.55
Ar/Ni	0.4	0.72

**Tableau(I-4) :** Comparaison entre  $r_{\min}$ , distance minimale d'approche, et  $R_c$ , distance de croisement, pour He, Ne et Ar sur Ni.

On constate qu'à l'énergie (4keV), la distance d'approche entre atome projectile et atome cible rend les échanges de charge par promotion électronique quasi-impossibles.

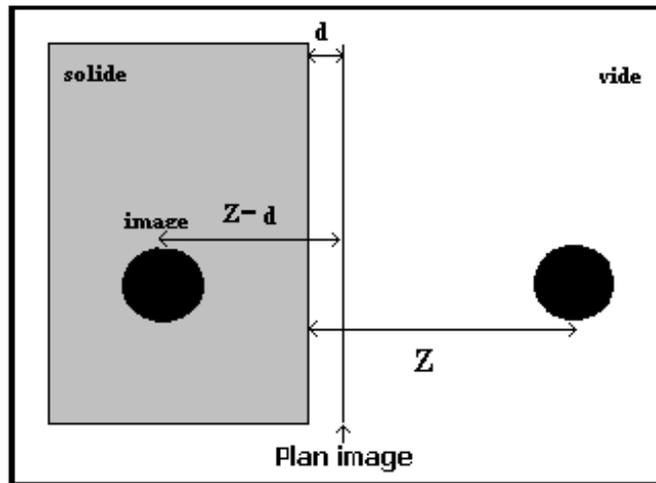


**Figure I-10 :** Diagramme de corrélation pour le système  $\text{Ne}^+/\text{Ni}$ .

## D. EFFET DE LA FORCE IMAGE ET DE LA VITESSE PARALLELE :

### D1. FORCE IMAGE :

Lorsqu'une particule chargée voyage au voisinage d'une surface solide, elle sent, en plus du potentiel inter-atomique, la présence d'un potentiel de nature attractive qui provient d'une charge image créée à l'intérieur du solide, **figure I-11**. L'effet de ce potentiel, dit potentiel image, est bien décrit en électrostatique classique [*Jac75*].



**figure I-11:** Un ion au voisinage d'une surface solide induit une charge image dans le solide symétriquement par rapport au plan image.

Classiquement, ce potentiel vaut [*KAT88*] :

$$V_{\text{im}} = -\frac{1}{4(Z-d)} \quad \text{I-15}$$

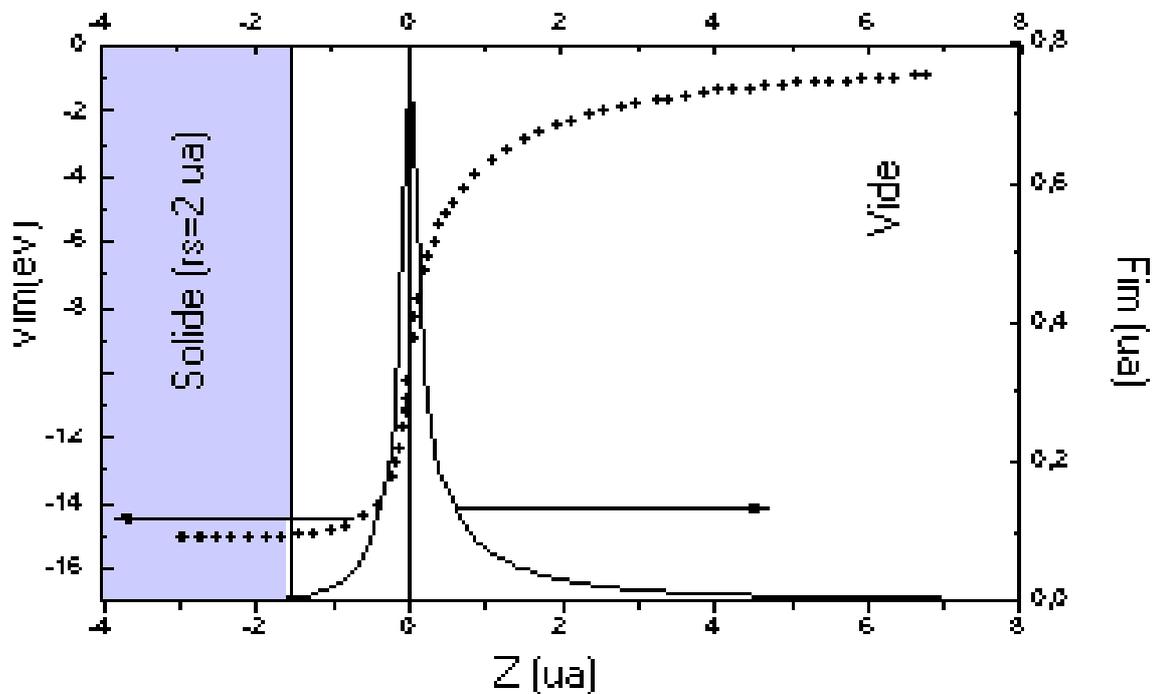
**Z:** distance normale à la surface.

**d:** Position du plan image, par rapport à la surface, défini par *LANG* [*LAN73*]. Il est de l'ordre de 1 à 2 Å [*And89*],[*Zan88*],[*Lan73*].

Plusieurs modèles théoriques ont été proposés dans le cadre de l'étude du potentiel image, en particulier celui proposé par *Kato* [*Kat88*] basé sur l'approximation de Thomas Fermi, et dans lequel la présence d'une charge à l'intérieur d'un métal de densité  $r_s$  (rayon électronique de Wigner-Seitz, c'est à dire le rayon d'une sphère contenant un électron défini par  $4/3\pi r_s^3 = 1/N$ ) induit un potentiel :  $V(r) = -\frac{Z}{r} \exp(-K_{\text{TF}} r)$  où

$K_{TF} = 1.56318 / \sqrt{r_S}$  est la constante d'écran de Thomas Fermi. A partir de l'équation de Poisson, on déduit la densité induite  $\delta n(r)$ , l'énergie potentielle correspondante  $E(r)$  étant définie par  $E(r) = \int V(r) \delta n(r) 4\pi r^2 dr$ . Le potentiel image est la variation de l'énergie potentielle de la charge incidente entre l'infini et l'intérieur du solide.

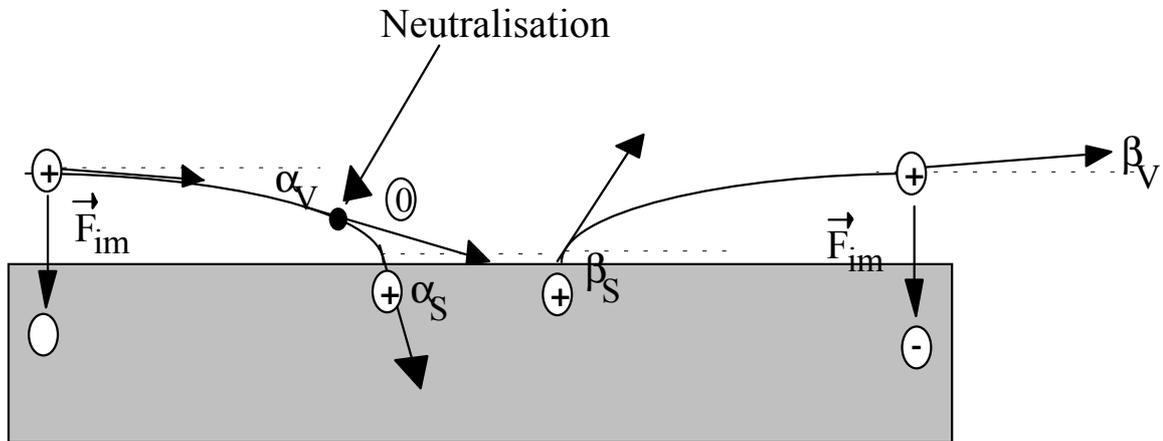
La **figure I-12** représente la variation de la force image et du potentiel image dans le cadre de ce modèle (pour  $r_s=2$  u.a). On constate que la force image n'est significative qu'au voisinage immédiat du plan image (la largeur à mi-hauteur est en effet inférieure à 0.5ua).



**figure I-12:** Evolution du potentiel et de la force image en fonction de la distance  $Z$  normale à la surface effective du solide.

La force qui dérive de ce potentiel, dite force image, aura essentiellement deux effets sur le projectile [Luu92] :

**I.** Attirer les ions vers la surface, accélération dans la phase d'approche et décélération dans la phase d'éloignement *[Aut95],[Win92,93,96A,96C]*.



**figure I-13:** Perturbation de la trajectoire des ions au voisinage d'une surface solide sous l'effet de la force image.

L'étude exacte de la variation de la trajectoire d'un ion sous l'effet du potentiel image est relativement compliquée. La trajectoire est en effet conditionnée par les processus d'échange de charge. On simplifie le problème en remarquant que, comme déjà signalé, la force image est très piquée au niveau du plan image (*figure I-12*). Cela permet de supposer avec une bonne approximation, que seuls les ions existants au niveau du plan image sont sensibles au potentiel image et vont donc changer de trajectoire. Les valeurs mesurées ( $\alpha_V, \beta_V$ ) et effectives ( $\alpha_S, \beta_S$ ) des angles d'incidence et d'émergence sont liées par la relation *[Kat88]* :

$$\tan \alpha_S \text{ (resp } \beta_S) = \tan \alpha_V \text{ (resp } \beta_V) \left[ 1 + \frac{V_{im}}{E \sin^2 \alpha_V \text{ (resp } \beta_V)} \right] \quad \text{I-17}$$

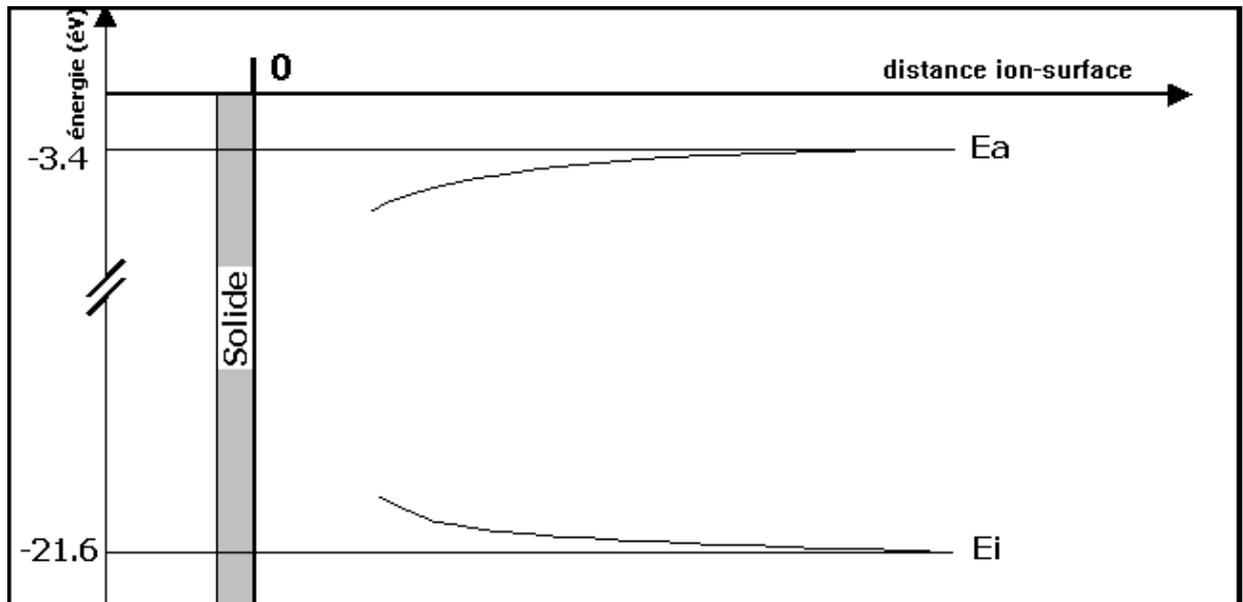
avec  $E$  énergie de la particule et  $V_{im}$  valeur du potentiel image.

Pour  $E=4\text{keV}$  et  $V_{im}=15\text{eV}$ , l'écart entre  $\alpha_S$  (ou  $\beta_S$ ) et  $\alpha_V$  (ou  $\beta_V$ ) varie entre  $2.6^\circ$  pour  $\alpha_V=1^\circ$  à  $1^\circ$  pour  $\alpha_V=6^\circ$  et devient très faible pour des angles supérieurs. Ceci montre que, dans le cas présent, ce phénomène n'est important qu'aux petits angles.

**II.** Modifier l'énergie de liaison de l'électron d'une quantité  $\Delta E_{im}$  telle que  $\Delta E_{im} = (2Q-1)/4Z$  (au) où  $Q$  est la charge du cœur atomique moins un électron. Deux cas peuvent ainsi se présenter (*figure I-14*) :

- 1)  $Q=0$  (ions négatifs) : l'énergie d'ionisation augmente d'une quantité  $-1/4Z$  (au).
- 2)  $Q \geq 1$  (atome neutre ou ion positif) : l'énergie d'ionisation diminue d'une quantité  $\Delta E_{im} = (2Q-1)/4Z$  (au).

Ce déplacement des niveaux (de l'ordre de quelques eV) influe directement sur les probabilités d'échanges de charge avec la cible. En particulier, il défavorise les processus résonnants pour les alcalins dont le niveau d'ionisation (niveau concerné par la transition électronique) est généralement situé juste au-dessus de la bande de valence des solides.



**figure I-14 :** Déplacement des niveaux atomiques du projectile sous l'effet de la force image. Pour un ion négatif (Fluor,  $E_a = -3.4$  eV) l'énergie d'ionisation augmente. Pour un ion positif (Néon,  $E_i = -21.6$  eV) l'énergie d'ionisation diminue.

La valeur du potentiel image qui représente la variation de l'énergie potentielle de la charge incidente entre l'infini et l'intérieur du solide, dépend, dans le modèle de Kato, essentiellement de l'état de la charge de l'ion (monochargé ici) et de la densité électronique du solide  $r_s$ .

La densité  $r_s$  est déduite à partir du nombre des électrons de valence  $N$  par :

$$r_s = 1.389 \left[ \frac{A(\text{g})}{N\rho(\text{g/cm}^3)} \right]^{1/3} \text{ ua.}$$

Où  $A$  représente la masse molaire de l'atome (g) et  $\rho$  la densité du solide ( $\text{g/cm}^3$ ).

Cela conduit pour le Nickel à  $r_s=2$  ua (pour  $N=2$ ). Le nombre effectif des électrons de valence  $N_{\text{eff}}$  peut cependant être différent de la valeur nominale. Deux approches sont proposées pour le calcul de  $r_s$ . Dans l'une, il est calculé à partir du travail de sortie des éléments  $W_s$  (énergie minimale nécessaire pour extraire un électron du solide) [Hal98] à

l'aide de la relation  $r_s = \left[ \frac{W_s(\sqrt{E_F})}{43.4} \right]^{-2/3}$  qui donne  $r_s=2.1$ ua pour le Nickel. La deuxième

approche est basée sur l'excitation des plasmons d'un gaz d'électrons libres. Le nombre des électrons de valence  $N_{\text{eff}}$  participant aux excitations des plasmons est calculé dans le cadre de la théorie de réponse linéaire et  $r_s$  est donné en fonction de la fréquence plasma

$\omega_P$  par  $r_s^{\text{eff}} = \left[ \frac{47.1}{\hbar\omega_P(\text{eV})} \right]^{2/3}$ . A partir de la fréquence plasma expérimentale  $\omega_P^{\text{exp}}(\text{Ni})$ , on

obtient ainsi  $r_s^{\text{eff}}(\text{Ni})=1.8$  ua [Isac]. La valeur de  $r_s$  est donc comprise entre 1.8 et 2.1 ce qui correspond à un nombre d'électrons de valence compris entre 2 et 3. Cela étant, comme on le montre dans le tableau I-5, ces écarts sur la valeur de  $r_s$  n'ont que peu d'influence sur les écarts entre angles mesurés et angles effectifs déduits de la relation I-17. En utilisant la valeur moyenne  $r_s=2$ , on introduit en effet, une incertitude inférieure à  $0.1^\circ$  sur les angles effectifs  $\alpha_V$  et  $\beta_V$ , trop petite pour la précision des mesures angulaires et la sensibilité des codes de simulation utilisés. Ceci, se traduit par une erreur relative, sur le rendement de la diffusion, inférieure à 10% dans le cas le plus défavorable ( $\alpha_V=1^\circ$ ).

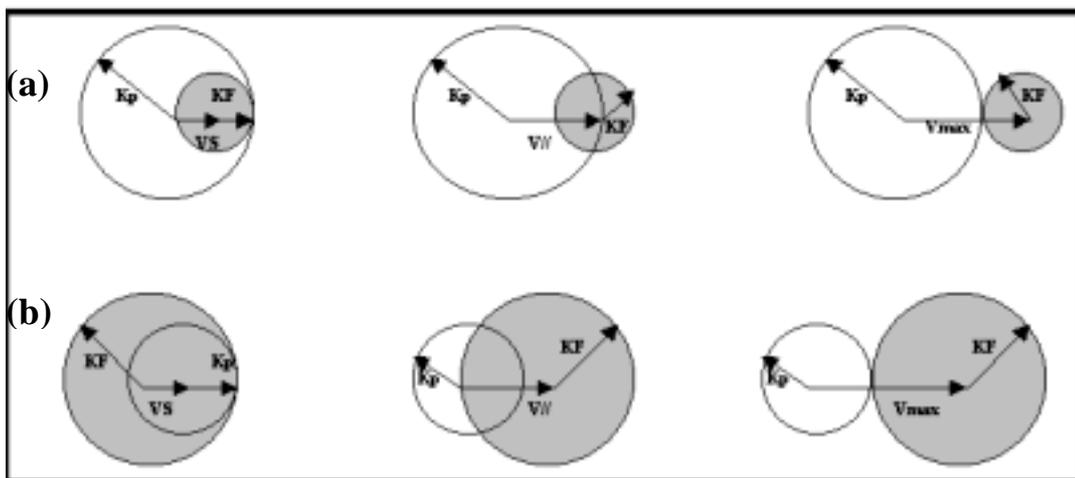
Densité $r_s(\text{ua})$		1.8	2	2.1
$V_{\text{im}}$ (eV)		15.8	15.	14.7
$\alpha_s$ ( $^\circ$ ) pour	$\alpha_V=1^\circ$	3.7	3.6	3.6
	$\alpha_V=6^\circ$	7	6.9	6.9

**Tableau(I-5) :** Ecarts entre angles mesurés et angles effectifs déduite de la relation I-17, pour différents valeurs de  $r_s$ .

## D2. EFFETS DYNAMIQUES DE L'INTERACTION :

Dans le référentiel lié à l'atome projectile, les électrons du solide vont acquérir une vitesse supplémentaire qui peut dans certaines conditions, intervenir dans la description des phénomènes d'échanges de charge entre projectile et surface solide.

Dans l'espace des phases, les états des électrons du métal sont contenus dans une sphère de rayon  $K_F$  (vecteur d'onde de la surface de Fermi). Le niveau atomique est représenté par un cercle  $K_P$ . L'effet de la vitesse parallèle se traduit par le déplacement de la sphère de Fermi d'une quantité  $mV_{//}/\hbar$ , **figure I-15**.

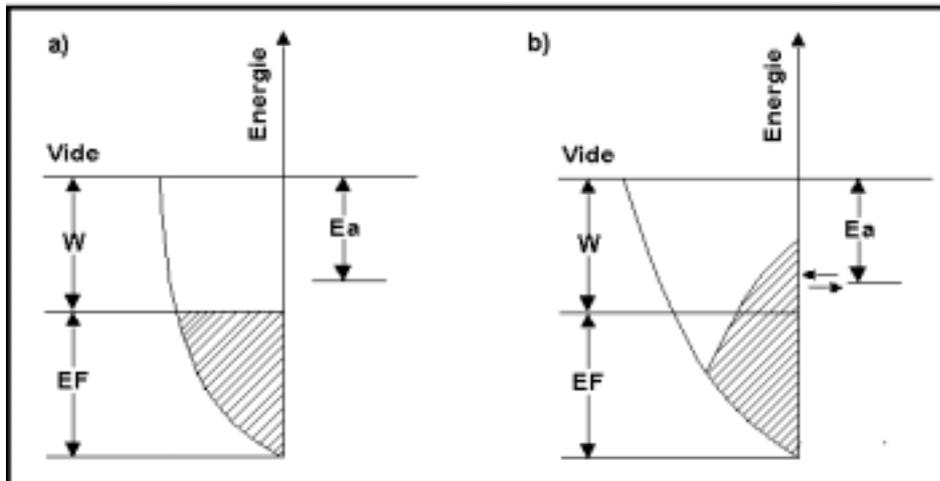


**figure I-15 :** Modèle de la sphère de Fermi déplacée. a)  $K_P > K_F$  b)  $K_P < K_F$ . Le transfert d'électrons n'est possible que dans un intervalle  $V_S = \hbar/m |K_P - K_F| \leq V_{//} \leq V_{Max} = \hbar/m(K_P + K_F)$ .

