

N° d'ordre: 36/2005-M/PH

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE et POPULAIRE
MINISTRE D'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE
« HOUARI BOUMEDIENE »
FACULTE DE PHYSIQUE



MEMOIRE

Présenté pour l'obtention du diplôme de

MAGISTER EN PHYSIQUE

Spécialité : Sciences Nucléaires

Par : M^{elle} **CHERGUI Ryma**

Sujet :

**Modélisation de l'émission secondaire à partir
de surfaces métalliques sous l'impact d'ions
atomiques et agrégats**

Soutenu publiquement le : 18/12/2005, devant le jury composé de :

| | | |
|--------------------------|--------------------------------------|---------------------------|
| Mr. S. OUICHAOUI, | Professeur, USTHB, | Président |
| M. BENGUERBA, | Maître de conférences, USTHB, | Directeur de thèse |
| Mr. D. BRADAI, | Professeur, USTHB, | Examineur |
| Mr. R. ANNOU, | Maître de conférences, USTHB, | Examineur |
| Mme. K. KHALAL, | Maître de conférences, USTHB, | Examineur |

Je dédie mon mémoire

à la personne la plus merveilleuse, ma Mère qui m'a soutenue et

protégée, et donné son amour et sa patience

à mon Père qui a cru en moi et en ma réussite

à mon petit Frère NABIL qui a toujours été là pour moi

aux amis qui m'ont entourée et aimée toutes ces années plus précisément

SABRINA, SOUAD, NASSIM et NAWEL ma cousine

sans oublier le plus gentil et le plus adorable d'entre eux FADI

*à tous les membres du laboratoire Sciences Nucléaires et Interaction Ion-Matière
et à l'équipe « Changement de Phases »*

à la famille CHERGUI petits et grands

et à tous ceux qui aiment la Physique

*Peut-on rire sans être formé d'atomes rieurs ?
(Lucrece de Natura Rerum)*

REMERCIEMENTS

Je remercie tout d'abord, mon directeur de thèse Monsieur M.Benguerba, maître de conférences à la faculté de physique (USTHB), de sa disponibilité, son sérieux et sa rigueur ainsi que pour ses nombreux conseils constructifs et discussions bénéfiques à ma formations. Travailler sous sa direction a permis à cette thèse d'aboutir et à m'initier au monde de la recherche. Pour cela, je lui suis reconnaissante.

Toute ma gratitude à Monsieur le Professeur S.Ouichaoui pour avoir eu la gentillesse de bien vouloir présider le jury de ma thèse.

Mes remerciements s'adressent aussi à Madame Dr. K.Khalal, Monsieur Dr.R.Annou et Monsieur le Pr D.Bradai pour avoir accepté de faire partie de mon jury.

Je remercie Madame Pr. A.Ferahi chef du département Rayonnement pour tous ses efforts. Ainsi que tous mes professeurs que j'ai eu durant ma graduation et ma post-graduation.

Un grand merci aux membres de l'équipe du laboratoire d'astrophysique nucléaire qui m'ont accueillis dans leur petite famille.

TABLE DES MATIERES

| | |
|---------------------------|---|
| Introduction | 3 |
|---------------------------|---|

CHAPITRE I :

RAPPELS THEORIQUES

| | |
|---|----|
| I.1.INTRODUCTION | 7 |
| I.2.PARAMETRES IMPORTANTS DE L'INTERACTION ION-MATIERE | 8 |
| I.2.1.Section efficace différentielle | 8 |
| I.2.2.Pouvoir d'arrêt | 11 |
| I.2.2.a. Pouvoir d'arrêt nucléaire | 12 |
| I.2.2.b. Pouvoir d'arrêt électronique | 13 |
| I.3. EFFET INDUIT PAR IRRADIATION DANS LA MATERIAU CIBLE | 16 |
| I.3.1 Atomes déplacés par collision élastique | 17 |

CHAPITRE II :

MODELES THEORIQUES DE SPUTTERING

| | |
|--|----|
| II.1.INTRODUCTION | 20 |
| II.2.MODELES COLLISIONNELS | 20 |
| II.3.MODELES DE THERMAL SPIKE | 23 |
| II.3.1.Sputtering par évaporation thermique | 25 |
| II.3.2. Sputtering par flux gazeux | 27 |
| II.4.MODELES DE SPUTTERING PAR CHOC | 28 |
| III.5.MODELES SEMI-EMPIRIQUES | 31 |
| III.6.SIMULATION PAR DYNAMIQUE MOLECULAIRE | 33 |

CHAPITRE III :

EMISSION SECONDAIRE SOUS L'IMPACT D'IONS ATOMIQUES

| | |
|--|----|
| III.1. INTRODUCTION..... | 35 |
| III.2. PROCEDURE D'ANALYSE..... | 36 |
| III.2.1. Rendement total de l'émission secondaire sous l'impact d'ions atomiques..... | 36 |
| III.2.2. Analyse-Insuffisance des modèles | 37 |
| III.3. RESULTATS ET DISCUSSIONS..... | 39 |
| III.3.1. La fonction $g(\xi)$ | 39 |
| III.3.2. Nécessité d'une correction du modèle de TS..... | 41 |
| III.4. VALIDATION DE LA CORRECTION..... | 45 |
| III.5. CONCLUSION..... | 48 |

CHAPITRE VI :

EMISSION SECONDAIRE SOUS L'IMPACT D'IONS AGREGATS (POLY-ATOMIQUES)

| | |
|---|----|
| IV.1. INTRODUCTION..... | 51 |
| IV.2. TRAVAUX ANTERIEURS..... | 51 |
| IV.3. PRESENTATION DU MODELE..... | 53 |
| IV.3.1. Hypothèses du modèle..... | 53 |
| IV.3.2. Déscription du modèle..... | 54 |
| IV.3.3. Procédure de simulation Monte-Carlo..... | 57 |
| IV.4. ANALYSE DE DONNEES..... | 58 |
| IV.5. RESULTATS ET DISCUSSIONS..... | 60 |
| IV.6. CONCLUSION..... | 66 |
| CONCLUSION GENERALE | 67 |
| REFERENCES | 70 |

Introduction

Introduction

Lors du bombardement d'un matériau par des ions atomiques ou polyatomiques, ceux-ci déposent leur énergie dans la cible. La perturbation engendrée sous forme de transfert d'énergie aux atomes du milieu peut conduire à l'éjection de particules atomiques ou agrégats, à partir de la surface de la cible, c'est le phénomène de l'émission secondaire ou « sputtering ». Cette émission est caractérisée par un rendement Y (pour Yield) défini comme étant le rapport du nombre de particules émises au nombre d'ions incidents.

Le rendement est utilisé comme sonde de l'interaction ion-matière. En effet, sa variation avec les paramètres de la voie d'entrée à savoir : l'énergie incidente, l'angle, la taille...etc., apporte des informations sur le mécanisme de cette émission. La compréhension de ce mécanisme permettra de mieux orienter les applications de ce phénomène. Plus récemment, l'utilisation des agrégats comme projectiles s'est avérée plus efficace que celle des projectiles atomiques, en ce qui concerne le taux d'émission secondaire. Les agrégats sont des grains de matière constitués de deux à quelques milliers d'atomes. Ils constituent un moyen simple de réaliser des impacts simultanés de plusieurs atomes sur une surface très faible et par conséquent d'y déposer une densité d'énergie très importante dont les conséquences sont à découvrir.

L'étude du sputtering sous l'impact des ions atomiques aide à mieux comprendre les processus physiques liés aux agrégats. Ces nouveaux projectiles, grâce à leurs propriétés, ont ouvert de nouvelles perspectives aussi bien en recherche fondamentale qu'en recherche appliquée.

En effet, les agrégats sont appelés à connaître un essor considérable en raison de leur multifonctionnalité. Les agrégats constituent des objets très recherchés dans différents domaines et sont donc un des vecteurs de progrès pour la préservation de l'environnement et le développement durable. L'interaction agrégat-matière a suscité l'intérêt de nombreux groupes de recherche tant par la compréhension des processus fondamentaux mis en jeu, que par les possibles développements industriels comme en nanoélectronique. L'un des enjeux est l'élaboration de nouvelles architectures à l'échelle nanométrique, utilisant les agrégats comme briques élémentaires. En ce qui concerne le processus d'interaction agrégat-matière, l'expérience est en avance par rapport à la théorie. Les modèles théoriques existants tentent d'expliquer le mécanisme de sputtering, sous l'impact d'ions atomiques, en utilisant différents concepts. Les plus connus des modèles sont: les cascades linéaire (CN), la pointe thermique (Thermal Spike (TS)), des ondes de chocs. Cependant, aucun de ces modèles ne reproduit de façon satisfaisante le rendement expérimental sur une large gamme d'énergie allant du keV au MeV. Par ailleurs, on note l'absence

totale de modèles analytiques concernant l'émission sous l'impact d'agrégats, sauf sous forme de simulation par la dynamique moléculaire. La difficulté analytique est, surtout, liée à la fragmentation de l'agrégat au moment de l'impact sur la surface de la cible.

Le bombardement d'une surface solide par des projectiles agrégats conduit à l'augmentation de l'émission secondaire. En effet le rendement de sputtering induit par un agrégat formé de « n » atomes est plus important que celui induit par tous ces constituants à l'état libre à la même vitesse, c'est ce qu'on appelle l'effet nonlinéaire.

L'objectif de ce travail est de modéliser le mécanisme de l'émission secondaire à partir de surfaces métalliques sous l'impact d'ions atomiques et d'agrégats (en incidence normale), sur une large gamme d'énergie (keV-MeV).

Dans le chapitre I, nous rappelons les notions et relations théoriques relatives aux processus de ralentissement et de dépôt d'énergie des ions dans la matière.

Le chapitre II est consacré à la présentation des modèles les plus connus utilisant des approches différentes pour expliquer le mécanisme de pulvérisation. En particulier, nous donnons plus de détails sur les cascades linéaires CL et la pointe thermique TS.

Le chapitre III concerne l'analyse des insuffisances des modèles TS et CL sur la base des rendements de sputtering mesurés pour différentes cibles et différents projectiles atomiques. Nous montrons qu'une approche basée sur l'introduction d'une correction au TS, et en tenant compte des contributions CL et TS, suffit pour reproduire le rendement expérimental.

Dans le dernier chapitre, nous proposons un modèle semi analytique pour décrire la pénétration d'un agrégat, en utilisant l'approche décrite dans le chapitre III, et qui tient compte de la fragmentation. Les résultats obtenus dans le cadre de ce modèle démontrent que cette approche permet de reproduire de façon satisfaisante les rendements expérimentaux mesurés dans les mêmes conditions.