En terme d'énergie, cela signifie qu'une fraction des électrons du métal peut passer au-dessus du niveau de Fermi, et donc rendre possibles des processus initialement impossibles dans le cas statique (cas où on néglige l'effet de  $V_{//}$ ) ou augmenter la probabilité d'échange de charge dont le cas où elle est faible (**Figure I.16**).

De nombreux travaux ont montré cet effet dynamique sur les échanges de charge résonnants [ZIM89],[Kim93],[Gee90],[Bra89],[Wyp91].

Il a été observé cependant, que les effets de la vitesse parallèle ne sont significatifs qu'à des énergies relativement grandes (supérieure à 10keV). Comme dans ce travail, on se limite à une énergie de 4keV, on ne doit pas s'attendre à une augmentation de l'efficacité du transfert résonnant.



**figure I-16 :** Sous l'effet de la vitesse parallèle, une fraction des électrons de la bande de valence du solide peut passer au-dessus du niveau de Fermi. a) Cas statique ( $V_{//}=0$ ). b) Cas dynamique ( $V_{//}\neq 0$ )

## **E. LE COEFFICIENT DE REFLEXION :**

### **E1. POSITION DU PROBLEME :**

Le problème à considérer est le suivant : un faisceau de particules d'énergies  $E_0$  arrive sur une surface cible avec un angle d'incidence  $\alpha$ . Une partie des projectiles vont quitter la surface. Le problème est de trouver la distribution des énergies et des directions de réflexion des particules sortantes, c'est à dire la fonction de réflexion.

### **E2. DEFINITION:**

Le coefficient de réflexion de particules d'énergies  $E_0$  par des surfaces solides est le nombre de projectiles diffusés à un angle  $\theta$  indépendamment de leurs énergies. Soit  $W(\theta, E, E_0)$  la fonction de réflexion, distribution en énergie des particules diffusées à un angle  $\theta$  dans un angle solide  $\Delta\Omega$ . Sous l'impact de  $N_0$  particules arrivant sur la surface avec une incidence  $\alpha$ , le coefficient de réflexion sera donné par :

$$R(\alpha, \theta) = \frac{1}{\Delta\Omega N_0} \int_0^E W(\theta, E, E_0) dE \quad \mathbf{I-16}$$

L'étude expérimentale de la distribution angulaire du coefficient de réflexion de particules par des surfaces solides à incidence rasante nécessite des conditions expérimentales stables : intensité et ouverture du faisceau, centrage du faisceau sur la cible, acceptance du système de détection, état physique et chimique de la surface cible...etc. Le problème de la variation de l'intensité du faisceau peut dans une certaine mesure être contourné en enregistrant des spectres de références lors d'une même série de mesures. Cependant, la part des autres facteurs, en particulier la variation de l'acceptance des détecteurs, qui vont définir un facteur géométrique, pose un grand problème, notamment aux faibles angles où leur contribution devient importante.

D'autre part, dans le calcul du coefficient de réflexion par les codes de simulation numérique, en particulier par TRIM, on néglige toujours l'effet de la force image sur le rendement de la réflexion, alors que cet effet peut devenir important aux faibles angles et pour des systèmes de faible taux de neutralisation.

La confrontation des résultats de la simulation à ceux de l'expérience nécessite donc d'introduire deux facteurs de correction :

- Une première correction qui dégage la part de l'effet de la force image. Cela nécessite la connaissance de deux paramètres : le potentiel image  $V_{IM}$  et la fraction de charge dans la voie d'entrée et dans la voie de sortie.

- Une deuxième correction qui dégage la part des effets liés à l'état de la surface et à la géométrie du système de détection qu'on regroupera dans un facteur géométrique. Le problème qui se pose est la détermination de ce facteur qui, a priori, n'est pas accessible à une mesure directe.

***Deuxième partie :***  
***Procédure expérimentale***

## **A. Montage Expérimentale :**

Dans ce travail, nous avons utilisé la technique expérimentale dite LEIS (Low Energy Ion Scattering) dont fait partie l'ISS (Ion Scattering Spectroscopy). Elle permet une spectroscopie par temps de vol (TOF) des particules diffusées et des particules de recul selon leur état de charges [Ben94]. C'est une technique très performante, en ce qu'elle permet l'analyse des premières monocouches de la cible sans détériorer l'état de la surface car on utilise un faisceau pulsé (flux faibles) de faible énergie.

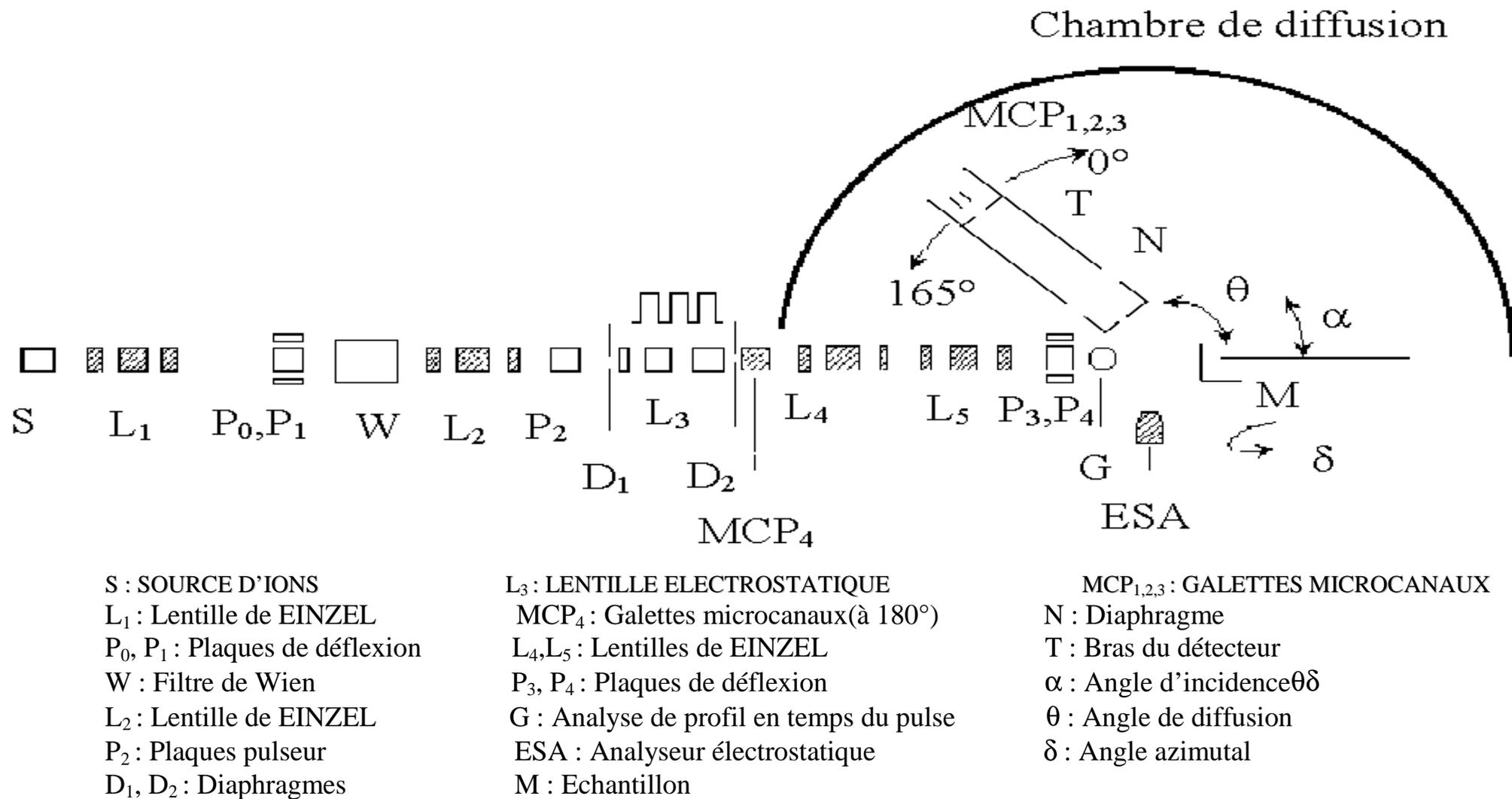
Le dispositif expérimental de base utilisé a été décrit en détail dans (BEN94 et Arz98b). Des petites modifications ont été apportées et ont été décrites dans (DBI99). Il comporte trois principaux blocs : bloc de sources, bloc d'accélération et bloc de diffusion (figure II-1). Le traitement des signaux délivrés par les détecteurs est assuré par une chaîne d'acquisition et de mesure.

### **A1. Sources d'ions :**

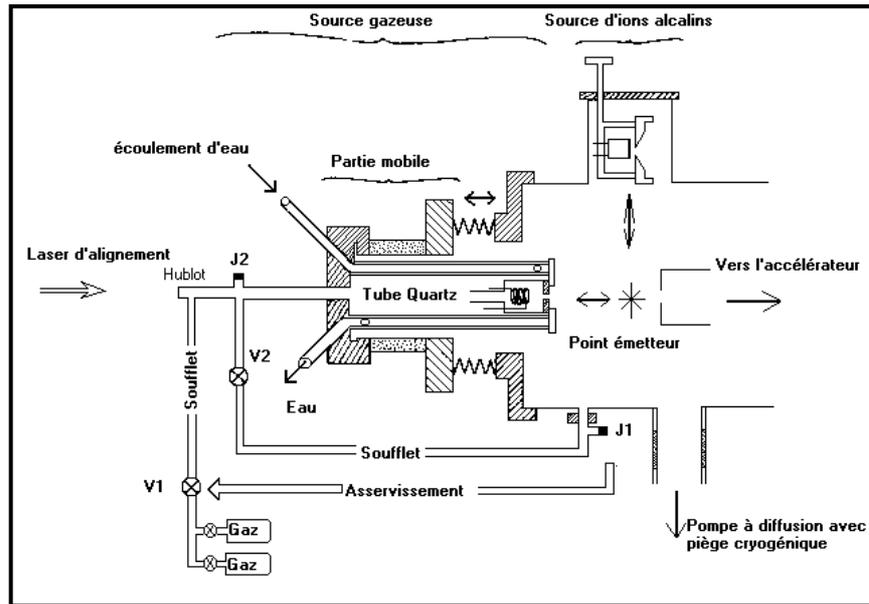
Deux sources d'ions sont disponibles, une source à gaz et une source à solide. L'une peut être remplacée par l'autre rapidement et sans casser le vide (figure II-2-).

Dans la première source, source à gaz, le gaz est ionisé par bombardement permanent avec des électrons d'énergie voisine de l'énergie d'ionisation des gaz rares (30 à 40eV), émis par un filament en tungstène porté à haute température par la circulation d'un courant de 10 à 20 A. La production d'ions dépend aussi de la pression. Cette dernière est maintenue constante par une électrovanne piézo-électrique. L'ensemble est refroidi par circulation d'eau et est mobile longitudinalement.

La deuxième source, source à solide, principalement solides alcalins, mobile transversalement porte une pastille contenant du tungstène dans laquelle un composé du matériau à ioniser a été fondu. L'extraction du faisceau d'ions, qui est très stable, est assurée par le chauffage indirect de la matrice à des températures élevées ( $\approx 1000^\circ$ ).



**Figure II-1 :** Les trois blocs du dispositif expérimental, bloc source, bloc accélération et chambre de diffusion, et l'optique associée.



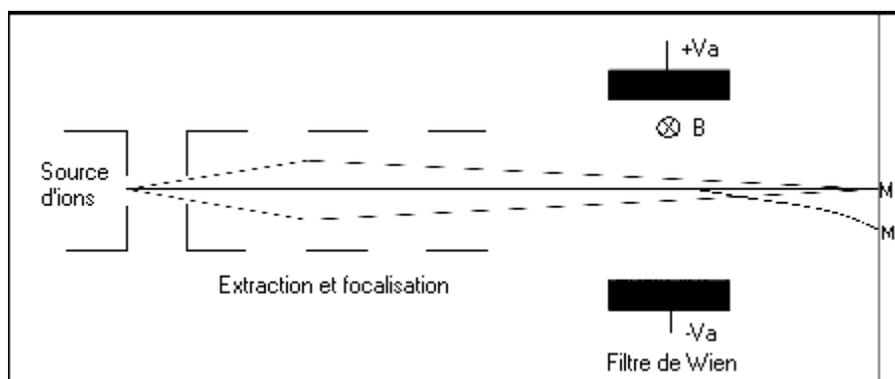
**Figure II-2 :** Bloc de sources d'ions.

### A2. L'accélérateur :

Le faisceau produit dans la source émerge à travers un diaphragme de 0.5 mm et est accéléré par une tension d'extraction de 4kV puis focalisé par une lentille de type EINZEL.

La sélection en charge/masse des ions est effectuée par un filtre de WIEN, filtre de vitesse [Wah64], qui associe un champ magnétique B perpendiculaire à un champ électrique E.

Lorsque la force magnétique compense la force électrique, seul le faisceau des ions de masse  $M_0$  et de vitesse  $V_0 = \frac{B}{E}$  peut passer par un diaphragme placé sur l'axe optique.



**figure II-3:** Principe de séparation en masse subie par le faisceau d'ions lors de son passage à travers le filtre de Wien.

Afin d'effectuer une analyse par temps de vol, on dispose sur le trajet des ions d'un pulseur constitué d'un déflecteur électrostatique et d'un diaphragme. L'une des plaques déflectrices est portée à un potentiel constant d'environ 50V, l'autre est portée à un potentiel périodique de forme rectangulaire compris entre 0 et 100V. Le faisceau passe par le diaphragme deux fois par période. A la sortie du pulseur, on dispose d'un collecteur qui permet de vérifier la forme du faisceau.

Après le pulseur, le faisceau (pulsé ou non) peut être post accéléré ou décéléré. Une focalisation finale est réalisée par deux lentilles de EINZEL afin d'obtenir un faisceau fin focalisé ( $\varnothing < 0.2\text{mm}$ ) ou un faisceau parallèle ( $\varnothing \sim 1.5\text{mm}$ ).

Pour atteindre la surface de la cible, le faisceau peut être déplacé verticalement ou horizontalement par deux séries de plaques parallèles P3 et P4. Le faisceau atteint ainsi la cible avec les caractéristiques suivantes :

- E : 1 à 80keV.
- I : 50 à 500 nA (faisceau direct).
- $\varnothing < 0.2\text{ mm}$  (faisceau focalisé), et  $\sim 1.5\text{mm}$  (faisceau parallèle).

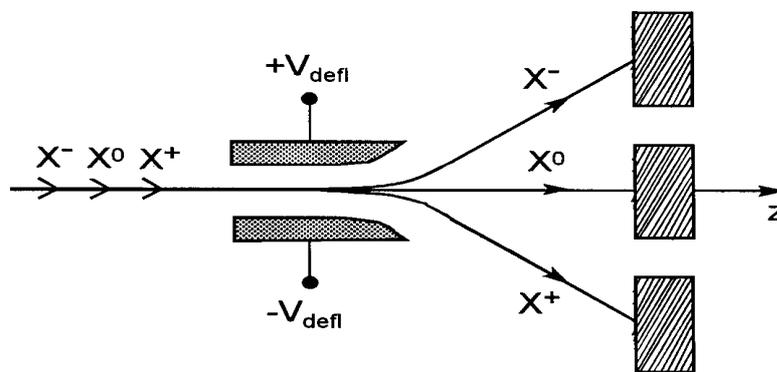
Il faut noter que des contraintes expérimentales, liées à la stabilité et au transport du faisceau, font que l'on ne peut exploiter actuellement que la gamme d'énergie 2 à 12 keV.

### **A3. Chambre de diffusion :**

La géométrie de la chambre de diffusion, semi-circulaire, permet l'interaction ion-surface avec des incidences allant de l'incidence normale à l'incidence rasante et des angles de diffusion comprises entre  $0^\circ$  et  $165^\circ$ .

L'échantillon est monté sur un porte-échantillon et a la possibilité de se déplacer suivant 5 degrés de liberté, trois translations, suivant les trois axes x, y et z, et deux rotations l'une autour de l'axe vertical, axe perpendiculaire à la direction du faisceau incident, qui définit la variation de l'angle d'incidence et l'autre autour de l'axe normal à la surface de la cible. Le porte échantillon peut être chauffé par une résistance électrique jusqu'à  $800^\circ\text{C}$ . Cela permet de dégager les impuretés dans le solide (surtout en surface). Il peut être également refroidi par une circulation d'azote liquide.

Les particules diffusées vont parcourir une distance de 619 mm qui représente la distance cible détecteur c'est-à-dire la longueur de la ligne de temps de vol. Le tri des ions suivant leurs états de charge s'effectue par un système de séparation de charges constitué d'une paire de plaques de déviation alimentées symétriquement. Les particules (neutres, positives et négatives) sont ensuite détectées suivant leur état de charge sur trois galettes microcanaux (MCP) (*figure II-3*). La ligne de TOF définit une acceptation de  $0.8^\circ$ .



*figure II-4* : Système de séparation des différents états de charge.

La tension de déflexion est choisie de sorte à ne pas perdre de comptage sur les particules chargées. En général pour une tension de déflexion de 300V la détection des particules chargées s'effectue de façon optimale sur une gamme d'énergie de près de 2keV, ce qui couvre bien la zone d'énergie des particules diffusées.

Une détection directe des particules secondaires émises est assurée par une quatrième galette à micro canaux (MCP4). Les électrons secondaires, vu leur petite masse, sont émis avec des vitesses relativement grandes. Leur temps de vol est de l'ordre d'une centaine de nanosecondes c'est à dire très inférieur à celui des ions diffusés de l'ordre de la microseconde. Le pic des électrons détectés par la galette MCP4 va servir comme origine des temps pour estimer le véritable temps de vol des particules diffusées.

#### **A4. Système de Pompage :**

Afin d'éviter les collisions du faisceau incident ou diffusé avec les atomes du gaz résiduel, il est indispensable de pomper le gaz le long du trajet des ions. Ainsi une pompe à diffusion d'huile maintient la pression dans le bloc source à environ  $10^{-6}$  Torr. Une deuxième pompe à diffusion d'huile maintient un vide poussé d'environ  $10^{-7}$  Torr dans le bloc accélérateur et enfin un ultravide règne dans la chambre de diffusion où une pression d'environ 3 à 4  $10^{-10}$  Torr est assurée par une pompe turbomoléculaire et par une pompe ionique.

#### **A5. Procédure :**

La procédure expérimentale a été décrite en détail dans (*DBI99*). On en rappelle ici brièvement les différentes étapes :

La préparation de la cible nécessite un nettoyage en trois étapes :

- Un polissage mécanique pour régulariser la surface.
- Un décapage chimique approprié pour chaque type de cible.
- Une fois la cible fixée sur le porte échantillon, elle subit un

nettoyage par faisceau d'ions  $\text{Ne}^+$  ou  $\text{Ar}^+$  à 4keV. Cela permet de nettoyer la surface cible du dépôt éventuel des impuretés, en particulier l'hydrogène. Des nettoyages permanents et rapides de la cible par faisceau d'ions  $\text{Ne}^+$  sont possibles. Des spectres de référence enregistrés périodiquement permettent de contrôler l'évolution des conditions expérimentales (état de la surface, stabilité du courant d'ions etc...).

Il est, en effet, très important, dans l'étude expérimentale du coefficient de réflexion, d'assurer le transport du faisceau avec un courant stable et une intensité acceptable. La production du faisceau dépend de plusieurs paramètres : courant sur la cathode, tension d'extraction des électrons (source à gaz) ou courant sur la pastille (source à solide) et la pression résiduelle en aval et en amont de la source. Des systèmes optiques assurent le transport et la focalisation du faisceau. L'optimisation de la forme et de l'intensité du faisceau est assurée en jouant sur les paramètres du filtre de WIEN ainsi que sur les lentilles de focalisation L1 et L2. A l'entrée de la chambre de diffusion, le faisceau est centré sur la cible par le biais d'une série de deux plaques

parallèles qui permettent un déplacement vertical et horizontal du faisceau. Les valeurs optimales des tensions utilisées dans ce système peuvent être déterminées par le calcul de la trajectoire des ions avec un programme d'analyse des lentilles électrostatiques appelé SIMION.

Du fait qu'on dispose sur le trajet du faisceau plusieurs dispositifs : lentilles, pulseur...etc qui perturbent la trajectoire et la forme du faisceau, la mesure des angles, en particulier l'angle d'incidence entre la direction du faisceau incident et la cible et l'angle de diffusion entre la direction du faisceau primaire et du faisceau diffusé, est sujette à une légère indétermination, d'où la nécessité de déterminer l'origine des angles à chaque fois qu'on modifie les conditions de focalisation du faisceau. Le zéro de l'angle de diffusion ( $\theta=0$ ) est déterminé par détection directe du faisceau incident, bien collimaté. On positionne en suite la cible entre le faisceau et le détecteur de façon à atténuer le signal. La cible est orientée autour de l'axe vertical jusqu'au maximum du signal. La position obtenue correspond à un angle d'incidence nul ( $\alpha=0$ ). Bien que le zéro de l'angle d'incidence reste pratiquement inchangé, ces deux opérations sont effectuées à chaque nouvelle série de mesures.

Dans nos expériences, on s'est intéressé à la distribution angulaire du coefficient de réflexion notamment dans la gamme des faibles angles d'incidence (ou d'émergence). Un soin particulier a été apporté au contrôle de l'intensité du faisceau et au réglage des zéros angulaires. En effet, pour avoir des coefficients de réflexion comparables, il faut prendre en considération la variation de l'intensité du faisceau. Pour cela, on enregistre des spectres de références, qui servent à déterminer le profil de l'intensité durant les séries de mesure.

### **A6. Acquisition :**

La chambre de diffusion est munie de trois détecteurs constitués de galettes à microcanaux. Les particules sont détectées suivant leurs états de charge sur l'une des trois galettes. Ces détecteurs sont caractérisés par un gain très important (de l'ordre de  $10^8$ ) et un temps de collection très court des signaux délivrés. Un retard réglable, introduit par un générateur de retard, sépare les signaux délivrés par les trois galettes

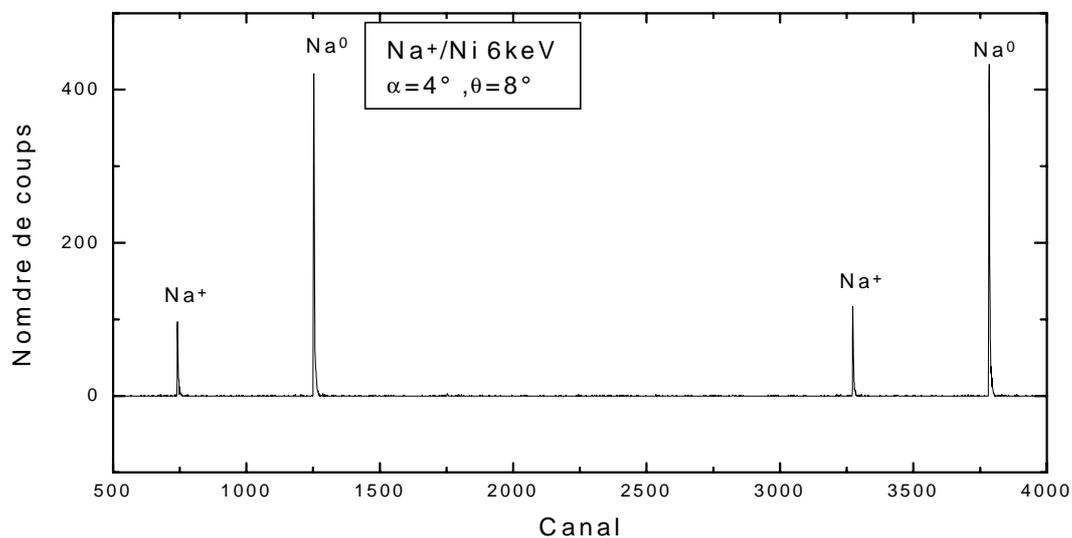
MCP, ce qui permet de les enregistrer dans des zones distinctes de l'analyseur multicanaux.

L'acquisition est assurée par une carte qui joue le rôle d'un analyseur à multicanaux (MCA) incorporée dans un ordinateur.

Le front montant de la tension périodique appliquée au pulseur déclenche l'entrée 'start' d'un convertisseur temps-amplitude. Sous l'impact des ions, les détecteurs délivrent des impulsions qui vont être amplifiées avant de passer par un discriminateur à fraction constante (DFC). Ce signal déclenche l'entrée 'stop' du convertisseur temps-amplitude (CTA) qui délivre alors des impulsions d'amplitude proportionnelle au temps de vol. Ces impulsions sont classées selon leurs amplitudes et sont enregistrées dans le MCA. La résolution par canal, la largeur de la fenêtre TOF sont réglables et sont choisies de façon à couvrir tout le spectre et minimiser le temps de mesure tout en gardant une résolution acceptable.

Un exemple de spectre obtenu de cette manière est représenté dans la figure

**II-5-**



**Figure II-5 :** Exemple d'un spectre TOF obtenu. Du fait que le faisceau passe par le diaphragme du pulseur deux fois par période, on obtient généralement, sur la fenêtre TOF, deux structures par type de particules.

## **B. RESULTATS EXPERIMENTAUX**

Le dispositif décrit a été utilisé pour mesurer la fraction de charge et le rendement de la diffusion aux faibles angles d'incidence, pour deux types de projectiles (gaz rares et alcalins) sur une cible de Nickel polycristallin à 4keV.

### **B1. Conditions expérimentales :**

Dans cette série d'expériences, on a fait diffuser plusieurs projectiles  $\text{He}^+$ ,  $\text{Ne}^+$ ,  $\text{Li}^+$  et  $\text{Na}^+$  accélérés à 4 keV sur une cible de Nickel polycristallin, avec des angles d'incidence allant de  $1^\circ$  à  $20^\circ$  et des angles d'émergence de  $0^\circ$  à  $165^\circ$ . Des nettoyages rapides et permanents de la cible par abrasion ionique avec du  $\text{Ne}^+$  de 4keV ont été effectués à incidence  $\alpha=15^\circ$ . Afin d'obtenir des spectres de diffusion exploitables, on fait varier la largeur des pulses et le temps d'acquisition d'un projectile à un autre. La résolution usuelle a été fixée à 20ns/canal. La tension de déflexion est choisie de façon à optimiser la détection sur la gamme d'énergie des particules diffusées. Un retard de 6 à 10 microsecondes a été introduit entre chacune des trois galettes microcanaux.

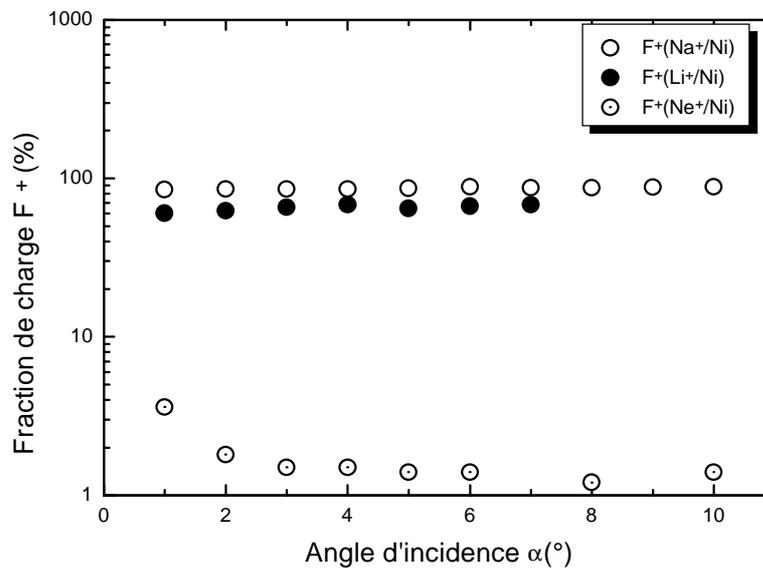
### **B2. Fraction de charge :**

La fraction ionique  $F_{\text{exp}}^+$  diffusée est définie par :

$$F_{\text{exp}}^+ = \frac{\text{Pic}^+}{\text{Pic}^+ + \text{Pic}^0} \quad \text{II-1}$$

où  $\text{Pic}^+$  représente l'aire sous le pic des ions et  $\text{Pic}^0$ , l'aire sous le pic des neutres.

Elle a été mesurée pour différents angles d'incidence et pour une réflexion spéculaire ( $\alpha=\beta$ ). Les résultats obtenus dans le cadre de la diffusion de  $\text{Ne}^+$ ,  $\text{Li}^+$  et  $\text{Na}^+$  sur du Ni polycristallin sont représentés sur la **figure II-6**. Pour Ne, la fraction de charge est très faible (de l'ordre de 1%) et la plupart des ions sont neutralisés. Pour les alcalins, elle est importante (de l'ordre de 80% pour Na et de 60% pour Li) (voir partie I-C).



**Figure II-6 :** Fraction de charge mesurée expérimentalement pour différents projectiles diffusés à 4keV par une cible de Nickel polycristallin.

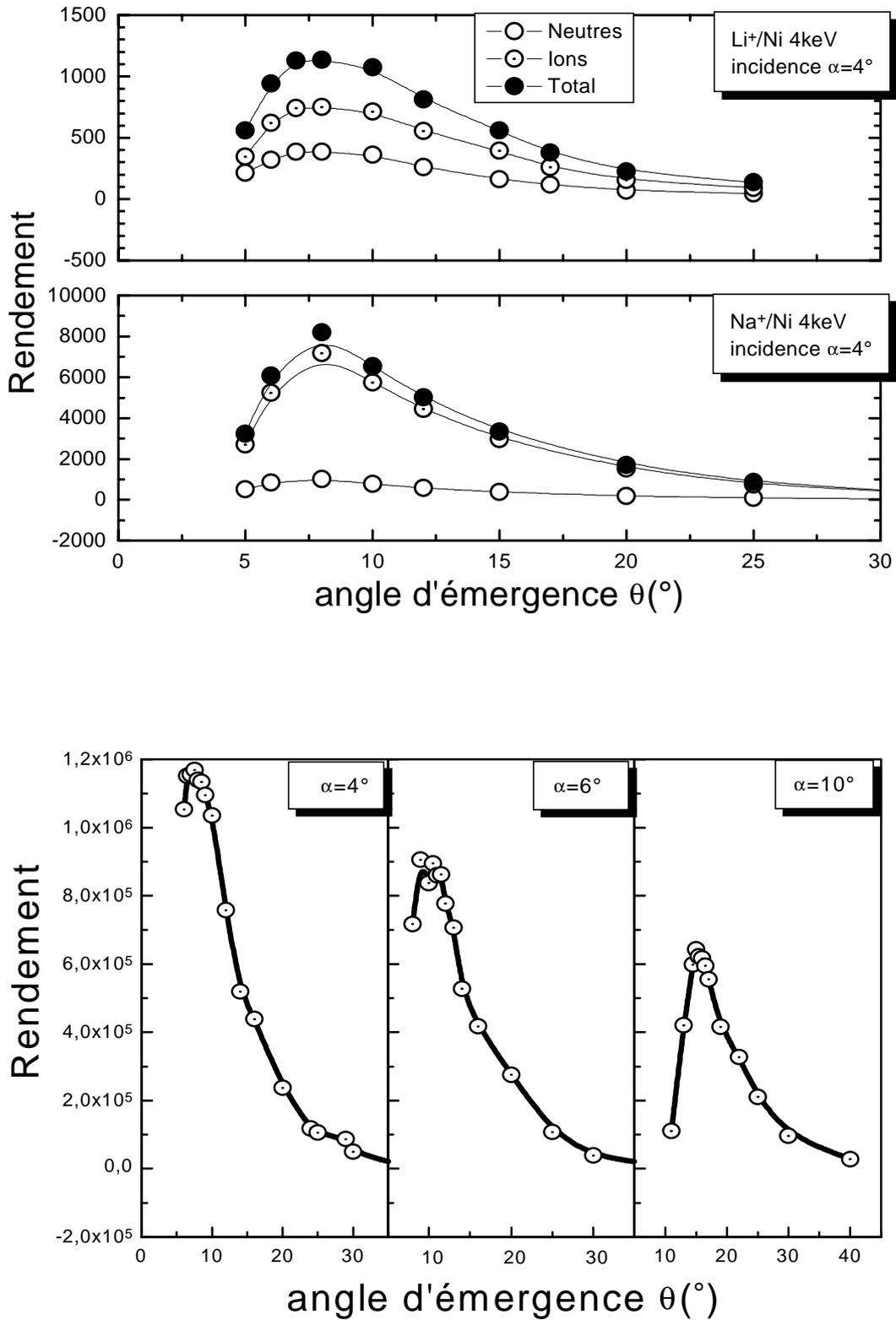
### **B3. Distributions angulaires :**

Le coefficient de réflexion est mesuré en intégrant l'aire sous le pic des ions et celui des neutres. Dans la *figure II-7*, on représente les distributions angulaires du coefficient de réflexion pour  $\text{Na}^+$  et  $\text{Li}^+$  sur Ni à 4keV et  $\alpha=4^\circ$  et pour  $\text{Ne}^+$  sur Ni à 4keV et  $\alpha= 4^\circ, 6^\circ$  et  $10^\circ$ .

On remarque que :

- 1/Les distributions angulaires ont une forme en cloche.
- 2/Le rendement diminue lorsque l'angle d'incidence augmente.
- 3/Le maximum de la diffusion n'est pas situé à l'angle spéculaire ( $\beta=\alpha$ ).

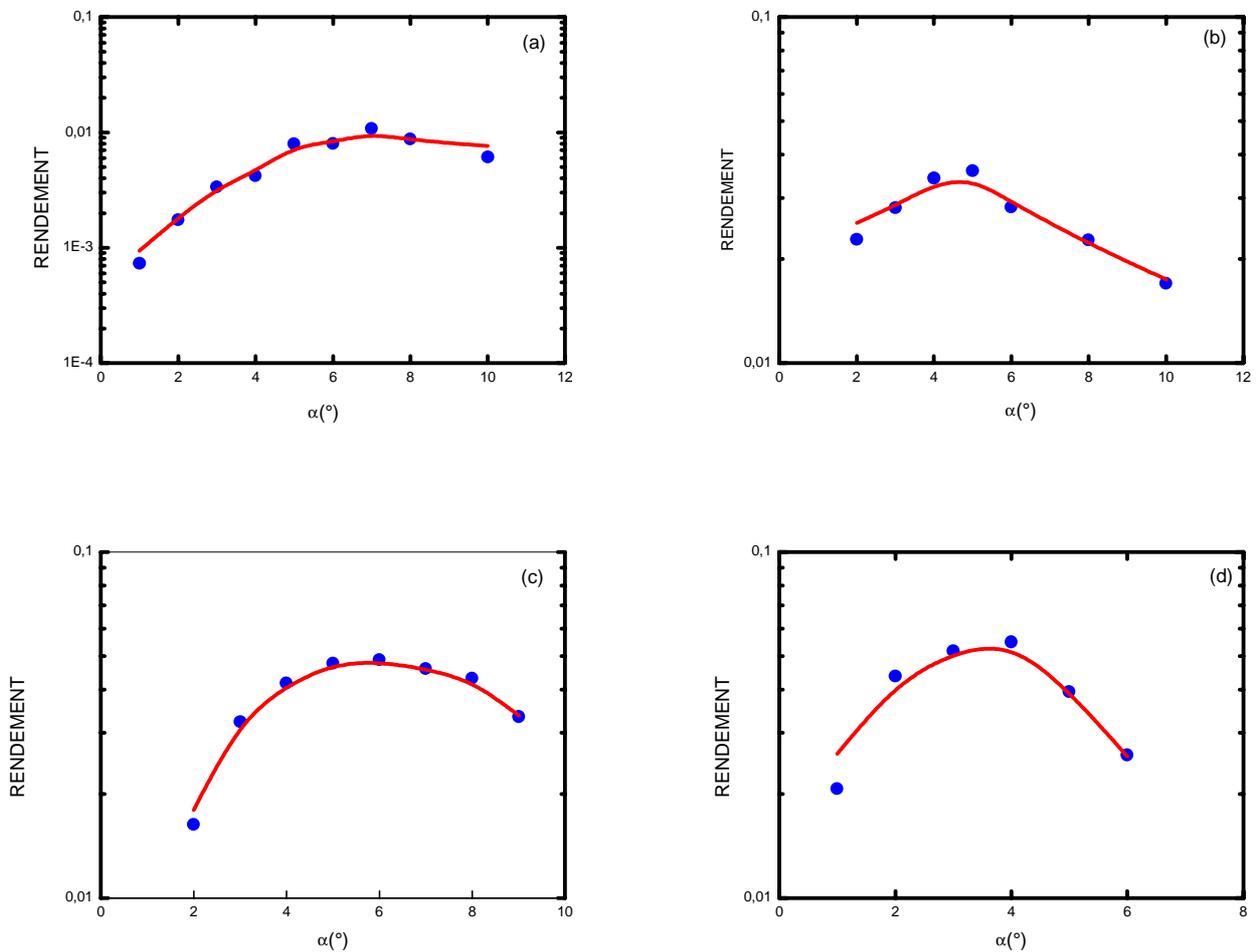
Ces observations expérimentales seront discutées et comparées à la théorie dans le chapitre suivant.



**figure II-7 :** Distribution angulaire du coefficient de rendement expérimental pour un angle d'incidence  $\alpha=4^\circ$  pour  $\text{Na}^+$  et  $\text{Li}^+$  et  $\alpha=4^\circ, 6^\circ$  et  $10^\circ$  pour  $\text{Ne}^+$  sur Ni à 4keV.

### B4. Réflexion spéculaire :

Dans la *figure II-8*, on présente le cas particulier du coefficient de réflexion dans la diffusion spéculaire ( $\beta=\alpha$ ) pour les deux catégories de projectiles (gaz rares et alcalins). On y remarque partout la diminution du coefficient de réflexion aux petits angles d'incidence. Ce comportement, non prédit par la théorie, sera étudié dans la partie suivante.