L'ensemble de ce travail a été accompli au laboratoire des Sciences Nucléaires et Interaction Ion-Matière, à la faculté de physique de l'Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene (USTHB), Alger. Les programmes de simulation y ont été entièrement développés.

Chapitre I :

Rappels Théoriques

Rappels Théoriques

De façon générale, un processus d'irradiation peut être compris si l'on s'intéresse à l'interaction ion-matière. Dans ce chapitre I, nous allons rappeler quelques notions de base concernant les processus de ralentissement de particules dans la matière pour des ions atomiques, afin de mieux comprendre les processus du dépôt d'énergie dans la cible et la réponse du milieu à cette excitation.

I-1. Introduction

Le bombardement d'une surface métallique par des ions peut provoquer l'émission d'atomes et d'agrégats ; c'est le phénomène de pulvérisation ou sputtering. Cette émission est caractérisée par un rendement Y défini comme le rapport entre le nombre de particules émises et le nombre d'ions primaires.

$$Y = \frac{\text{nombre de particules émises}}{\text{nombre d'ions primaires}}$$

Lors de l'irradiation d'un matériau par des particules chargées, ces dernières transfèrent progressivement leur énergie au milieu traversé par une succession de collisions qui peuvent être élastiques ou inélastiques dépendants de l'énergie incidente. La perturbation engendrée dans le milieu va se propager de proche en proche, pouvant conduire à l'éjection de particules à partir de la surface de la cible. Une analyse complète de l'irradiation implique alors l'étude de l'interaction ion-matière. Le ralentissement d'un ion dans la matière peut être décrit par deux processus quasi-indépendants :

- ✓ **Les collisions élastiques** : lorsque l'énergie incidente est faible ($v_{\text{projectile}} \prec v_{\text{Bohr}}$), l'ion projectile dépose son énergie par collisions nucléaires élastiques. Au cours de ces collisions, l'interaction est de type coulombien, en général écranté.
- ✓ **Les collisions inélastiques** : lorsque l'énergie incidente est grande ($v_{\text{projectile}} \succ v_{\text{Bohr}}$), l'ion projectile dépose son énergie par des excitations électroniques inélastiques avec les atomes de la cible (excitation électronique, ionisation des atomes au voisinage de la trajectoire des ions). Bien que ces deux processus de perte d'énergie existent toujours de façon simultanée, leur importance relative dépend aussi bien du projectile que de son énergie.

I.2. - Paramètres importants de l'interaction ion-matière

I.2.1. Section efficace différentielle.

La probabilité $dp(E)$ qu'a un ion d'énergie E traversant une distance dx pour effectuer une collision avec un noyau cible est :

$$dp(E) = N_a d\sigma(E) dx \quad (\text{I-1})$$

où N_a est la densité atomique du solide.

La probabilité pour transférer une énergie comprise entre T et $T+dT$ lors d'une collision élastique avec un noyau cible peut s'écrire sous la forme :

$$dp(E, T) = N_a dx \frac{d\sigma(E, T)}{dT} dT \quad (\text{I-2})$$

où $d\sigma(E, T)$ est la section efficace différentielle de collision.

T_m est l'énergie maximale transmise lorsque le choc est frontal et E est l'énergie de la particule incidente. T_m est donnée par :

$$T_m = \gamma E = \frac{4M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} E \quad (\text{I-3})$$

Où : $M_{1,2}$ sont les masses du projectile et de la cible respectivement.

La section efficace différentielle de collision nucléaire dépend de la forme du potentiel d'interaction. Lindhard et al. [1] (Théorie LSS) ont déduit une expression de la section efficace différentielle basée sur le potentiel d'interaction de Thomas-Fermi :

$$d\sigma(E, T) = \frac{\pi}{2} a_{TF}^2 \frac{f(t^{1/2})}{t^{3/2}} dt \quad (\text{I-4})$$

où

$$t = \varepsilon^2 \frac{T}{Tm} \quad , \quad (\text{I-5})$$

$$a_{TF} = \frac{0.4685}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}} \quad , \quad (\text{I-6})$$

ε est l'énergie réduite, définie par [2] comme:

$$\varepsilon = \frac{M_2}{(M_1 + M_2)} \frac{a_{TF}}{Z_1 Z_2 e^2} E \quad (I-7)$$

et $f(t^{1/2})$ est la fonction universelle de diffusion.

Cette dernière a été tabulée par Lindhard et al.[3]. Winterbon et al. [2] ont approché $f(t^{1/2})$ par une expression analytique générale de type :

$$f(t^{1/2}) = \lambda t^{1/2-m} \left[1 + (2\lambda t^{1-m})^q \right]^{-1/q} \quad (I-8)$$

où λ , m et q sont des paramètres d'ajustement qui dépendent du potentiel d'interaction. A titre d'exemple :

- Pour un potentiel de Lenz-Jensen[4]:

$$\lambda = 2.92, m = 0.191 \text{ et } q = 0.512 \quad 10^{-6} \leq t^{1/2} \leq 10$$

- Pour un potentiel de ZBL [5]

$$\lambda = 5.01, m = 0.233 \text{ et } q = 0.413 \quad 10^{-6} \leq t^{1/2} \leq 10^4$$

À faibles valeurs de t ($10^{-3} \leq \varepsilon \leq 10$) et pour un potentiel en forme de puissance de r : $V(r) \propto r^{-s}$, la fonction $f(t^{1/2})$ peut être réduite à la forme:

$$f(t^{1/2}) = \lambda_m t^{1/2-m} \quad (I-9)$$

Les valeurs de m et λ_m dépendent de ε et sont données dans le tableau (I-1).