**figure II-8 :** Valeurs expérimentales du coefficient de réflexion spéculaire des particules de 4keV diffusées sur du Nickel. (a):  $He^+$ , (b):  $Ne^+$ , (c):  $Na^+$ , (d)  $Li^+$

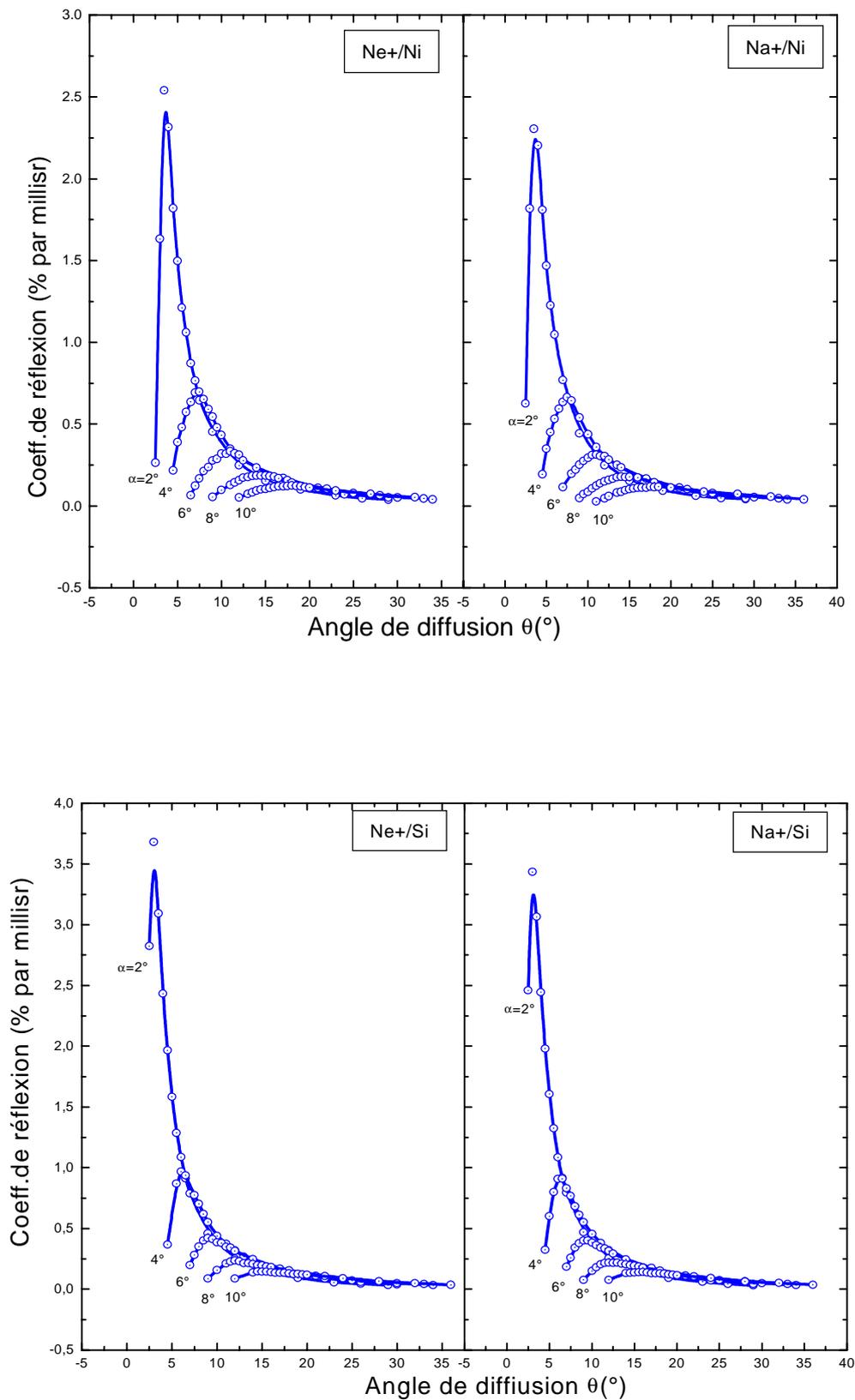
***Troisième partie :***  
***Analyse des résultats***

### A. CALCUL DU COEFFICIENT DE REFLEXION PAR SIMULATION :

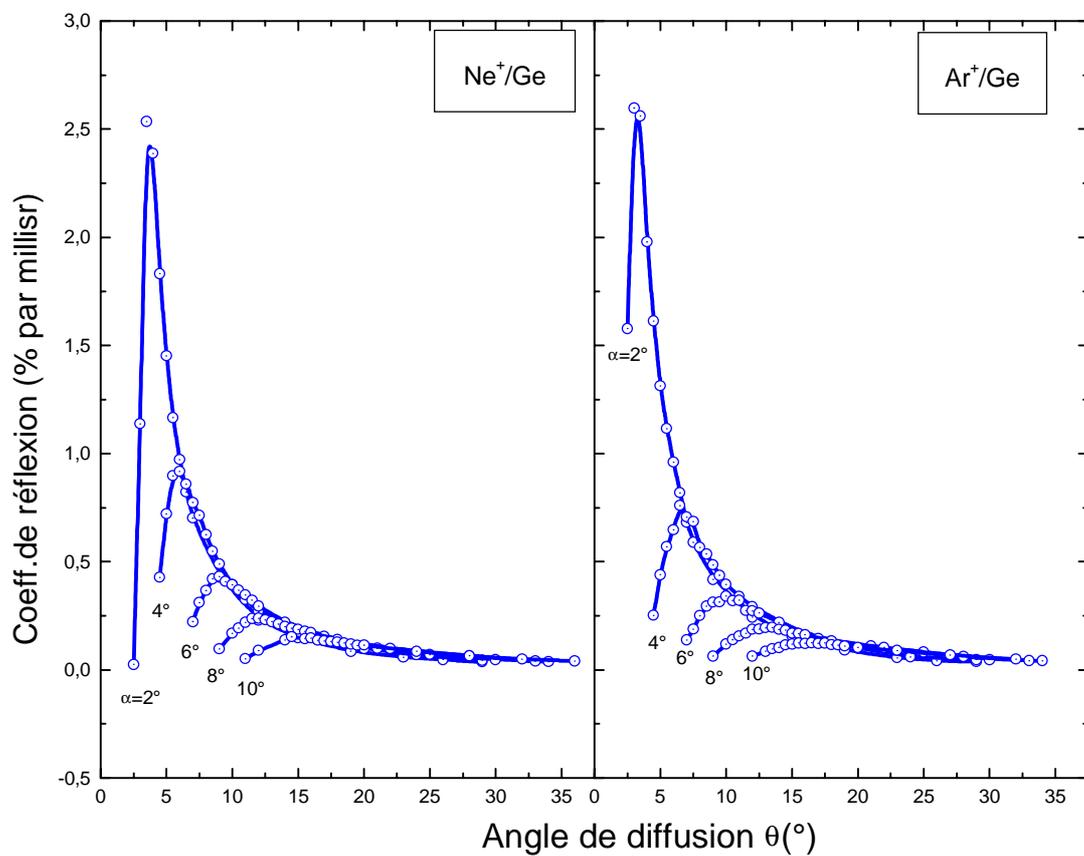
Le coefficient de réflexion tel que défini dans la partie I-E est calculé. On en déduit les distributions angulaires de ce coefficient pour plusieurs projectiles sur des cibles amorphes. La **figure III-1** présente les distributions obtenus à l'aide du code TRIM pour différents projectiles sur Ni, Si et Ge pour un angle d'incidence  $\alpha$  allant de  $2^\circ$  à  $10^\circ$  et une énergie de 4keV. Dans la **figure III-2**, on présente le résultat obtenu par le code MARLOWE pour des projectiles  $H^+$ ,  $N^+$ ,  $Ne^+$  sur Ni polycristallin, en utilisant le potentiel de Molière. A partir de la simulation du phénomène de diffusion, on peut tirer les remarques suivantes concernant les distributions angulaires du coefficient de réflexion :

- ◆ Les distributions angulaires ont une forme en cloche. C'est une conséquence de la présence des collisions multiples dans le phénomène de diffusion. La collision simple implique en effet, un rendement qui décroît d'une façon monotone avec l'angle de diffusion.
- ◆ Lorsque l'angle d'incidence augmente, le coefficient de réflexion diminue.
- ◆ Pour un système donné, les distributions angulaires se rejoignent aux grands angles de diffusion indépendamment de l'angle d'incidence.

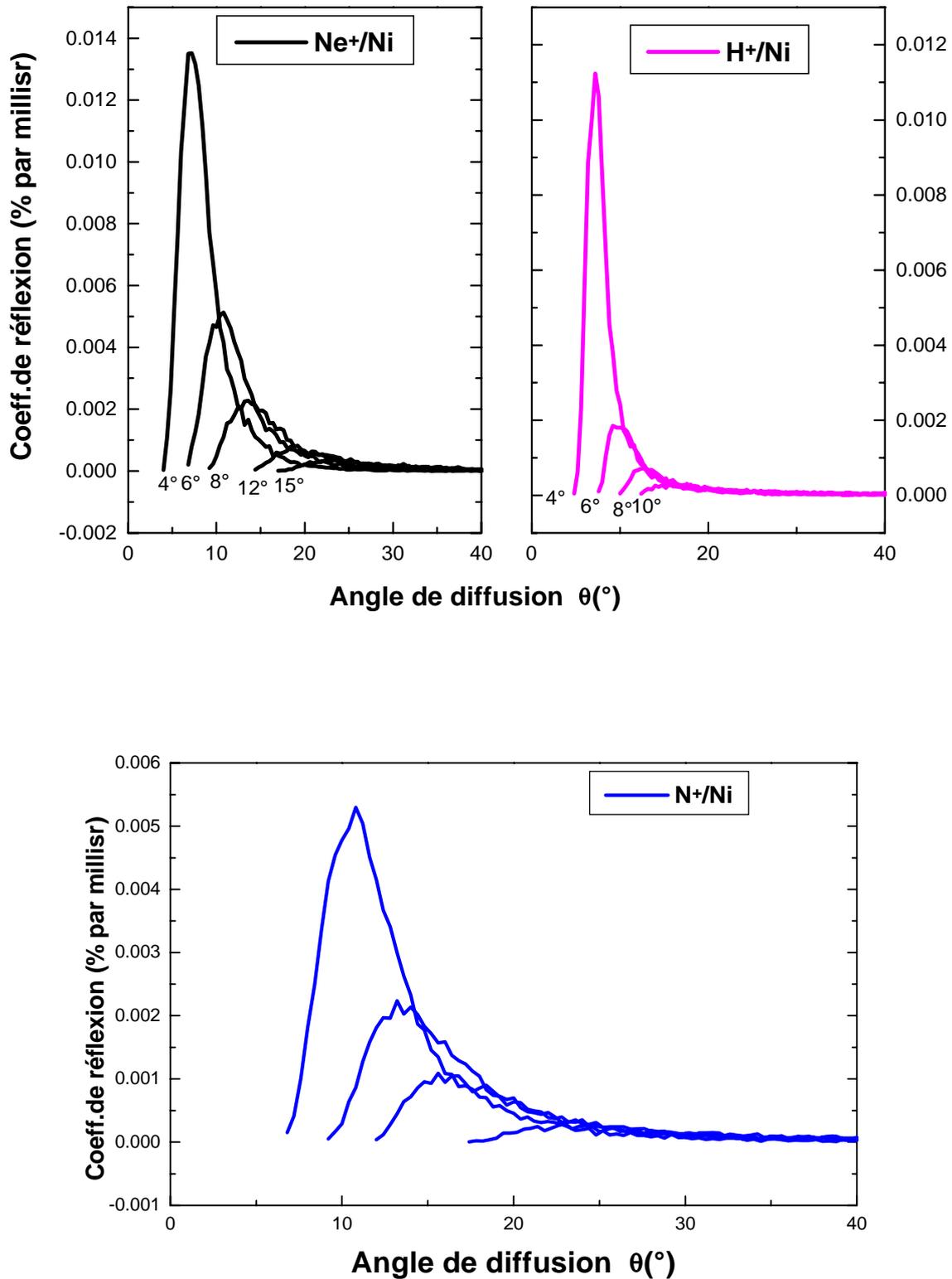
Ce sont des résultats similaires à ceux qu'on a obtenus expérimentalement (partie II-B). De même, ils sont comparables aux résultats expérimentaux de [Mas63] et théoriques de [Fir65] [Fir68] et [Rem81]. Sur la **figure III-3** on présente les résultats théoriques obtenus par [Fir68] et [Rem81], à partir de la résolution de l'équation de Boltzmann dans le cas où le ralentissement est négligé. Cette approximation est justifiée lorsque le parcours, dans le solide, de la particule éjectée est très faible devant le parcours total des particules implantées [Fir71, Rem80a,c,Rem81]. A faible énergie, cette condition est vérifiée. Par exemple, pour la diffusion de  $Ne^+$  de 4keV sur Ni, 70% des particules diffusées effectuent des parcours inférieurs à 8 Å alors que le parcours projeté est de l'ordre 40 Å. De même, pour la diffusion  $He^+/Ni$ , le parcours projeté est de l'ordre de 150 Å tandis que la plupart des particules effectuent de faibles parcours (<50 Å) dans le solide (voir **figure III-4**).



**Figure III-1** : Distributions angulaires obtenues par simulation TRIM, du coefficient de réflexion de particules d'énergie de 4keV, par des surfaces solides de Ni, et Si. Les angles d'incidences sont compris entre  $2^\circ$  et  $10^\circ$ .

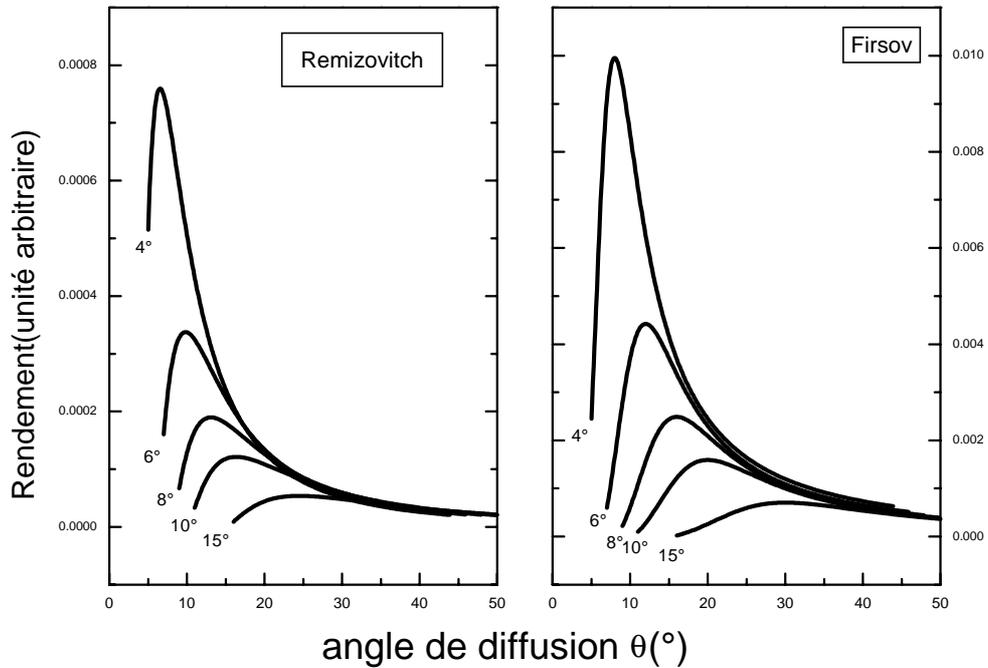


**Figure III-1 (suite) :** Distributions angulaires obtenues par simulation TRIM, du coefficient de réflexion de particules d'énergie de 4keV, par une surface solide de Ge. Les angles d'incidences sont compris entre 2° et 10°.

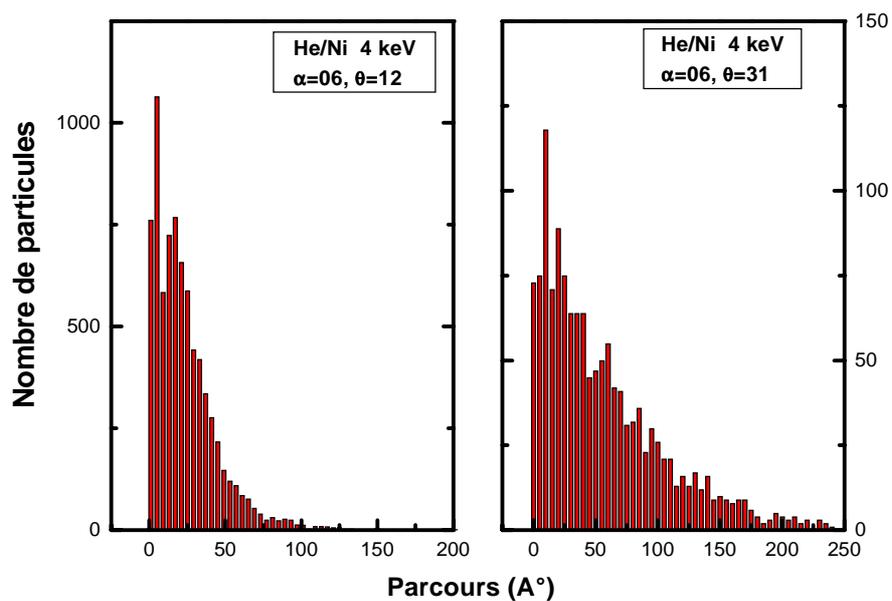


**Figure III-2 :** Distributions angulaires du coefficient de réflexion de particules d'énergie de 4keV, par des surfaces solides. Simulation MARLOWE. Angles d'incidences compris entre 4° et 15°. Potentiel de Molière, température du cristal 500°K, température de Debye du Ni=225°K

En plus de ces remarques, Firsov [Fir68] avec un calcul approché et Remizovitch [Rem81] par un calcul exact ont montré que les distributions angulaires sont indépendantes du système en interaction.



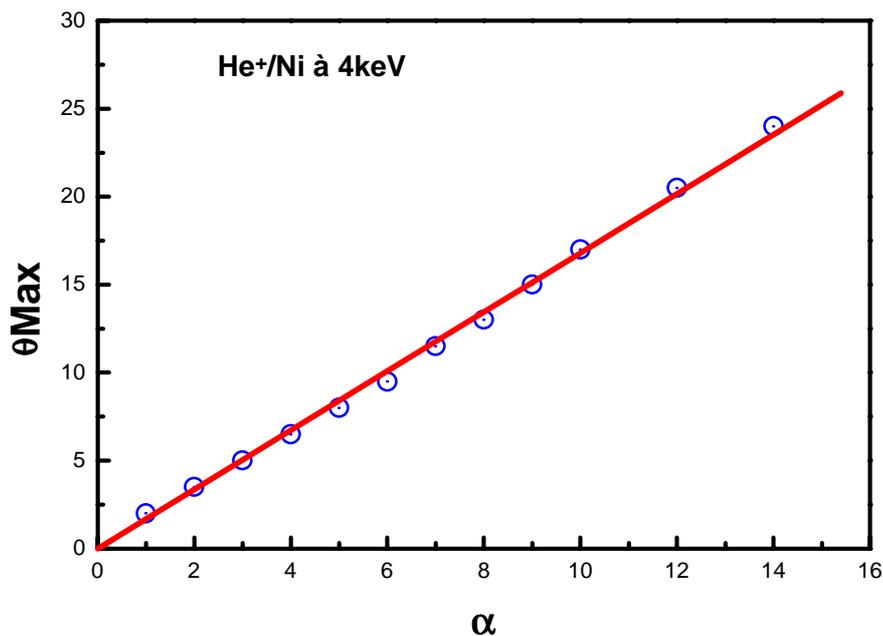
**Figure III-3** : Distributions angulaires du coefficient de réflexion de particules d'énergie de 4keV, par des surfaces solides. Résolution de l'équation de Boltzman.



**Figure III-4** : Distribution des parcours, dans le solide, des particules diffusées.

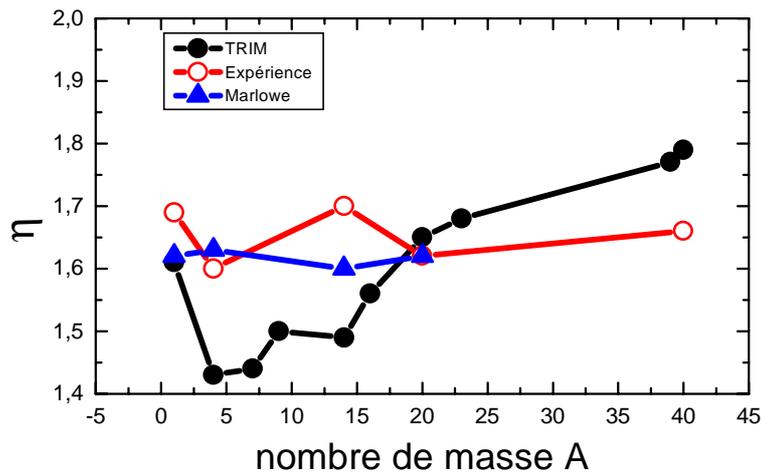
### A1. POSITION DU MAXIMUM DU RENDEMENT :

Une grandeur caractéristique des distributions angulaires est l'angle de diffusion  $\theta_{\text{MAX}}$  correspondant au maximum du rendement. Aux faibles angles d'incidence ( $\alpha < 20^\circ$ ), l'angle  $\theta_{\text{MAX}}$  est fonction linéaire de l'angle d'incidence (*figure III-5*).

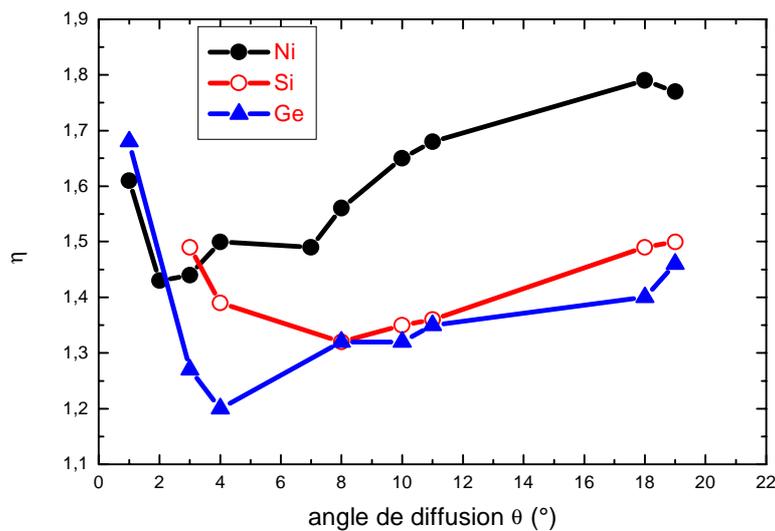


*figure III-5 : Angle de diffusion  $\theta_{\text{MAX}} = \eta \alpha$  correspondant au maximum du rendement en fonction de l'angle d'incidence.*

Sur la *figure III-6*, on présente les valeurs du paramètre  $\eta = \frac{\theta_{\text{Max}}}{\alpha}$  obtenues par simulation TRIM et MARLOWE et comparées aux résultats expérimentaux. L'expérience et MARLOWE s'accordent sur une valeur de  $\eta$  pratiquement constante de l'ordre de 1.65. TRIM par contre, prévoit une forte dépendance de  $\eta$  par rapport au système en interaction. Le même comportement est obtenu par simulation TRIM dans les cas des cibles Si et Ge (*figure III-7*). D'autre part, cette constance de  $\eta$  a été vérifiée théoriquement, avec  $\eta = 1.85$  dans le calcul approché de Firsov et  $\eta = 1.65$  dans le calcul exact de Remizovich.



**Figure III-6 :** Valeurs du paramètre  $\eta$ , mesurées expérimentalement et calculées par simulation TRIM et MARLOWE pour différents projectiles sur une cible de Nickel.



**Figure III-7 :** Variation de  $\eta$  en fonction du système en interaction. Simulation TRIM.

Cependant, on a remarqué, dans TRIM, une forte dépendance du coefficient  $\eta$  par rapport au choix du parcours avant la première collision, c'est à dire au choix de la valeur de  $C_w$  (partie I-B). Dans la **figure III-8**, il apparaît que pour  $C_w=10 \text{ \AA}$  (ce qui revient à négliger la contrainte sur la 1<sup>ère</sup> collision),  $\eta$  tend pratiquement vers une valeur constante (1.85). Dans la tableau III-1, on donne les valeurs du libre parcours moyen  $L_s$  calculé à partir du paramètre d'impact maximum  $P_{\text{Max}}$  ( $P_{\text{max}}$  est calculé en fixant un angle de diffusion  $P_{\text{simin}}$  au-dessous duquel on néglige toute diffusion, on

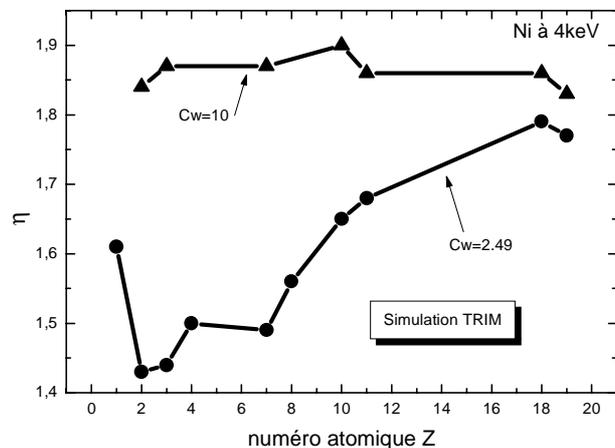
utilise pour cela le potentiel ZBL) par  $\pi P_{\max}^2 L_s = \frac{1}{N}$ . On constate que pour toute la gamme des éléments qu'on utilise,  $C_w(\text{Ni})=2.49 \text{ \AA}$  est toujours inférieur à  $L_s$ . La première collision aura donc lieu à une distance  $R_1 C_w$  au lieu de  $R_1 L_s$ .

	H	He	Li	Be	N	O	Ne	Na	P	Ar	K
$P_{\text{MAX}} (\text{\AA})$	.74	.74	.74	.74	.86	.86	.9	.97	1.1	1.11	1.1
$L_s (\text{\AA})$	6.27	6.27	6.27	6.27	4.72	4.88	4.24	3.65	2.8	2.7	2.7

←  $L_s > C_w$  →

**Tableau (III-1) :** Valeurs du libre parcours moyen  $L_s$  défini par  $\pi P_{\max}^2 L_s = \frac{1}{N}$  pour différents projectiles sur Nickel.

Il est donc permis de s'interroger sur la validité de la condition imposée dans TRIM d'un parcours spécifique à la première collision, condition inexistante dans le code MARLOWE. Une grande valeur de  $C_w$  amène en effet, à traiter le premier parcours de la même manière que les parcours suivants.



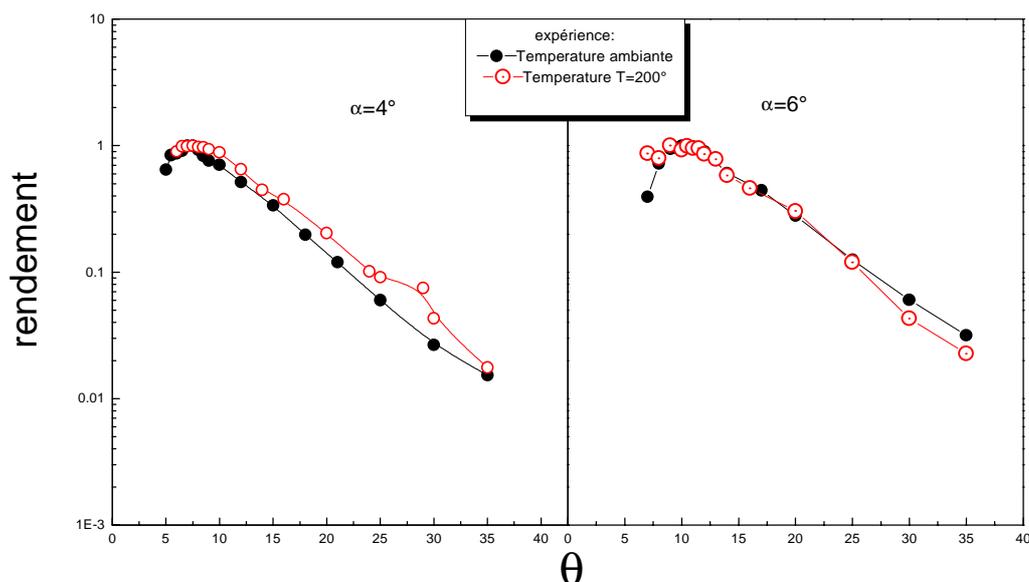
**Figure III-8 :** Influence de la valeur de  $C_w$  sur la valeur de  $\eta$  par TRIM, pour une cible de Nickel.

Par ailleurs, l'intensité au maximum du rendement, par simulation TRIM et MARLOWE, est proportionnelle à  $\theta^{-\chi}$ , avec  $\chi$  de l'ordre de 2. C'est le même résultat obtenu dans le cadre de la théorie de Firsov et Remizovitch.

## A2. EFFET DE LA VARIATION DE LA TEMPERATURE ET DE L'ENERGIE :

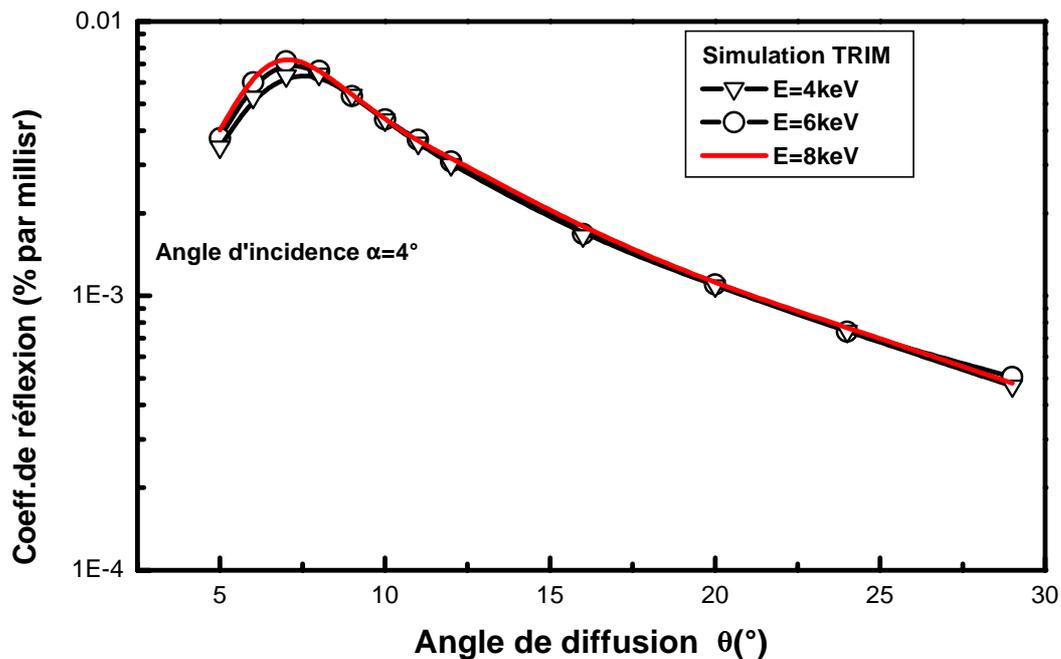
Dans les mesures expérimentales, on utilise souvent des cibles chauffées. Cela permet de maintenir l'état de propreté de la surface en y empêchant le dépôt d'hydrogène pendant les mesures. La présence d'hydrogène sur la surface influe, en effet, énormément sur les fractions de charge mesurées. Le code TRIM ne prenant pas en considération l'effet de la température, il devient nécessaire de vérifier s'il est raisonnable de comparer ses prévisions avec des résultats expérimentaux obtenus avec des cibles chauffées.

Dans la *figure III-9*, on représente la comparaison entre les distributions angulaires expérimentales du coefficient de réflexion, dans la diffusion  $\text{Ne}^+/\text{Ni}$  à 4keV, à  $T=200^\circ\text{C}$  et à température ambiante. On constate que les valeurs du coefficient de réflexion ne sont pas modifiées par la variation de la température. Une étude par simulation numérique avec le code MARLOWE (potentiel de Molière) conduit au même résultat. On confirme par cela, les conclusions de Eckstein et al [*Eck 80*] qui ont montré que la réflexion de protons et d'hélium, par une cible d'or ne dépendait pas de la température sur une gamme encore plus large (jusque vers  $900^\circ\text{C}$ )



**Figure III-9 :** Effet de la température sur les distributions angulaires du coefficient de réflexion de particules par des surfaces solides. Cas de  $\text{Ne}^+/\text{Ni}$  à 4keV.

De même on a remarqué par simulation TRIM que dans notre gamme d'énergie ( $E \in [2,10]$  keV), la distribution angulaire du coefficient de réflexion est invariante (*Figure III-10*).



**Figure III-10 :** Distributions angulaires à géométrie constante et énergie variable pour le système  $\text{Na}^+/\text{Ni}$  à 4keV.

### **A.3 SENSIBILITE AU CHOIX DU POTENTIEL :**

Les paramètres liés à la diffusion de particules par des solides (angle de diffusion, section efficace de chocs nucléaires, parcours dans la matière...etc) sont sensibles au choix du potentiel. Cependant, le coefficient de réflexion de particules semble très peu sensible à ce choix, du moins dans notre gamme d'énergie. Dans la *figure III-11*, on montre bien avec TRIM, que l'utilisation de deux potentiels différents, le potentiel ZBL et le potentiel de Molière, conduit à des résultats analogues.

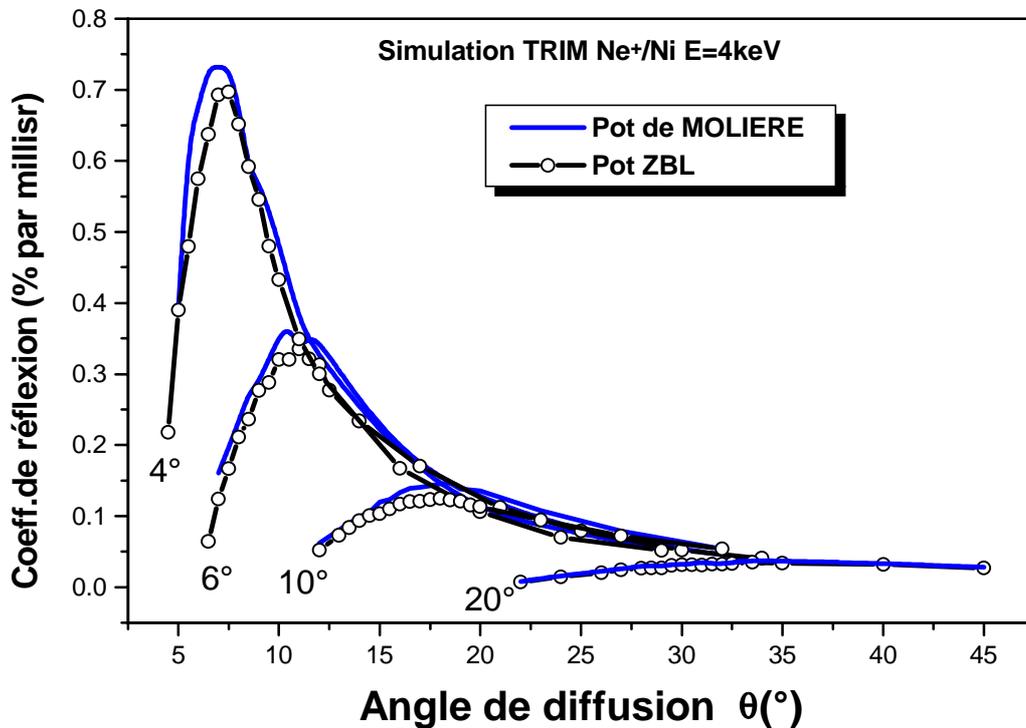


Figure III-11 : Effet du choix du potentiel sur les distributions angulaire données par TRIM

#### A4. REPRESENTATION ANALYTIQUE DES DISTRIBUTIONS ANGULAIRES DU COEFFICIENT DE REFLEXION :

Dans certaines situations liées à l'interaction ion-surface, il peut s'avérer nécessaire de déterminer le coefficient réflexion de particules sur une large gamme angulaire. Une telle étude par simulation numérique, en particulier dans les cas d'ajustement de paramètres ou de minimisation, exige un temps de calcul important. Cette contrainte peut être surmontée par l'utilisation d'une forme analytique des distributions angulaires du rendement total de la diffusion.

En se basant sur les caractéristiques des distributions angulaires du coefficient de réflexion déjà citées, on propose de les approcher par la fonction suivante :

$$\begin{cases} r(\alpha, \beta) = A / \alpha^\chi \cos\left(\frac{\pi}{2(\eta - 1)\alpha} ((\beta + \alpha) - \eta\alpha)\right) \dots\dots\dots (\alpha + \beta) < \eta\alpha \\ r(\alpha, \beta) = B / (\beta + \alpha)^\chi \dots\dots\dots (\alpha + \beta) > \eta\alpha \end{cases} \quad \text{III-1}$$

$r(\alpha, \beta)$  est le rendement de la diffusion, à un angle de diffusion  $\beta = \theta - \alpha$ , d'un faisceau arrivant sur le solide avec un angle d'incidence  $\alpha$ ,  $\eta$  définit la position du maximum du rendement et  $\chi$  décrit l'enveloppe de la distribution angulaire aux grands angles de diffusion. **A** et **B** sont deux constantes liées par la condition de continuité, qui s'écrit

$$\text{au point } \theta = \theta_{MAX} : \frac{A}{\alpha^\chi} = \frac{B}{\theta \chi_{Max}} \Rightarrow A = \frac{B}{\eta^\chi} \quad \text{-III-2}$$

Les distributions angulaires sont donc représentées par une fonction composée avec deux paramètres d'ajustement :

1/  $\eta$  : position du maximum de rendement, qui définit le point de jonction des deux fonctions. Il est déterminé par ajustement linéaire de la fonction  $\theta_{MAX} = f(\alpha)$ .

2/  $\chi$  : qui définit la décroissance du rendement aux grands angles de diffusion. Il est déterminé par l'ajustement des points  $\theta_{MAX} = f(\theta)$  par la fonction  $B/\theta^\chi$ , [figure III-12].

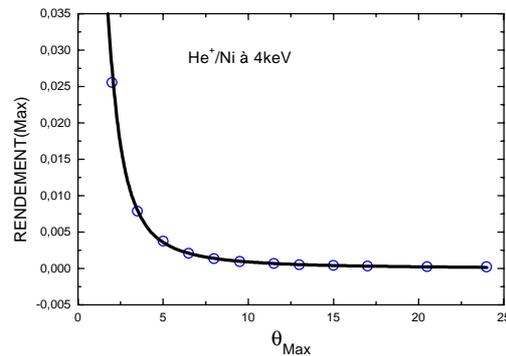
Dans le **tableau(III-2)**, on rapporte les valeurs du paramètre  $\eta$  pour TRIM et pour MARLOWE. Le paramètre  $\chi$  est une constante qui vaut respectivement 1.9 (TRIM) et 3. (MARLOWE).

Projectile/Ni	H	He	Li	Be	N	O	Ne	Na	Ar	K
TRIM	1.61	1.43	1.44	1.5	1.49	1.56	1.65	1.68	1.79	1.77
MARLOWE	← 1.65 →									

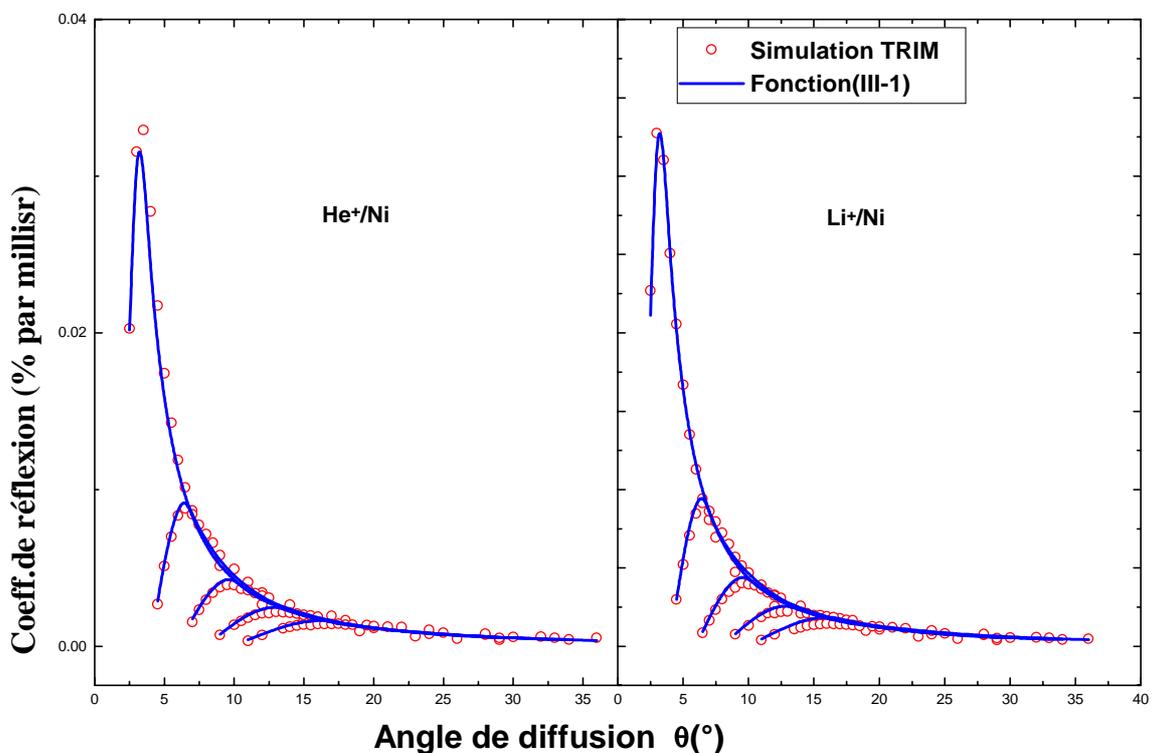
**Tableau(III-2) :** Valeurs du paramètre  $\eta$ .

Dans la **figure III-13**, on présente une comparaison entre les distributions angulaires données par TRIM et les distributions angulaires données par la fonction(III-1). On constate que la forme analytique proposée reproduit bien les résultats de la simulation, ce qui offre d'une part un gain sur le temps de calcul, et d'autre part, comme on le verra par la suite, un moyen simple d'étudier certains phénomènes liés à l'interaction des ions avec des surfaces solides en particulier le potentiel image.

En résumé, on propose dans cette partie, un accès simple aux distributions angulaires du coefficient de réflexion simulé, par le biais de la fonction (III-1) qui ne dépend que de deux paramètres. C'est une forme générale valable aussi bien pour TRIM que pour MARLOWE, mais en respectant le bon choix des paramètres (tableau III-2). De plus, les distributions angulaires étant indépendantes de la température et de l'énergie, la forme qu'on propose, avec les valeurs des paramètres associés, restera valable sur toute notre gamme d'énergie et de température.