La fig.(I-1) représente les variations de $f(t^{1/2})$ en fonction de ε dans l'intervalle $\varepsilon \in [10^{-3}, 10]$. On remarque que l'expression donnée par Winterbon et al.[2] ajuste bien les valeurs calculées par Lindhard et al.[3], alors que l'expression (I-9) ne représente une bonne approximation qu'aux faibles valeurs de ε .

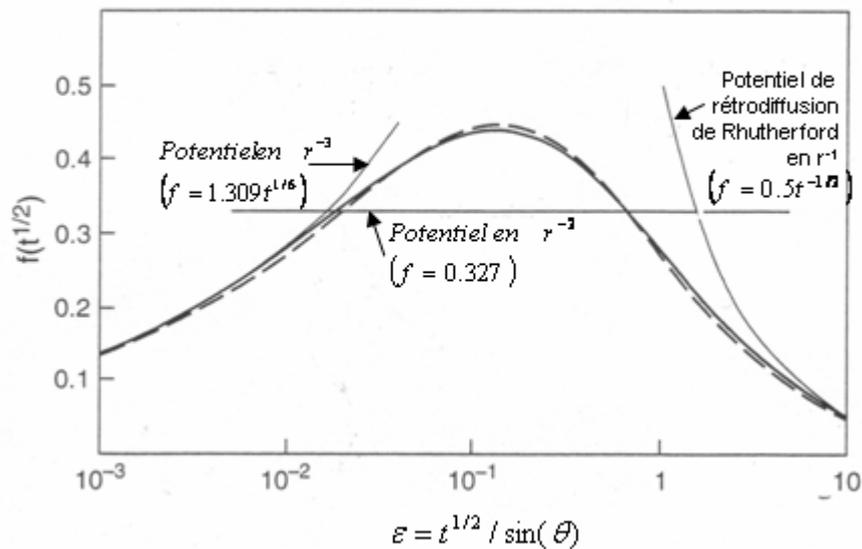


Figure :I-1. : Variations de $f(t^{1/2})$ en fonction de $\varepsilon^{1/2}$ pour un potentiel de Thomas Fermi. (—) représente l'éq.(I-7), (---) représente l'éq.(I-6) et (—) d'après la référence[3].

Dans le cas où le potentiel est Coulombien, la section efficace différentielle est donnée, suivant, Rutherford [6] :

$m=1$

$$d\sigma(E,t) = \frac{\pi}{4} (2Z_1Z_2e^2) \frac{M_1}{M_2} \frac{dT}{ET^2} \quad (\text{I-10})$$

Dans le cas où la distance d'approche r de l'ion incident et du noyau cible devient plus importante par rapport au rayon d'écran a_{TF} , la répulsion des couches électroniques diminue le potentiel d'interaction. Dans ces conditions, le potentiel $V(r)$ tient compte de cet effet d'écran par l'intermédiaire d'une fonction $\Phi(r/a_{TF})$ appelée fonction d'écrantage de Thomas- Fermi, avec :

$$V(r) = \frac{Z_1e}{r} \Phi(r/a_{TF}) \quad (\text{I-11})$$

Sigmund et al. [7] proposent une approximation donnant la section efficace différentielle pour un potentiel en forme de puissance de r : $V(r) \propto r^{-s}$ ($s=1/m$), avec une fonction d'écrantage approchée par une loi de puissance de type :

$$\Phi(r/a_{TF}) = \frac{k_s}{s} \left(\frac{a_{TF}}{r} \right)^{s-1} \quad (\text{I-12})$$

où $s=1,2 \dots k_s$ est une constante numérique.

La section efficace différentielle $d\sigma$ s'écrit dans ce cas :

$$d\sigma = \frac{C_m}{E^m T^{1+m}} dT, \quad 0 \leq T \leq T_m \quad (\text{I-13})$$

où : T est l'énergie de l'atome de recul.

avec

$$C_m = \frac{\pi}{2} \lambda_m a_{TF}^2 \left(\frac{2Z_1Z_2e^2}{a_{TF}} \right)^{2m} \left(\frac{M_1}{M_2} \right)^m \quad (\text{I-14})$$

où λ_m une constante.

Les valeurs des paramètres m et λ_m sont données dans le tableau (I-1) en fonction de la gamme d'énergie réduite ϵ .

| m | λ_m | gamme d'énergie réduite ε |
|-----|-------------|--|
| 1/3 | 1.309 | $\varepsilon \leq 0.2$ |
| 1/2 | 0.327 | $0.08 \leq \varepsilon \leq 2$ |
| 1 | 0.5 | $\varepsilon \geq 10$ |

Tableau (I-1) : Valeurs de m et de λ_m . [8]

I.2.2 - Pouvoir d'arrêt :

Lors d'une interaction ion-matière, l'ion incident transmet son énergie à la cible tout au long de son passage dans le milieu, ce qui a pour effet de ralentir celui-ci jusqu'à l'arrêt. La perte d'énergie par unité de longueur est appelée **pouvoir d'arrêt** Noté, $-\frac{dE}{dx}$. Ce paramètre est caractéristique de l'interaction ion-matière.