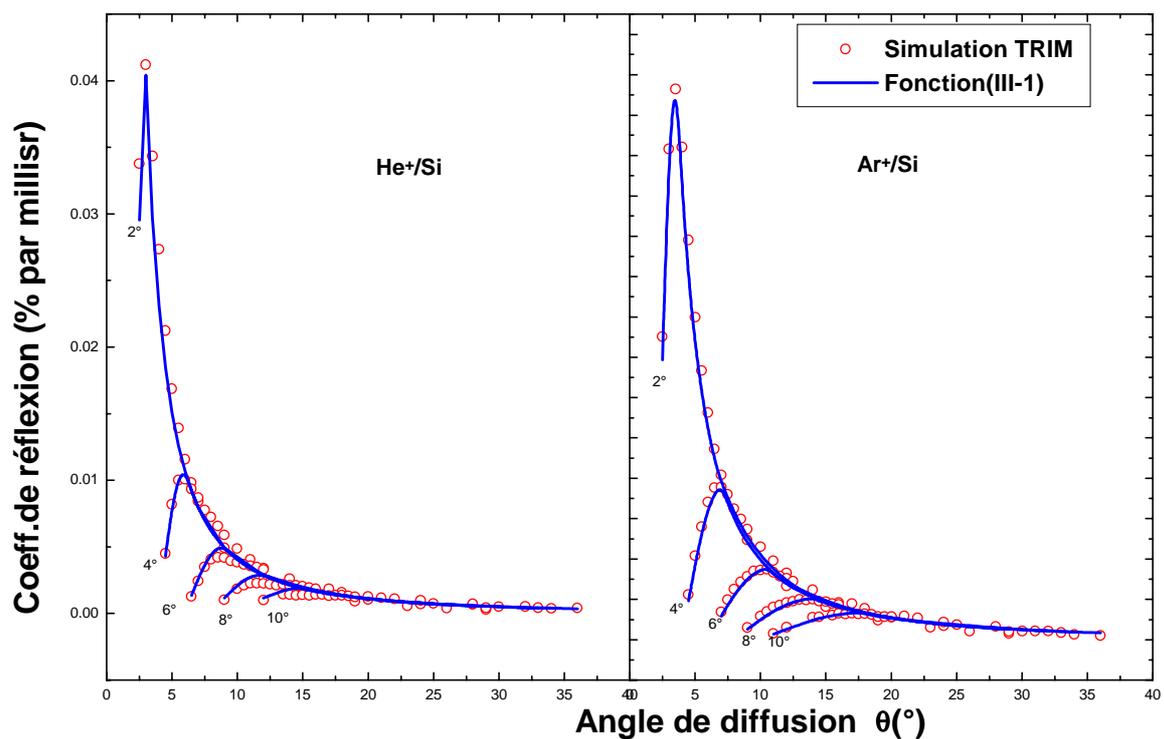


**Figure III-12 :** Fit de  $R_{MAX}=f(\theta_{MAX})$  par la fonction  $R_{MAX} = \frac{B}{\theta^\chi} \cdot \chi$ , paramètre de fit qui définit l'enveloppe des



distributions angulaires aux grands angles de diffusion.

**Figure III-13 :** Comparaison entre les distributions angulaires du coefficient de réflexion simulées par TRIM et les distributions angulaires calculées à partir de la fonction (-III-1). Avec  $\chi=1.9$ .



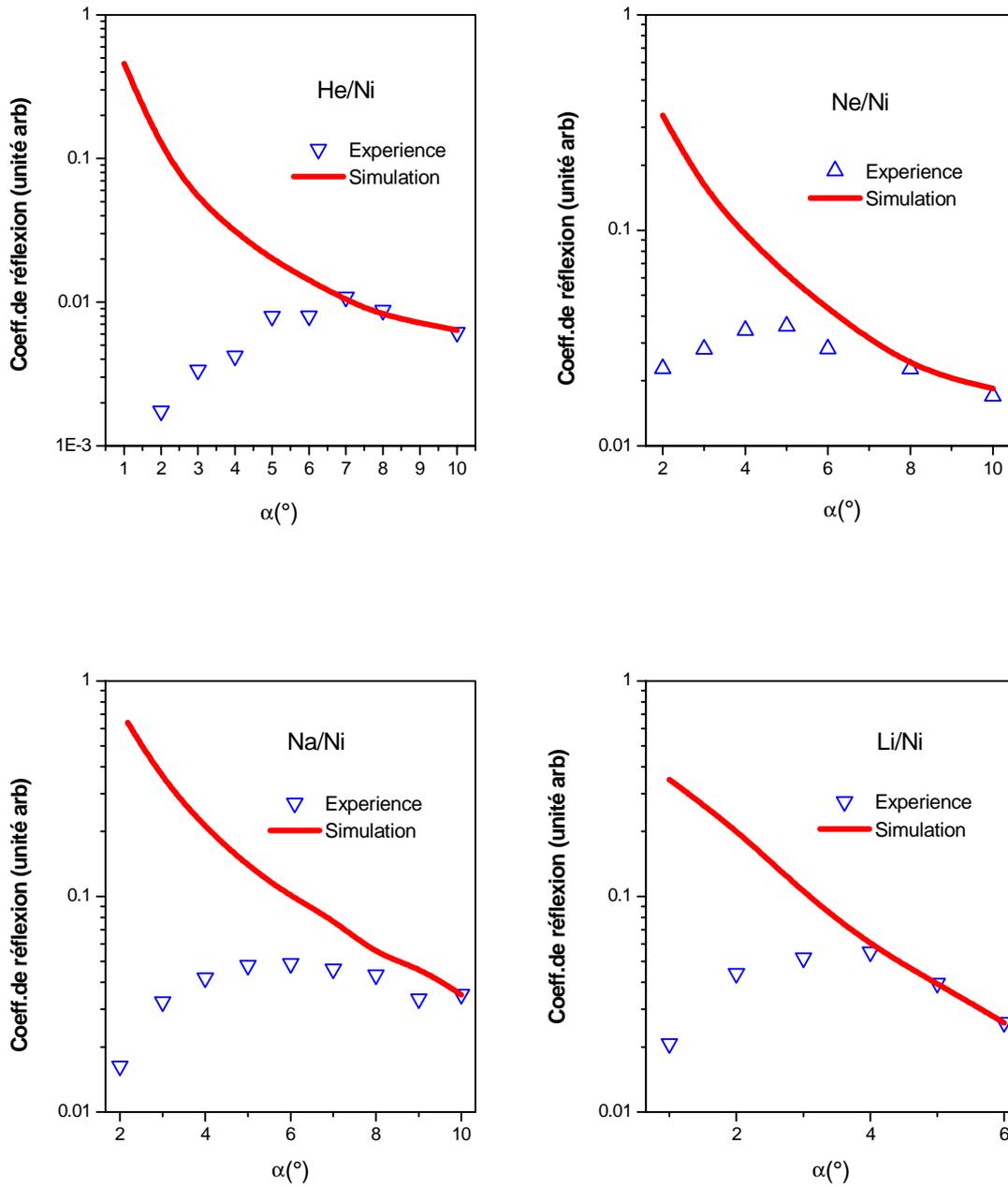
**Figure III-13(suite)** : Comparaison entre les distributions angulaires du coefficient de réflexion simulées par TRIM et les distributions angulaires calculées à partir de la fonction (-III-1). Avec  $\chi=1.9$ .

## **B. ETUDE DE LA REFLEXION SPECULAIRE :**

Dans l'étude de la diffusion de particules par des surfaces solides non ordonnées (amorphes ou polycristallines), les différentes méthodes de simulation (Monte Carlo, Dynamique moléculaire et Equation de transport) prévoient que le rendement de la réflexion, en particulier la réflexion spéculaire ( $\beta=\alpha$ ), augmente lorsque l'angle d'incidence diminue. Cependant, aux très faibles angles, nos résultats expérimentaux montrent une décroissance du coefficient de réflexion, en désaccord apparent par rapport au comportement prévu par la simulation. Deux facteurs se conjuguent pour entraîner cette déviation aux petits angles d'incidences, l'influence de la charge image sur la trajectoire des ions incidents et diffusés et le facteur géométrique, qui résume les artefacts et les défauts géométriques du dispositif expérimental.

Dans la *figure III-14*, on représente l'écart enregistré en réflexion spéculaire entre l'expérience et la simulation TRIM et MARLOWE pour des faibles angles d'incidence. On y constate un très fort désaccord qui s'accroît quand l'angle d'incidence diminue et on peut admettre que les deux distributions se rejoignent pour les grandes valeurs de  $\alpha$ . La normalisation entre les deux distributions est de ce fait, effectuée à la plus grande incidence possible.

Dans cette partie, on propose un modèle qui vise à dégager la part du facteur géométrique de celle qui correspond à l'action de la force image. Ce modèle est par la suite appliqué au cas des projectiles alcalins diffusés par une surface de Nickel, dans le but de déterminer la fraction de charge dans la voie d'entrée.

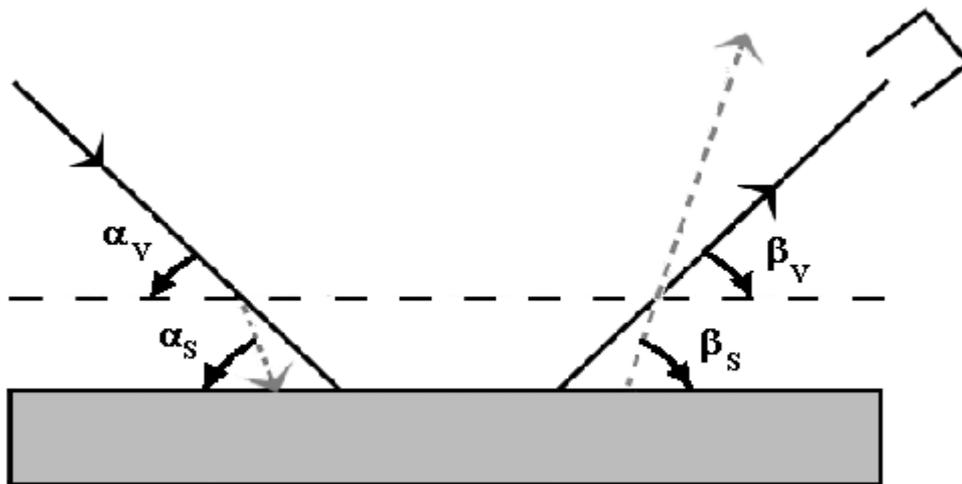


**Figure III-14 :** Comparaison entre l'expérience et la simulation TRIM pour la réflexion spéculaire des particules de 4keV diffusées sur du Nickel. (normalisation à 10° pour He, Ne et Na sur Ni et à 6° pour Li sur Ni).

## **B1. CORRECTION DUE A L'EFFET DE LA FORCE IMAGE :**

Comme, on l'a déjà signalé dans la partie *I-D*, l'effet de la force image est de courber la trajectoire des ions. On a montré aussi qu'on peut supposer avec une bonne approximation que seuls les ions existant au niveau du plan image (situé à la distance  $d$  de la surface réelle du solide) sont sensibles au potentiel image.

Dans le cadre de cette approximation, la trajectoire d'une particule est représentée sur la *figure III-15*.



*figure III-15 :* Trajectoire des particules au voisinage de la surface. On suppose que seuls les ions existant au niveau du plan image sont sensibles au potentiel image. Ainsi, un ion dans la voie d'entrée va atteindre la surface cible sous un angle  $\alpha_i$ . De même que dans la voie de sortie, les ions détectés à un angle  $\beta$ , ont, en réalité, émergé du solide avec un angle  $\beta_i$

Sur cette base, les ions survivant à la neutralisation au niveau du plan image vont atteindre la surface cible sous un angle effectif  $\alpha_s$  (relation I-17). Dans la voie de sortie, les particules détectées à un angle  $\beta_v$  seront composées de la partie neutre (au niveau du plan image) du faisceau émergeant à  $\beta_v$  et de la partie chargée (au niveau du plan image) du faisceau diffusé à  $\beta_s$ .

Donc si  $P_{in}^+(\alpha_v)$  est la fraction de charge, au niveau du plan image, dans la voie d'entrée et  $P_{out}^+(\alpha_v, \beta_v)$  est la fraction de charge, au niveau du plan image, dans la voie de sortie, le rendement de la diffusion pour une incidence  $\alpha_v$  et un angle d'émergence  $\beta_v$  compte tenu de l'effet du potentiel image sera donné par :

$$R(\alpha_v, \beta_v) = P_{in}^+(\alpha_v) \left[ P_{out}^+(\alpha_s, \beta_s) r(\alpha_s, \beta_s) + (1 - P_{out}^+(\alpha_s, \beta_s)) r(\alpha_s, \beta_s) \right] + (1 - P_{in}^+(\alpha_v)) \left[ P_{out}^+(\alpha_v, \beta_s) r(\alpha_v, \beta_s) + (1 - P_{out}^+(\alpha_v, \beta_s)) r(\alpha_v, \beta_v) \right] \quad III-3$$

avec :

$r(\alpha, \beta)$ : Coefficient de réflexion déduit de la simulation numérique correspondant à un angle d'incidence  $\alpha$  et un angle d'émergence  $\beta$ . On utilisera la fonction *III-1*.

### APPLICATION AUX SYSTEMES ETUDIES :

Pour les systèmes gaz rares le processus d'échanges de charge prédominant à grande distance est le processus Auger avec une probabilité de survie à la neutralisation au niveau du plan image donnée par :

$$P_{in}^+(\alpha) = \exp\left(-\frac{d}{v\tau \sin(\alpha)}\right) \quad \text{phase d'approche.}$$

$$P_{out}^+(\beta) = \exp\left(-\frac{d}{v\tau \sin(\beta)}\right) \quad \text{phase d'éloignement}$$

Où :

$\tau$ : la durée de vie de capture Auger

$v$ : la vitesse moyenne de l'ion

En utilisant les paramètres obtenus pour le système He<sup>+</sup>/Ni par Närman et al [Nar90], soit  $d=1.24$  ua. et  $\tau^{-1}=0.014$  ua, on obtient les valeurs suivantes pour les probabilités de survie à 4keV au niveau du plan image  $P_{in}^+(\alpha)$  (ou  $P_{out}^+(\beta)$ ).

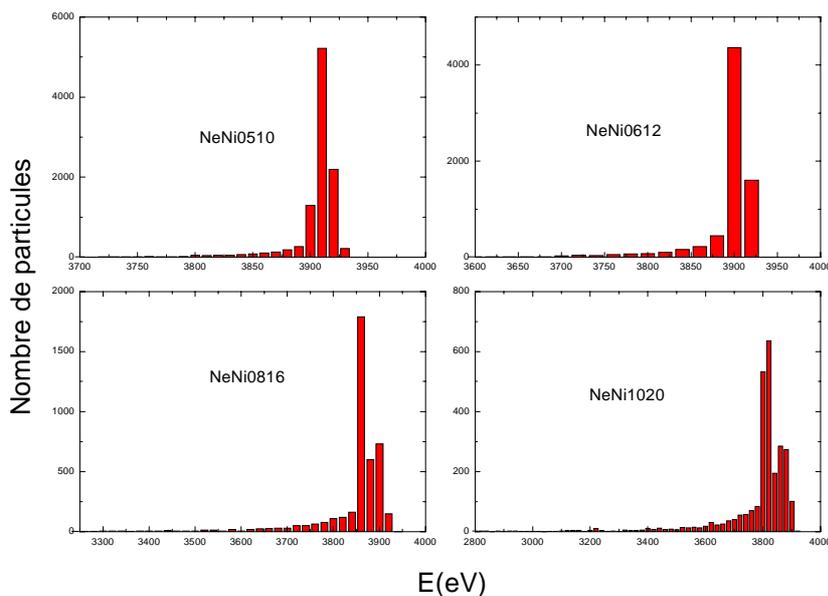
Angle(°)	1	2	3	4	5	6
$P_{in}^+$ (%)	0.7	8.3	19	28.8	36.9	43.6

**Tableau(III-3) :** Probabilité de survie à la neutralisation Auger, au niveau du plan image,  $He^+$  de 4keV sur du Nickel.

Le taux de neutralisation étant très fort, on peut supposer que la fraction de charge mesurée (pour les gaz rares) est peu différente de la fraction de charge au niveau du plan image dans la voie de sortie.  $P_{out}^+(\alpha_V, \beta_V) = P_{mesurée}^+(\alpha_V, \beta_V) \approx 1\%$  aux faibles angles.

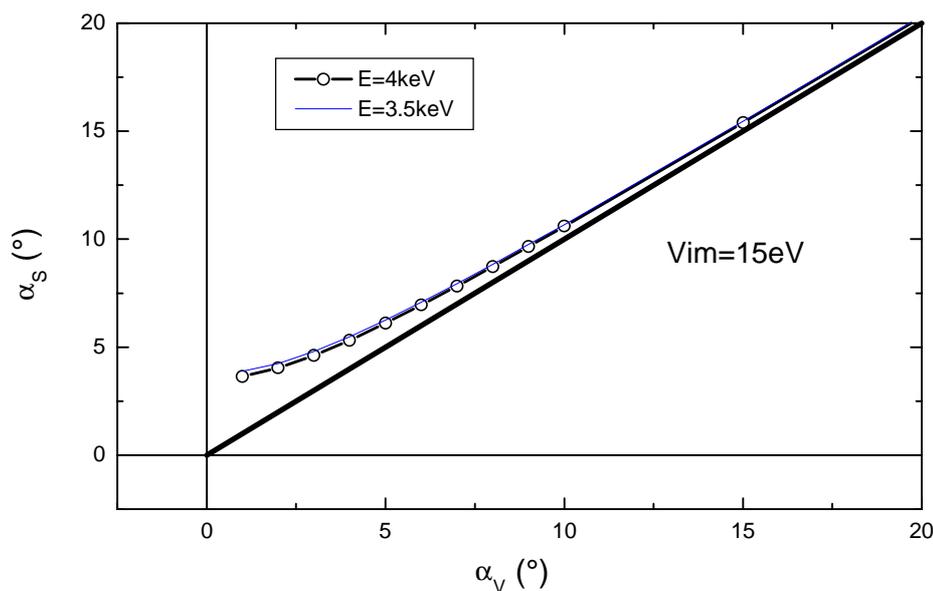
Pour les systèmes alcalins, le processus d'échanges de charge prédominant étant le processus résonnant avec une faible probabilité de réalisation (voir partie I-C), on peut donc supposer que la fraction de charge au niveau du plan image dans la voie de sortie,  $P_{out}^+(\alpha_V, \beta_V) = P_{mesurée}^+(\alpha_V, \beta_V)$  (80% pour  $Na^+/Ni$  et 60% pour  $Li^+/Ni$ ), et que dans la voie d'entrée, la fraction de charge  $P_{in}^+(\alpha_V)$  est de l'ordre de 1.

D'autre part, les valeurs des angles effectifs  $\alpha_S$  ( $\beta_S$ ) dépendent de la valeur de  $V_{im}$  (15 eV pour  $r_S=2$ ) et de l'énergie de l'ion. Bien que les particules incidentes aient tous la même énergie, le faisceau diffusé présente une distribution en énergie et donc une distribution des angles effectifs  $\beta_S$ . Dans la **figure III-16**, on représente les distributions en énergie des particules Ne diffusées sur Ni.



**figure III-16 :** Distribution énergétique des particules diffusées pour les systèmes  $NeNi\alpha\theta$

On constate que les particules perdent davantage d'énergie aux grands angles de diffusion, donc lorsqu'on s'éloigne du domaine angulaire qui nous intéresse dans ce travail. Pour  $\alpha_V = \beta_V = 10^\circ$ , les particules diffusées perdent moins de 500eV (avec une valeur moyenne de 3760eV). On montre dans la **figure III-17**, que  $\beta_S(E=3.5\text{keV})$  est peu différent de  $\beta_S(4\text{keV})$ . On supposera donc, avec une bonne approximation, que les valeurs des angles effective  $\beta_S$  sont indépendantes de l'énergie des particules diffusées et on utilisera la relation I.17 avec l'énergie E égale à l'énergie des particules incidentes pour le calcul des angles effectifs aussi bien dans la voie d'entrée que dans la voie de sortie. En d'autres termes, il n'est pas nécessaire, dans le domaine angulaire qui nous intéresse de tenir compte des spectres d'énergie pour évaluer l'effet de la force image dans la voie de sortie.



**figure III-17 :** Valeurs des angles effectifs  $\alpha_S$  ( $\beta_S$ ) en fonction de leurs valeurs nominales  $\alpha_V$  ( $\beta_V$ ) pour des énergies d'ions correspondant aux deux extrémités des spectres diffusés.

## **B2. CORRECTION DUE AU FACTEUR GEOMETRIQUE :**

Le facteur géométrique est une grandeur qui tient compte de tous les défauts dus à la géométrie du dispositif expérimental, en particulier les défauts liés à la

non coïncidence des centres de rotation de la ligne de temps de vol et du porte échantillon. Cette grandeur dépend de manière complexe des angles d'incidence et de détection et n'est pas accessible au calcul ou à la mesure directe.

Dans les mêmes conditions expérimentales, le facteur géométrique est en principe indépendant de la nature du projectile. Sa contribution à l'écart enregistré entre la simulation et l'expérience s'ajoute à celle de l'effet de la charge image, également significative aux angles rasants. L'étude de systèmes peu susceptibles d'être perturbés par la force image va donc permettre d'accéder à la distribution angulaire du facteur géométrique, C'est le cas des interactions des gaz rares avec des cibles métalliques pour lesquelles il existe une forte probabilité de neutralisation Auger.

Du fait de la très forte neutralisation aux petits angles, c'est à dire dans le domaine angulaire pour lequel la déviation de la trajectoire des ions est significative, la distribution angulaire du coefficient de réflexion est très peu perturbée par la force image (*Figure III-18* et *Figure III-19*).

L'écart entre l'expérience et la simulation, observé pour une réflexion spéculaire, ne provient donc plus que du facteur géométrique qu'on définira par :

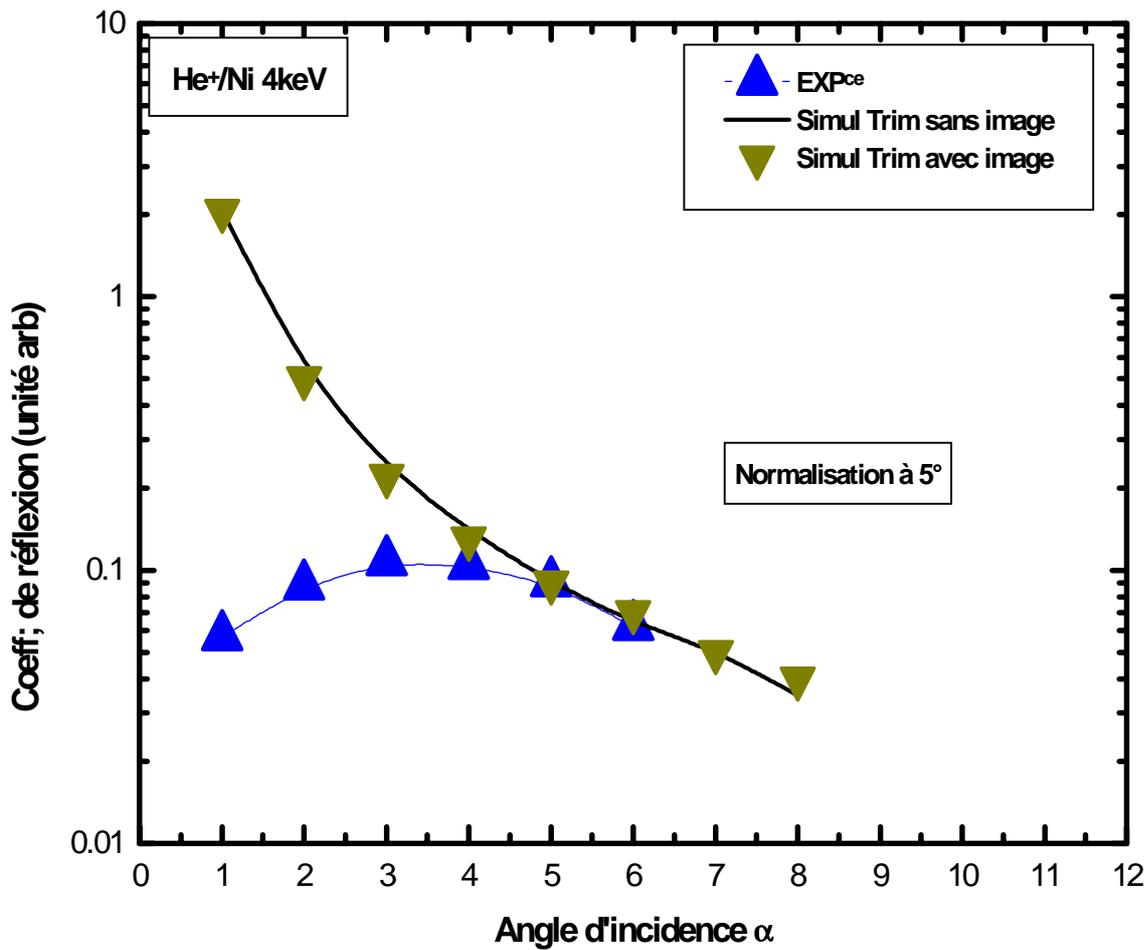
$$G = \frac{R_{\text{simulation}}}{R_{\text{expérimental}}} \quad \text{III-4}$$

Le facteur géométrique a été mesuré dans le cas de la diffusion spéculaire  $\text{Ne}^+/\text{Ni}$  à 4keV. Les résultats obtenus sont rapportés sur le tableau suivant :

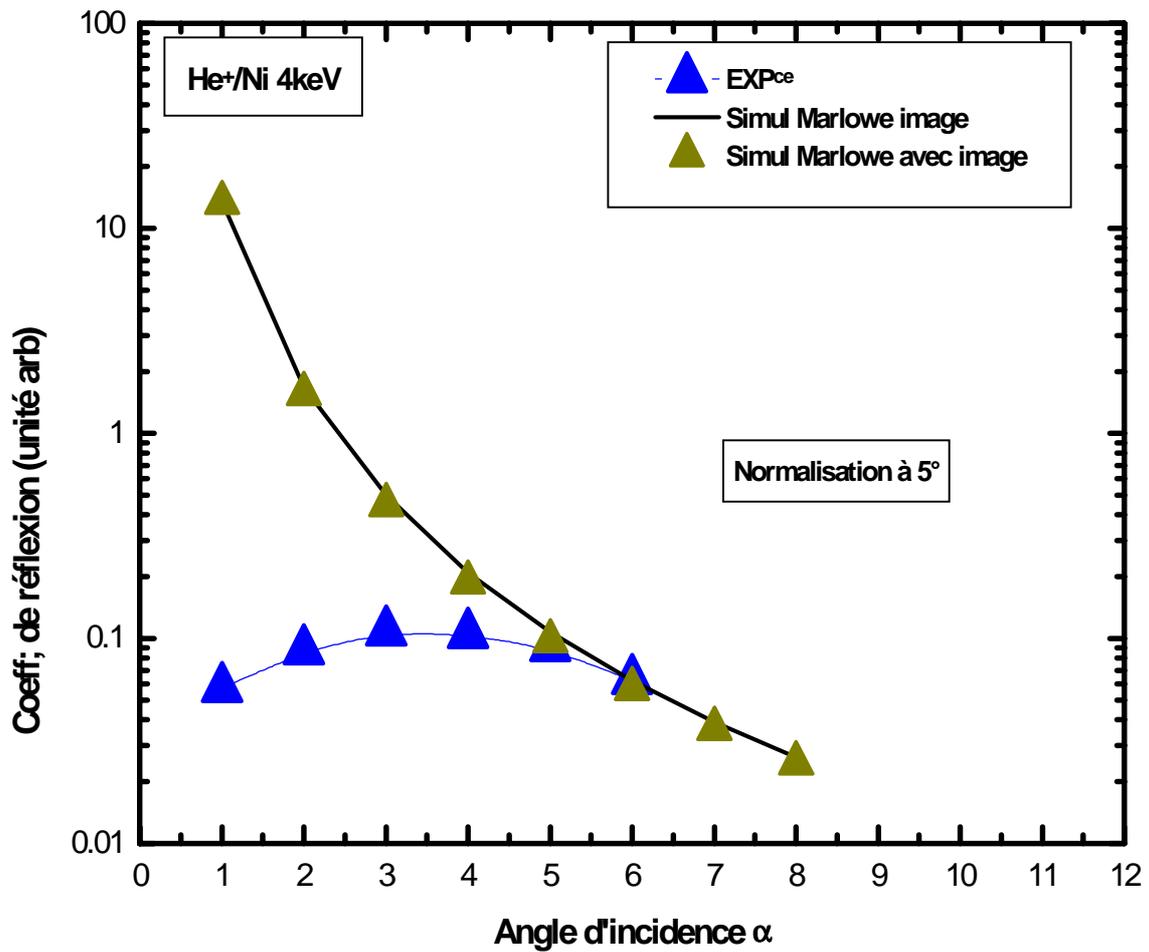
$\alpha(^{\circ})$		2	3	4	5	6	8	10
$G=R_{\text{simul}}/R_{\text{exp}}$	MARLOWE	93.1	22.4	7.7	3.7	2.7	1.4	1
	TRIM	15.1	5.6	2.8	1.8	1.7	1.2	1

**Tableau III-4 :** facteur géométrique défini par III-4, déduit à partir de la diffusion  $\text{Ne}^+/\text{Ni}$  à 4keV. Normalisation à  $10^{\circ}$ , où les effets perturbateurs sont négligeables.

Pour une cible donnée, le facteur G est, en principe indépendant de la nature de l'ion incident. Les valeurs de G obtenues avec les ions  $\text{Ne}^+$  sont donc applicables aux autres projectiles ( $\text{He}^+$ ,  $\text{Na}^+$  et  $\text{Li}^+$  en particulier) pour des conditions géométriques identiques.



**Figure III-18 :** Coefficient de réflexion à incidence rasante pour la diffusion He<sup>+</sup>/Ni à 4keV. On constate que le potentiel image n'a aucun effet sur le coefficient de réflexion pour un gaz rare. C'est une conséquence de la forte neutralisation à l'approche de la surface. L'écart enregistré entre la simulation et l'expérience n'est dû qu'aux effets géométriques.



**Figure III-19 :** Coefficient de réflexion spéculaire à incidence rasante pour la diffusion  $\text{He}^+/\text{Ni}$  à 4keV. Simulation MARLOWE.

### **B3. FRACTION DE CHARGE DANS LA VOIE D'ENTREE POUR LES SYSTEMES ALCALIN-METAL :**

Les alcalins sont caractérisés par un faible taux de neutralisation, ce qui en fait des systèmes idéaux pour l'étude de l'effet de la force image.

Dans le cas du  $\text{Na}^+$  sur Ni à 4keV, la fraction de charge dans la voie de sortie vaut près de 80%, (**Figure III-1**), et elle est pratiquement constante dans la gamme d'énergie qui nous intéresse. Comme déjà remarqué, on peut, pour de tels systèmes, faire l'approximation suivante :

$$P_{\text{out}}^+(\alpha_V, \beta_V) = P_{\text{mesurée}}^+(\alpha_V, \beta_V) \quad (80\% \text{ pour } \text{Na}^+/\text{Ni} \text{ et } 60\% \text{ pour } \text{Li}^+/\text{Ni}),$$

$$P_{\text{in}}^+(\alpha_V) \rightarrow 100\%.$$

Le rendement de la diffusion simulée, corrigé par l'introduction de l'effet de la force image et du facteur géométrique s'écrit donc :

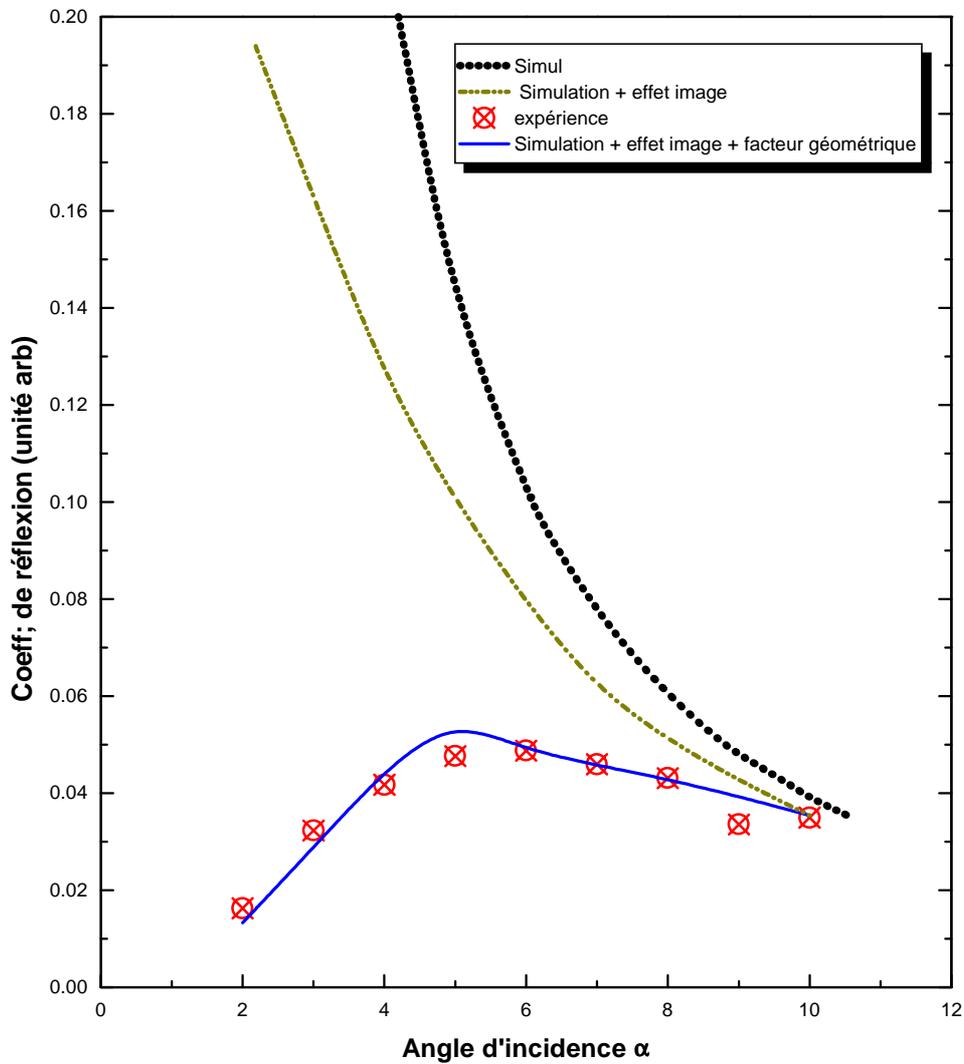
$$R(\alpha_V, \beta_V) = \frac{1}{G(\alpha_V)} [0.8r(\alpha_S, \beta_S) + 0.2r(\alpha_S, \beta_V)]. \quad \text{-III-2}$$

$G$  étant le facteur géométrique déduit à partir de la comparaison des distributions angulaires de la réflexion spéculaire expérimentales et simulées pour  $\text{Ne}^+/\text{Ni}$ .

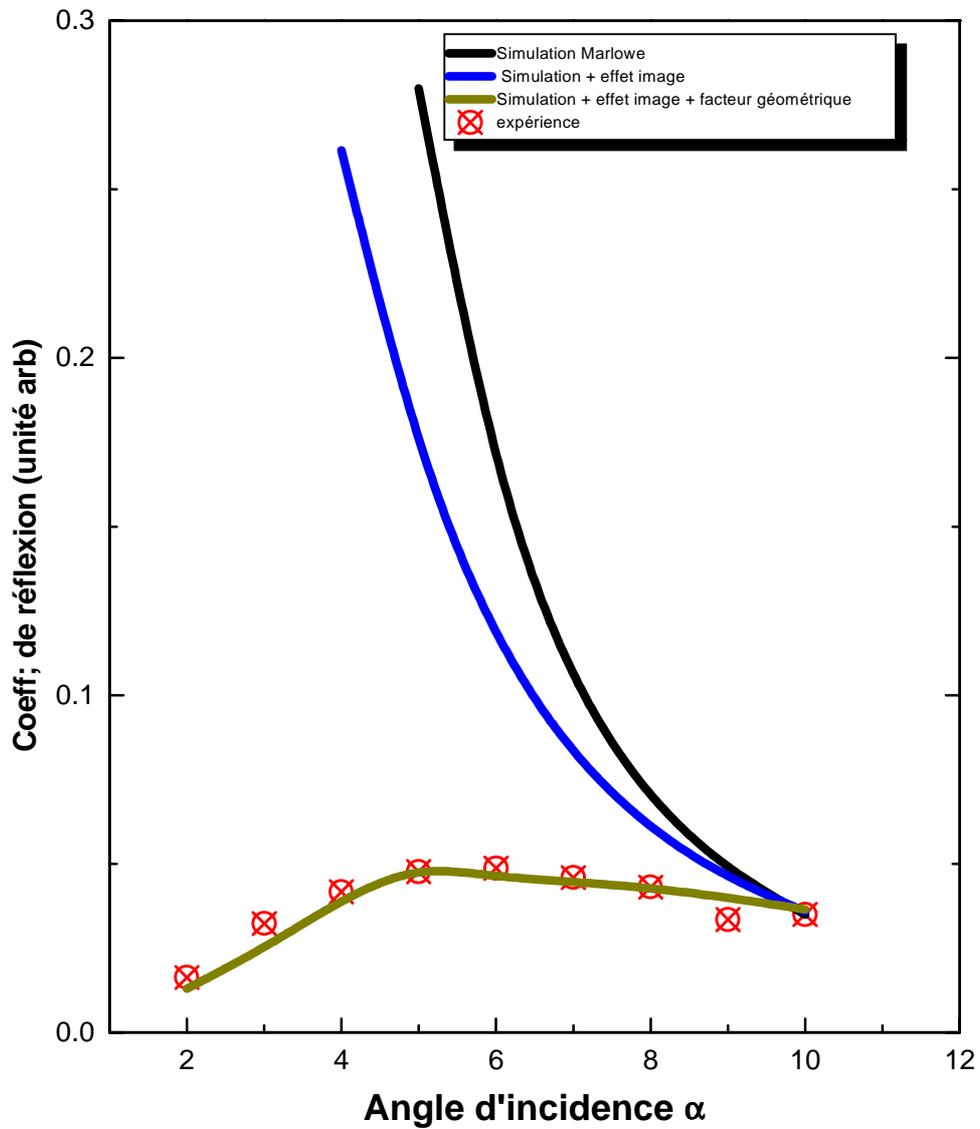
Dans les figures **III-20** et **III-21**, on représente les résultats de la simulation TRIM et MARLOWE obtenus sans et avec correction. L'introduction du facteur géométrique, calculé à partir de la diffusion  $\text{Ne}^+/\text{Ni}$ , ajouté à la correction due à l'effet du potentiel image, permet d'expliquer l'écart enregistré entre l'expérience et la simulation numérique dans le cas de la diffusion  $\text{Na}^+/\text{Ni}$ .

L'application de notre modèle dépend du choix de deux paramètres : la valeur du potentiel image  $V_{\text{IM}}$  et de la fraction de charge dans la voie d'entrée  $F_{\text{in}}^+$ , la fraction de charge dans la voie de sortie étant accessible à la mesure. L'optimisation simultanée de ces deux paramètres conduit au couple  $(V_{\text{IM}}, F_{\text{in}}^+) = (16.2 \text{ eV}, 96\%)$  en très bon accord avec les prédictions théoriques  $V_{\text{IM}} = 15 \text{ eV}$  (*Kat88*) et  $F_{\text{in}}^+ \rightarrow 1$ .

Il faut noter que ce modèle offre la possibilité d'estimer par voie expérimentale non seulement la fraction de charge pour les ions alcalins, mais aussi la valeur du potentiel image. Il reste bien entendu à le compléter par l'étude d'autres systèmes collisionnels. Dans le modèle de Kato par exemple, la valeur du potentiel image ne dépend que de la



**Figure III-20 :** Coefficient de réflexion spéculaire dans la diffusion  $\text{Na}^+/\text{Ni}$  à 4keV, sans et avec corrections. Le faible taux de neutralisation pour les systèmes alcalins fait que l'effet du potentiel image n'est pas négligeable. L'introduction de l'effet image et du facteur géométrique, mesuré à partir d'un système gaz rares, explique entièrement l'écart TRIM-expérience.



**Figure III-21 :** Coefficient de réflexion spéculaire dans la diffusion  $\text{Na}^+/\text{Ni}$  à 4keV, sans et avec corrections. Comparaison MARLOWE-expérience.

charge (supposée ponctuelle) du projectile et de la densité électronique de la surface cible. L'application du modèle qu'on propose à d'autres projectiles (Li par exemple) sur du Nickel permettrait de vérifier la validité d'une telle approximation. D'autre part, la possibilité d'estimer rapidement la fraction de charge dans la voie d'entrée peut s'avérer d'un grand intérêt dans l'étude des effets dynamiques sur la neutralisation résonnante par variation de la vitesse des projectiles alcalins.