Selon le processus collisionnel considéré, interactions inélastiques ou élastiques, **un pouvoir d'arrêt électronique** $-\frac{dE}{dx}\Big|_e$ et **un pouvoir d'arrêt nucléaire** $-\frac{dE}{dx}\Big|_n$ sont définis. D'après

J.Lindhard et collaborateurs [9,10], le pouvoir d'arrêt total ou la perte totale d'énergie par unité de longueur dans la cible est obtenue en sommant les pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique, est donnée par :

$$\frac{dE}{dx}\Big|_{total} = \frac{dE}{dx}\Big|_n + \frac{dE}{dx}\Big|_e \quad (I-15)$$

Le pouvoir d'arrêt permet d'évaluer le parcours réel de l'ion projectile dans la matière. Au cours de l'interaction, la vitesse de l'ion incident diminue et l'ion se retrouve piégé dans la matière. Il est alors possible de déterminer le parcours R de l'ion le long de sa trajectoire dans la cible, donné par la relation :

$$R = \int_0^{E_0} \left(\frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE \quad (I-16)$$

où E_0 représente l'énergie cinétique de la particule à son entrée dans le milieu.

I.2.2.a Pouvoir d'arrêt nucléaire.

Le pouvoir d'arrêt nucléaire est défini par :

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_n = N_a \int_{T_{\min}}^{T_m} T \frac{d\sigma(E, T)}{dT} dT, \quad (I-17)$$

où T_m est l'énergie maximale communiquée au noyau cible, donnée par l'éq. (I-3) et T_{\min} est l'énergie minimale transférée à un atome cible par un ion incident lors de sa diffusion avec un angle minimum φ_m dans le laboratoire. L'expression donnant T_{\min} a été déterminée en utilisant les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement [9].

$$T_{\min} = \beta E \quad (I-18)$$

avec

$$\beta = \frac{2M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} \left\{ 1 + \frac{M_1}{M_2} \sin^2 \varphi_m - \left[\left(1 + \frac{M_1}{M_2} \sin^2 \varphi_m \right)^2 - \left(\frac{M_1}{M_2} + 1 \right)^2 \sin^2 \varphi_m \right]^{1/2} \right\} \quad (I-19)$$

Dans le cas qui nous intéresse, l'énergie minimum correspond à l'énergie E_d nécessaire pour déplacer un atome.

La section efficace d'arrêt nucléaire $S_n(E)$ pour un ion d'énergie E , est définie à partir de :

$$S_n(E) = \frac{1}{N_a} \left. \frac{dE}{dx} \right|_n = \int_{T_{\min}}^{T_m} T \frac{d\sigma(E, T)}{dT} dT \quad (I-20)$$

Pour un potentiel en forme de puissances de r , la section efficace d'arrêt nucléaire, dans le cadre de l'approximation de Sigmund et al. [7] (éq.I-13), est donnée par :

$$S_n(E) = \frac{C_m E^{1-2m}}{1-m} \left[\frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} \right]^{1-m} \quad (I-21)$$

où les valeurs de m sont données en fonction de la gamme d'énergie réduite dans le tableau (I-1). La section efficace d'arrêt nucléaire réduite, $S_n(\varepsilon)$, peut être calculée en utilisant la fonction $f(t^{1/2})$:

$$S_n(\varepsilon) = \frac{1}{\varepsilon} \int_0^\varepsilon f(t^{1/2}) dt^{1/2} \quad (I-22)$$

Dans le cas où $f(t^{1/2})$ est remplacée par l'éq.(I-7), la section efficace d'arrêt nucléaire réduite devient :

$$S_n(\varepsilon) = \frac{\lambda_m}{2(1-m)} \varepsilon^{1-2m} \quad (\text{I-23})$$

D'autre part, $S_n(\varepsilon)$ peut être obtenue à partir de la relation [5]:

$$S_n(\varepsilon) = \frac{\varepsilon}{\pi a_{TF}^2 \gamma E} S_n(E) \quad (\text{I-24})$$

tel que :

$$\gamma = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)} = \frac{T_m}{E} \quad (\text{I-25})$$

La section efficace d'arrêt nucléaire est aussi calculée dans le cadre du modèle ZBL [5], soit :

$$S_n(E) = \frac{8.46210^{-15} Z_1 Z_2 M_1}{(M_1 + M_2)(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})} S_n(\varepsilon_{ZBL}) \quad (\text{I-26})$$

où $S_n(E)$ est en eV cm²/atome.

ε_{ZBL} représente l'énergie réduite de ZBL, définie à l'aide de la relation suivante :

$$\varepsilon_{ZBL} = \frac{32.53 M_2 E}{Z_1 Z_2 (M_1 + M_2)(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})} \quad (\text{I-27})$$

et $S_n(\varepsilon_{ZBL})$ est la section efficace d'arrêt nucléaire réduite donnée par :

$$S_n(\varepsilon_{ZBL}) = \begin{cases} \frac{0.5 \text{Ln}(1 + 1.1383 \varepsilon_{ZBL})}{\left(\varepsilon_{ZBL} + 0.01321 \varepsilon_{ZBL}^{0.21226} + 0.19593 \varepsilon_{ZBL}^{0.5} \right)} & , \varepsilon_{ZBL} \leq 30 \\ \frac{\text{Ln}(\varepsilon_{ZBL})}{2 \varepsilon_{ZBL}} & , \varepsilon_{ZBL} > 30 \end{cases} \quad (\text{I-28})$$

I.2.2.b. Pouvoir d'arrêt électronique :

Dans le processus de ralentissement dit électronique, les projectiles interagissent avec les électrons du milieu en dissipant l'énergie par excitation et ionisation des atomes de la cible. Ce mécanisme dépend de la vitesse du projectile.