### **CONCLUSION :**

Dans cette partie, on a étudié le coefficient de réflexion d'ions de faibles vitesses pour des incidences rasantes à travers ses distributions angulaires par simulation numérique (TRIM et MARLOWE). Les résultats obtenus ont été confrontés à nos valeurs expérimentales et à des calculs théoriques antérieurs.

On a établi les caractéristiques générales des distributions angulaires du coefficient de réflexion. En se basant sur cette étude, on a proposé de les approcher par une fonction analytique simple et commune pour les deux codes de simulation TRIM et MARLOWE. Cette forme est d'une grande importance puisqu'elle permet de surmonter les contraintes liées au temps de calcul dans les programmes de simulation numérique qui devient fastidieux dans les programmes d'optimisation de paramètres physiques nécessitant plusieurs passages par la simulation.

La comparaison entre la simulation et l'expérience concernant le rendement spéculaire aux faibles angles, nous a permis d'élaborer une méthode de mesure indirecte des fractions de charges dans la voie d'entrée pour des systèmes à faibles taux de neutralisation (ce qui est généralement le cas des alcalins). Il est possible, à l'aide de cette méthode, d'étudier les effets dynamiques sur l'échange de charge résonnant dans la voie d'entrée.

**Conclusion générale:**

Dans ce travail, nous avons présenté une étude systématique du coefficient de réflexion d'ions atomiques monochargés de basse énergie par de surfaces solides selon deux approches : expérience et simulation.

Nous avons mesuré les fractions de charges d'ions positifs lors des collisions de gaz rares ( $\text{He}^+$ ,  $\text{Ne}^+$ ) et d'ions alcalins ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{Li}^+$ ) avec des surfaces de Nickel polycristallin. Nous avons également mesuré le rendement de la diffusion sur une large gamme angulaire à une énergie de 4 keV. On a ainsi obtenu les distributions angulaires du rendement de la diffusion dans le plan d'incidence.

D'autre part, nous avons étudié le rendement de la diffusion par simulation numérique. On a utilisé pour cela deux codes de simulation basés sur l'approximation de collisions binaires : le code TRIM modifié et le code MARLOWE.

En se basant sur la comparaison entre ces différents résultats, on a pu établir les caractéristiques générales des distributions angulaires du coefficient de réflexion en particulier l'existence d'un maximum de rendement dont l'angle de diffusion  $\theta_{\text{Max}}$  correspondant s'écarte de la réflexion spéculaire et est fonction linéaire de l'angle d'incidence  $\alpha$ .

L'expérience et la simulation MARLOWE s'accordent sur une valeur pratiquement constante du facteur de proportionnalité  $\eta$  entre  $\theta_{\text{Max}}$  et  $\alpha$ , de l'ordre de 1.65. Cependant, le calcul par TRIM conduit à une forte dépendance de  $\eta$  en système projectile-cible. Cette dépendance disparaît lorsqu'on supprime la condition imposée dans TRIM d'un parcours spécifique à la première collision, avec une valeur de  $\eta$  de l'ordre de 1.85, relativement grand par rapport à MARLOWE et l'expérience.

A partir des caractéristiques concernant les distributions angulaires du coefficient de réflexion, on a défini une forme analytique de ces distributions sur toute la gamme des angles de diffusion (angle d'incidence  $\alpha < 20^\circ$ ). Cela permet d'éviter, dans certain cas, le passage par la simulation numérique qui est en général très embarrassant et très consommateur en temps de calcul. Cette forme est valable sur toute notre gamme d'énergie ( $2\text{keV} < E < 12\text{keV}$ ), aussi bien pour TRIM que pour MARLOWE (les valeurs des paramètres dont dépend la fonction varient cependant d'un code à un autre)

La 2<sup>ème</sup> partie de ce travail, concerne l'étude du coefficient de réflexion spéculaire à des faibles angles d'incidence, où un désaccord net a été enregistré entre les observations expérimentales et les prévisions de la simulation numérique. On a montré que ce désaccord est dû, d'une part à la non prise en compte de la force image dans la simulation numérique et d'autre part, aux défauts liés au dispositif expérimental et à l'état de la surface cible, traduits par un facteur géométrique. La comparaison entre la simulation et l'expérience concernant un système à fort taux de neutralisation (gaz rare-Nickel), permet une mesure indirecte du facteur géométrique. Cela nous a permis d'élaborer une méthode de mesure indirecte des fractions de charges dans la voie d'entrée pour les systèmes à faible taux de neutralisation, offrant ainsi une possibilité commode d'étudier les phénomènes liés aux échanges de charge en particulier, la dynamique du processus de neutralisation résonnante dans la diffusion d'ions alcalins sur cibles métalliques.

L'optimisation des valeurs des fractions de charges dans la voie d'entrée ainsi que celle du potentiel image dans le cadre de ce modèle conduit à des résultats conformes à ceux obtenus par d'autres méthodes.

Il serait intéressant de compléter l'étude expérimentale du coefficient de réflexion pour d'autres cibles, pour vérifier l'indépendance de ces distributions angulaires par rapport au système en interaction, prévue par la théorie. Enfin, il serait également intéressant d'appliquer le modèle proposé dans ce travail pour estimer d'une part la valeur de  $V_{im}$  pour différentes cibles et pour étudier d'autre part, la dynamique de la neutralisation résonnante en faisant varier la vitesse dans la voie d'entrée.

# ***BIBLIOGRAPHIE***

## ***Bibliographie***

- [**AND89**] Andra.H.J In Marrus, editor, Proceeding of NATO-ASI, Plenum Press, Page 377,1989.
- [**AON87**] Aono.M, and R.Souda, Nucl.Inst.Meth, **B27**,55(1987).
- [**AUT95**] Auth.C, A.G.Borisov and H.Winter Phys.Rev.Lett 75 :2292(1995).
- [**ARZ98a**] Arezki.B, Y.Boudouma, P.Benoit-Cattin ,A.C.Chami, C.Benazeth, K. Khalal and M.Boudjema, J.Phys : Condens.Matter. **10**,741 (1998).
- [**ARE98b**] Arezki.B, thèse de magister1998
- [**Bar72**] Barat.M and H.Lichten Phys.Rev.A,6 ;P221(1972).
- [**Bel 00**] Belgroune.M, M.Boudjema, A.C.Chami and Y.Boudouma CNPA 2001.
- [**BEN94**] Benazeth.C, P. Benoit-cattin, P. Cafarelli, P. Reynes, J.P. Ziesel et N. Benazeth. Nucl.Instr. Meth. **B94**,581 (1994).
- [**BIE80**] Biersack J.P and L.G. Hagmark Nucl.Inst and Mrth, 170,208(1980).
- [**BRA89**] Brako.R, D.M.Newns, Rep.Prog.Phys.**52**,655(1989).
- [**CHA96**] Chami.A.C, Interaction Ion-Matière : Aspects fondamentaux, Cours de post-Graduation de Science Nucléaires, I.P, USTHB, (Bab-Ezzouar1996).
- [**DBI99**] D'Bichi.N.K.T, thèse de magister1998
- [**ECH90**] Echenique.P.M, F.Flores and R.H.Ritchie Solid Stat phys **43**,229(1990).
- [**Eck80**] Eckstein.W, H.Verbeek and J.P Biersack, J.Appl.Phys 51 (1980) 1194.
- [**FAN65**] Fano.U and W.Lichten, Phy.Rev Lett **14**,627(1965).
- [**FIR66**] Firsov.O.B, 1966, Doklady Akad,Nauk SSSR **169**, 1311[1967, Sov.Phys.Dokl.11.732].
- [**FIR68**] Firsov.O.B 1967 Fiz.Tverd.Tela9.2145 [1968, Sov.Phys-Solide State 9,1687.
- [**FIR71**] Firsov O.B, Zh. Eksp.Teor.Fiz 61 1452 [1972 Sov.Phys, JETP34,773].
- [**GEE90**] Geerlings.J.J.C,J.Los, Phys.Rep.**190**,133(1990).
- [**HAG54**] Hagstrum.H.D, Phys.Rev. **94**, 336 (1954).
- [**HAG56**] Hagstrum.H.D, Phys.Rev. **104**, 672 (1956).
- [**HAG61**] Hagstrum.H.D, Phys.Rev **122**,83(1961).

- [**HAG77**] Hagstrum.H.D, in : Inelastic from Ion-Surface Collision, Academic Press, New York,1977.
- [**HAG88**] Hagstrum.H.D, P.Petrie and E.E. Chaban. Phys.Rev **B38**,10264(1988).
- [**HOH92**] Hohler.G. Spring Tracts.Mod.Phys Volume123. Springer, particule induced electron emission ii edition (1992).
- [**HAL98**] Halas.S, T.Durakiewicz. J.Phys.Cond.Mat. 10 (1998).
- [**HOU94**] Hou.M, J.Phys. III France 4 (1994) 7.
- [**Isac74**] Isaacsson.D, NAPS Document (1975) 02698.
- [**JAC75**] Jackson.D.P Classical Electrodynamics, 2<sup>nd</sup> edition, page 54.(New York : Wiley).
- [**JAC81**] Jackson.D.P, W.Heiland and E.Tglauer, Phys.Rev. **B24**(1981)4198.
- [**KAT88**] Kato.M, R.S Wiliams and M.Aono, Nucl.Inst.Meth. **B33**, 462 (1988).
- [**KHA98**] Khalal-Kouache.K, A.C. Chami, M. Boudjema, Y. Boudouma et B. Arezki, Alg.J.Adv.Mat. **2** (1998) 87.
- [**KIM93**] Kimmel.G.A, B.H.Cooper, Phys.Rev.**B48**,12164(1993).
- [**LAN73**] Lang.N.D and W. Kohn, Phys. Rev. **B7**, 3541 (1973).
- [**LIC67**] Lichten.W Phys.Rev B,164 P :131(1967).
- [**LEH77**] Lehmann.CHR Interaction of radiation with solids and elementary defect production(1977).
- [**LIN63**] Lindhard.J, M.Scharff et H.E.Schiott, Mat.Fys.Medd.Dan Vid. Selsk,**33**.14(1963).
- [**LIN68**] Lindhard.J, M.Scharff et H.E.Schiott Mat.Fys.Medd.Dan. Vid. Selsk.33, n 14, 1 (1963).
- [**LOR94**] Lorente.N, R. Monreal and M. Alducin. Phys. Rev. **A49**, 4716 (1994)
- [**Luu92**] Luuk.F Charge exchange of multiply charged ions with metal surface.
- [**MAS63**] Mashkova.E.S and V.A. Molchanov 1962 Doklady Akad, Naur SSSR 146,585[1963, Sov.Phy.Dokl 7.829].
- [**Mol47**] Molière.G Z.Naturf., A2 :133, (1947).
- [**MUD88**] Muda.Y and D.M.Newns, Nucl.Inst.Meth. **B33**,388(1988).
- [**NAR89**] Narmann.A On the interaction of the particule with surfaces thesis Osnabruck University,1989.

- [*NAR90*] Närmann.A, W. Heiland, R.Monreal, F. Flores, and P.m. Echenique Phys.Rev.**B44**,2003 (1990).
- [*NAR93*] Narmann.A, K.Schmidt, C.Hofner and W.Heiland, Nucl Ins Meth. **B78**,72(1993).
- [*NAS96*] Nastasi.M, J.W.Mayer and J.K.Hirvouen. Ion.Solid.Interaction Fundamentals and application (Combridge Solid Science Series).
- [*NIE82*] Niehus.H and E.Preuss, Surf.Sci.**119**(1982)349.
- [*OVE87*] Overbury.S.H, Nucl.Instr.Meth.**B27**(1987)65.
- [*REM81*] Remizovich.V.S and I.S.Tilinin 1980 Zh.Tekln.Fiz50,1524[1980 Sov.Phys-Tech.Phys, 25,883].
- [*REM80a*] Remizovich.V.S , M.I Ryazanov and I.S.Tilinin 1980a, Doklady Akad.Nauk SSSR 251,848 [1980, Sov.Phys-Dokl.25,272].
- [*REM80c*] Remizovich.V.S, M.I.Ryazanov and I.S.Tilinin, 1980c, Zh.Eksp.Tekhn.Fiz **79**,448[1980, Sov.Phys.JETP25,225].
- [*ROB74*] Robinson.M.T and I.M.Torens Phys.Rev **B9**,5008(1974)
- [*SOU86*] Souda.R and M.Aono Nucl Inst Meth, 114(1986).
- [*SOU95*].Souda.R ,K.Yamamoto,T. Aizawa and Y.Ishizawa Phys.Rev **B51**,4463(1995).
- [*SUU73*] Suurmeijer.E.T.Th.M, A.L. boers, Surf.Sci 43,309(1973).
- [*TSU86*]Tsuneyuki.S and M.Tsukada Phys.Rev.**B34**,5758(1986).
- [*Wah64*] Wahlin.L Nucl.Instru.Meth., 27 :55-60, (1964).
- [*WINT72*] Winterbon.K.B, P.Sigmund and J.B. Sanders(1970) Spatial distribution of energy deposited by atomic particules in Elastic collisions. Mat.Fys.Medd.Dan Vid. Selsk. **37**, no.14.
- [*WIN92*] Winter.H and M.Sommer. Physics letters A,168 : 409-415(1992).
- [*WIN93*] Winter.H, J.Phys : Condens Matter 5,**A295**(1993).
- [*WIN96a*] Winter.H C.Auth and A.G.Borisov. NIM B,115 :133-136(1996).
- [*WIN96c*] Winter.H J.Phys : Vondensed Matter,8 :10149-10183(1996).
- [*WYP91*].Wyputta.F, P.Zimny, H.Winter, Nucl.Instrum.Methods **B58**,379(1991).
- [*ZAN88*] Zangwill.A, Physics Press,Combrige University Press.1988.

*[ZIE85]* Ziegler, J.F, J.P biersack and U.Littmark The stopping and ranges of ions in solids Pergamon press New york 1985.

*[ZIEM89]* Ziemny.R, H.Nienhaus, H.Winter, Rad.Eff.Def.Solids **109**,9(1989).

**Annexes:**

## Annexe I :

'HeNi'	
"	'Extension pour DISALF et fichiers(teta)'
1	'Potentiel: ZBL=1...MOLIERE=2...C-KR=3'
0.5	'1/2 ouverture du détecteur(degr,s)'
4.0	'Energie (KeV)'
2	'Nø atomique proj. Z1 (entier)'
4.	'Nbre de masse proj.M1'
100.00	'--- Nbre de tirs ---'
0.0E+00	'Energie d,placement ED'
3.84	'CW (Angstrom)'
5.	'Tmin (eV)'
1.	'Psimin (degr,s)'
1000.	'Epaisseur couche 1 (Angstrom)'
8.8955	'Masse volumique cible (g/cm3)'
28.	'Nø atomique cible Z2'
58.71	'Masse cible M2'
1.	'Fraction couche 1'
0.	'--DER-----'
0.	'----NIE-----'
0.	'-----RE-*-----'
0.000000E+00	'-----COU-----'
0.000000E+00	'-----CHE---

### Exemple de fichier d'entré TRIM

Un fichier de données TRIM comporte deux colonnes. Dans la première, on affecte des valeurs numériques aux variables utilisées dans le programme. Dans la deuxième on donne la définition de chaque valeur numérique.

La deuxième ligne permet de donner une extension pour les fichiers de sortie. Dans les lignes qui suivent, on définit les masses et les charges des atomes incidents et des atomes cibles, l'épaisseur de la couche, le nombre de projectiles, l'énergie minimum transférée (Tmin) et l'angle  $\psi_{\min}$  au-dessous duquel on néglige toutes les diffusions simples. Ce dernier sert à déterminer le paramètre d'impact maximum ( $P_{\max}$ ) et par la même, la longueur  $L_s$ , libre parcours entre deux collisions successives.

On définit en particulier dans ce fichier : Cw, qui représente la distance entre plus proches voisins des atomes cibles et Ed l'énergie du déplacement. Dans ce fichier, on peut superposer trois couches différentes. Chaque couche est définie par son épaisseur et sa masse volumique et peut être contenir 7 types d'atomes. Chaque type d'atomes sera défini par sa fraction dans la couche. L'angle d'incidence et l'emplacement des détecteurs sont définis dans des fichier séparés.

## Annexe II :

```
Ne / Ni 9/12/1999
Version U PRIM=0 alpha =4
&MODL METRIC=1,TRAM=F,SURFCE=2,KLAY=1,LORG=0,ZPR=F,THERM=T,
  TIM=T,F,T,F,F,&END
&XTAL NEWS=1,LYR=1,ALAT=3.52,CENTRE=6,RZ=3*0.0,
  POLY=1,AXISA=1.0,1.0,0.0,AXISB=-1.0,1.0,0.0,&END
&ATOM NTYPE=2,TYPE='Ne','Ni',Z=10.0,28.0,
  W=20.0,58.0,
  LOCK(1)=2,INEL=2*0,EQUIT=100.0,
  EBND=4.0,&END
&SURF ORIGIN=3*0.0,DEPTH=100.0,LYME=1,SBND=0.0,
  SIDEA=1.0,SIDEB=1.0,CALC=F,F,&END
&TVIB T=500.0,TDEBYE=225.0,&END
&OUTP INFORM=6*F,F,T,&END
&XTRU NBATOM=2,TYPSEL(1)=1,TYPSEL(2)=2,
  NDT(1)=180,AZIM(1,1)=0.0,
  POLAR(1,1)=90.0,
  ACCEPT(1,1,1)=0.0,ACCEPT(1,2,1)=0.2,CHOIXZ='SAMENDT',
  CHOIX1='SAMEAZI',CHOIX2='DISCFUL',CHOIX3='SAMEACC',
  CHOIX4='JOINTIF',
  &END
&PROJ RANX=0,0,0,0, MAXRUN=1000000,PRIM=0,EKIP=4000.0,DVRG=0.5,
LEAP=20, MILLER=F, THA=86.0, PHI=0.0, LAIP=1, &END
```

### Exemple de fichier d'entrée MARLOWE

La première ligne est un commentaire dans lequel on définit le système projectile cible, la géométrie de l'interaction et la version du programme utilisé. Le reste du fichier est formé de plusieurs lignes. Chaque ligne comporte un label identificateur « name list », des affectations de caractères numériques ou logiques à des variables et par indicateur de fin de ligne. &END.

La première ligne &Modl : permet de donner des affectations à des variables générales concernant le modèle de simulation en particulier la position initiale et la direction de la particule primaire (TRAM F), le nombre de couche (KLAY) et la délimitation de l'échantillon ( surface=2). D'autres variables peuvent être définies aussi telle que la température des vibrations du réseau (Therm). ZPR=F signifie que le programme effectue la procédure de recherche en utilisant des variables de valeurs prédéfinies. La ligne &XTAL : permet de définir les couches. Dans notre cas, il n'y a qu'une seule couche constituée de Nickel. L'affectation (ALAT=) définit les paramètres du réseau de Bravais de cette couche.

Centre=6 indique que le réseau est cubique centré. On positionne les sites atomiques sur les nœuds du réseau par l'affectation Rz. Poly=1 indique que la couche est polycristalline. Les indices de Miller des axes AXISA AXISB permettent de définir la surface cible.

Dans la ligne &Atome, on définit la masse et la charge des atomes mis en jeu (Ne et Ni dans notre cas). On définit aussi le type d'atome cible (Lock(1)=2). On fixe aussi le seuil énergétique au-dessous duquel la particule est considérée comme stoppée (Equit) et l'énergie du déplacement des atomes cibles (EBND).

&Surf : cette ligne précise l'origine du repère interne oxyz utilisé par MARLOWE et fixe la position des couches. DEPTH représente l'épaisseur de la couche et chaque particule doit pour franchir la surface réelle, surmonter la barrière d'énergie SBND. Les autres affectations définissent le parallélogramme dans lequel le point d'impact des projectiles est sélectionné.

&TVIB définit la température du solide et la température de vibration du réseau. &outp contrôle l'analyse des cascades et les options d'affichage des résultats. Dans la ligne &XTRU, on définit les grandeurs liées à la géométrie du problème les angles polaire et azimutal, le nombre de détecteurs et l'acceptance des détecteurs. La dernière ligne &Proj permet de définir le nombre de simulations à réaliser, l'énergie des particules incidentes, la divergence du faisceau, l'angle d'incidence et l'angle azimutal.