Pour des ions de faible vitesse ($v < v_0 Z_1^{2/3}$), où : v_0 est la vitesse de Bohr, il existe deux théories qui donnent un pouvoir d'arrêt électronique proportionnel à la vitesse : il s'agit des modèles de Firsov [12] et de Lindhard [9]. Ces théories sont basées sur l'idée selon laquelle les électrons très peu liés (électrons de valence) ou libres (électrons de conduction) pourront contribuer au processus de perte d'énergie par excitations électroniques.

Lindhard et al. [9] considèrent que la particule incidente produit une impulsion qui perturbe la cible constituée par un gaz d'électrons. Selon cette théorie, la section efficace d'arrêt électronique est donnée par :

$$S_e = \frac{1}{N_a} \left. \frac{dE}{dx} \right|_e = K \sqrt{E} \quad , \quad (\text{I-29})$$

où

$$K = 3.83 \frac{Z_1^{7/6} Z_2}{M_1^{1/2} (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \quad (\text{I-30})$$

Firsov [12] prend en considération le phénomène de capture d'un électron cible par l'ion projectile de vitesse v , ce qui correspond à la formation d'une pseudo- molécule. La section efficace d'arrêt électronique s'écrit dans le cadre de cette théorie comme suit :

$$S_e(E) = -2.34(Z_1 + Z_2)v \times 10^{-15} \quad (\text{I-31})$$

où v est en 10^8 cm/s et $S_e(E)$ en eV cm²/atome.

Dans ce domaine de vitesses, les deux théories conduisent donc à une section efficace d'arrêt électronique proportionnelle à la vitesse de l'ion incident, c'est à dire à \sqrt{E} . De plus, les deux formulations impliquent que pour une vitesse donnée, la perte d'énergie doit croître uniformément avec les numéros atomiques de l'ion incident et de l'atome cible.

Dans le cas où ($v > v_0 Z_1^{2/3}$) (mais non relativiste), c'est à dire lorsque la vitesse du projectile est supérieure à celle des électrons de la couche K de l'atome cible, l'ion incident perd tous ses électrons et interagit par diffusion coulombienne, avec les électrons de la cible. Le pouvoir d'arrêt électronique s'exprime par :

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = N_e \int_{T_{\min}}^{T_m} T d\sigma(E, T) dT \quad (\text{I-32})$$

avec $N_e = Z_2 N_a$ où N_e représente la densité électronique de la cible et N_a sa densité atomique.

T_{\min} représente, dans ce cas l'énergie moyenne de première ionisation I de l'atome cible. Puisque

$Z_2 = 1$ et $M_2 = m_e \ll M_1$, on a $T_m = \frac{4m_e M_1}{(M_1 + m_e)^2} E \cong 2m_e v^2$ et le pouvoir d'arrêt électronique est

donné, dans ces conditions, pour des ions non relativistes, par la formule de Bethe [13] :

$$-\left.\frac{dE}{dx}\right|_e = \frac{4\pi N_a Z_1^2 Z_2 e^4}{m_e v^2} \ln\left(\frac{2m_e v^2}{I}\right) \quad (\text{I-33})$$

e et m_e sont respectivement la charge et la masse de l'électron, v étant la vitesse du projectile et I est le potentiel d'ionisation de l'atome cible. Pour sa détermination on utilise des formules semi-empiriques [14] :

$$I(\text{eV}) = \begin{cases} 12 Z_2 + 7 & , Z_2 < 13 \\ 9.76 Z_2 + 58.5 Z_2^{-0.19} & , Z_2 \geq 13 \end{cases} \quad (\text{I-34})$$

La partie logarithmique varie lentement avec la vitesse et, par conséquent, le pouvoir d'arrêt électronique évolue pratiquement comme v^{-2} (ou E^{-1}).

En tenant compte des effets relativistes, de couches et de polarisation, l'expression du pouvoir d'arrêt électronique est complexe et comprend plusieurs termes correctifs. Elle est donnée par :

$$-\left.\frac{dE}{dx}\right|_e = \frac{4\pi N_a Z_1^2 Z_2 e^4}{m_e v^2} \left[\ln\left(\frac{2m_e v^2}{I}\right) - \ln\left(1 - \left(\frac{v}{c}\right)^2\right) - \left(\frac{v}{c}\right)^2 - \sum_i \frac{C_i}{Z_2} - \delta \right] \quad (\text{I-35})$$

Où : c est la vitesse de la lumière dans le vide, I le potentiel moyen d'ionisation, $\sum_i C_i$ les

corrections de couches sommées sur les couches électroniques du milieu ralentisseur et δ la correction due à la polarisation du milieu ralentisseur.

Lorsque la vitesse du projectile diminue et devient du même ordre de grandeur que celle des électrons de la cible, le terme Z_1 doit être remplacé par une charge effective Z_1^* , dépendante de la vitesse, donnée, en général, par [8]:

$$\frac{Z_1^*}{Z_1} = 1 - \exp\left[-0.92v / (v_0 Z_1^{2/3})\right] \quad (\text{I-36})$$

Le pouvoir d'arrêt électronique atteint un maximum lorsque la vitesse des ions est similaire à celles des électrons du matériau (aux vitesses intermédiaires $v=v_0 Z_1^{2/3}$). Cette zone du pouvoir d'arrêt est appelée "pic de Bragg" et se situe à des vitesses de l'ordre de quelques MeV/u pour des ions lourds. La figure (I-2) représente un exemple de calcul des pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique des ions Au^+ dans une cible d' Au , en utilisant le code TRIM [5] (version SRIM 2003).

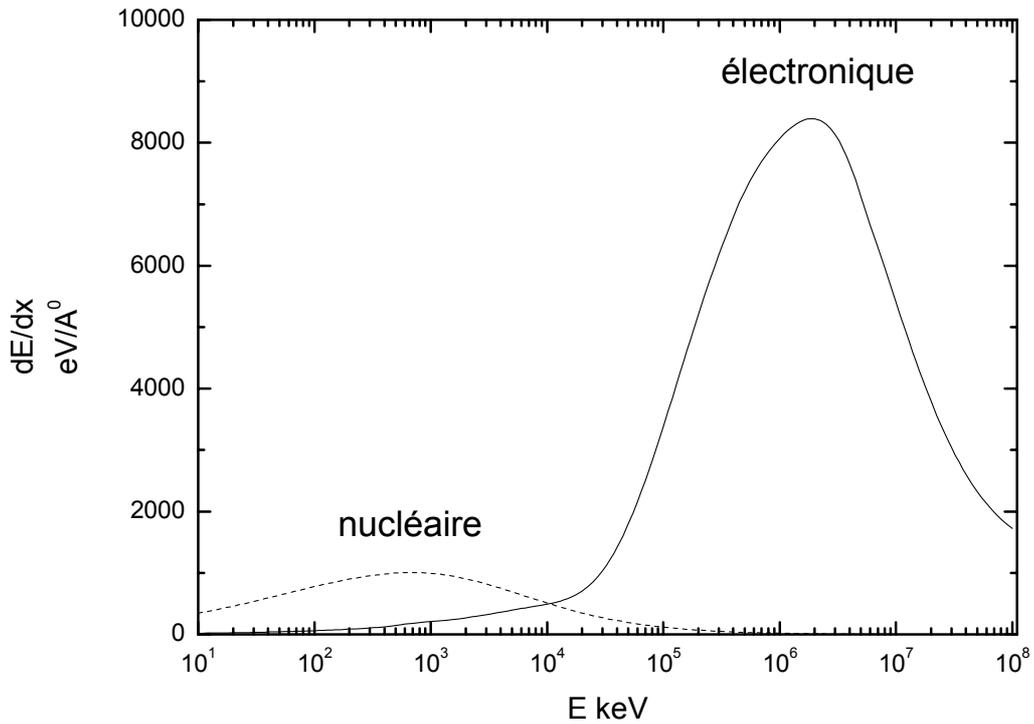


Figure : (I-2) : *Pouvoir d'arrêt (eV/A) électronique (traits - plein) et nucléaire (traits -pointilles) d'un ion Au dans une cible de Au. Les calculs sont effectués à l'aide du code SRIM.*

A basse énergie, le ralentissement de l'ion est essentiellement de nature nucléaire, avec un maximum situé à environ 700 keV. En revanche, à haute énergie, il est essentiellement de nature électronique, avec un maximum localisé aux environs de 2GeV, dans le cadre de Au sur Au. Les ions utilisés dans ce travail ont des énergies comprises entre quelques keV à quelques MeV. Dans ce domaine d'énergie le pouvoir d'arrêt électronique est négligeable par rapport au pouvoir d'arrêt nucléaire.

I.3. Effets induits par irradiation dans le matériau cible :

Deux types de processus sont ainsi à l'origine des déplacement d'atomes dans les solides : les processus de collisions nucléaires élastiques conduisant à la mise en mouvement d'atomes du solide (atomes de recul) et les processus de collisions (ion-électron) inélastiques impliquant les niveaux électroniques de la cible (ionisation ou excitation).

Le domaine d'énergie précédemment cité de notre travail implique que seuls les processus élastiques contribuent au déplacement des atomes.

I.3.1. Nombre d'Atomes déplacés par collisions élastiques :

Les collisions élastiques entre la particule incidente et les atomes cibles le long de sa trajectoire provoquent le déplacement d'atomes primaires appelés PKA (Primary Knock-On Atoms). Si l'énergie transférée par collision élastique T à un PKA est suffisante ($T \gg E_d$) il peut à son tour déplacer d'autres atomes appelés atomes secondaires, puis tertiaires,...etc, comme le montre la figure I-3.

L'énergie seuil de déplacement E_d est l'énergie minimale à fournir pour déplacer un atome de son site. Le nombre moyen d'atomes cible déplacés N_d par l'ion projectile est proportionnel à l'énergie T transférée lors de la collision élastique. Ce nombre est donné par la relation de *Kinchin-Pease* modifiée [7,14-16] en négligeant la structure cristalline.

$$N_d(T) = \begin{cases} 0 & 0 < T < E_d \\ 1 & E_d \leq T < 2E_d \\ \frac{0.8\nu(T)}{2E_d} & \frac{2E_d}{0.8} \leq T < \infty \end{cases} \quad (\text{I-37})$$

où $\nu(T)$ est la densité d'énergie totale de mouvement atomique (l'énergie d'endommagement) donnée dans le cadre du modèle NRT (modèle de Norgett, Robinson et Torrens)[17], par

$$\nu(T) = \frac{T}{1 + kg(\varepsilon)} \quad (\text{I-38})$$

Avec :

$$g(\varepsilon) = \varepsilon + 0.40244\varepsilon^{3/4} + 3.4008\varepsilon^{1/6} \quad (\text{I-39})$$

et

$$k = \frac{Z_1^{2/3} Z_2^{1/2} \left(1 + \frac{M_2}{M_1}\right)^{3/2}}{12.6 \left(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}\right)^{3/4} M_2^{1/2}} \quad (\text{I-40})$$

L'énergie de déplacement E_d est caractéristique du matériau. A titre d'exemple, nous donnons dans le tableau (I-2) les valeurs de E_d [18] pour les milieux utilisés dans ce travail.

| Cible | Cu | Ag | Au |
|------------|----|----|----|
| E_d (eV) | 19 | 25 | 36 |

Tableau (I-2) : *L'énergie seuil de déplacement d'un atome cible.*

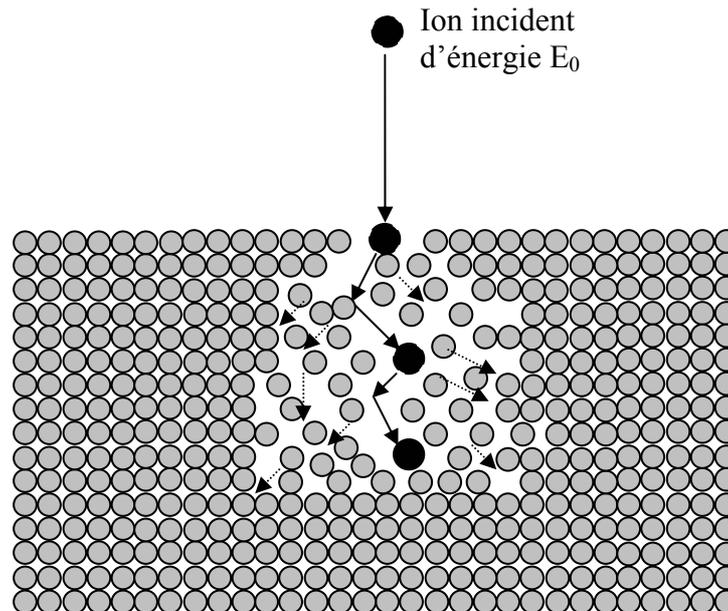


Figure I-3 : *Cascades de collisions induites par un ion atomique [19].*

Le nombre total d'atomes ainsi déplacés $N_p(E_0)$ est donné par la relation [20]:

$$N_p(E_0) = \int_0^{E_0} \frac{dE}{S(E)} \int_{T_{\min}}^{T_M} N_d(T) \frac{d\sigma(E,T)}{dT} dT \quad (\text{I-41})$$

où T_{\min} correspond à l'énergie E_d et T_M est donnée par l'éq.(I-3).

$S(E)$ est la section efficace totale d'arrêt donnée par :

$$S(E) = S_n(E) + S_e(E) \quad (\text{I-42})$$

$S_n(E)$ et $S_e(E)$ désignant respectivement les sections efficaces d'arrêt nucléaire et électronique et

$\frac{d\sigma(E,T)}{dT}$, la section efficace différentielle de collision élastique et $N_d(T)$, le nombre de PKA (éq.

I-37).

Chapitre II :

**Modèles théoriques de
sputtering**

Modèles théoriques de sputtering

II.1. Introduction :

Afin d'expliquer des résultats expérimentaux sur le sputtering induit par des ions atomiques plusieurs modèles théoriques ont été proposés. Ces modèles sont basés sur différents concepts : cascades linéaires de collisions, thermal spike (pointe thermique, ondes de chocs etc...

Dans ce chapitre, nous allons donner, un aperçu sur les modèles les plus utilisés, et nous présenterons en détails les modèles utilisés dans notre travail à savoir les modèles de cascades linéaires et de thermal spike (pointe thermique).

II.2. Modèle collisionnel :

Le modèle de collisions linéaires a été essentiellement développé pour le cas d'ions incidents d'énergie de l'ordre du keV correspondant à des vitesses inférieures à la vitesse de Bohr. Dans ces conditions l'ion incident dépose essentiellement son énergie par collisions élastiques avec les atomes cibles ; ainsi, ce dépôt est caractérisé par le pouvoir d'arrêt nucléaire. En effet, au fur et à mesure que l'ion projectile pénètre dans le milieu, il déplace le long de sa trajectoire des atomes primaires PKA (Primary Knock-On Atoms) en leur transférant une énergie T . Ces derniers peuvent déplacer à leur tour d'autres atomes, ainsi plusieurs générations peuvent être mises en mouvement. L'ensemble de ces atomes constitue ce qu'on appelle « une cascade collisionnelle ».

Compte tenu des transferts d'énergie lors d'une collision élastique, l'atome frappé est rarement éjecté directement lors de la collision (sauf en incidence rasante).

Plus généralement, cet atome subit une ou plusieurs collisions avant d'être éjecté. Le développement de la cascade lors de ces collisions multiples est responsable de l'éjection d'un nombre d'atomes plus ou moins grand. Le nombre d'atomes éjectés par ion incident est appelé **rendement de sputtering Y** .

Nous pouvons distinguer comme le montre le schéma II.1 trois régimes de collisions: le régime de **collision simple**, le régime de **cascade linéaire** et le régime de **pointe**. Les régimes de collision simple et de cascades linéaires appartiennent au domaine linéaire de la pulvérisation et le régime de pointe relève du domaine non-linéaire de la pulvérisation nucléaire.

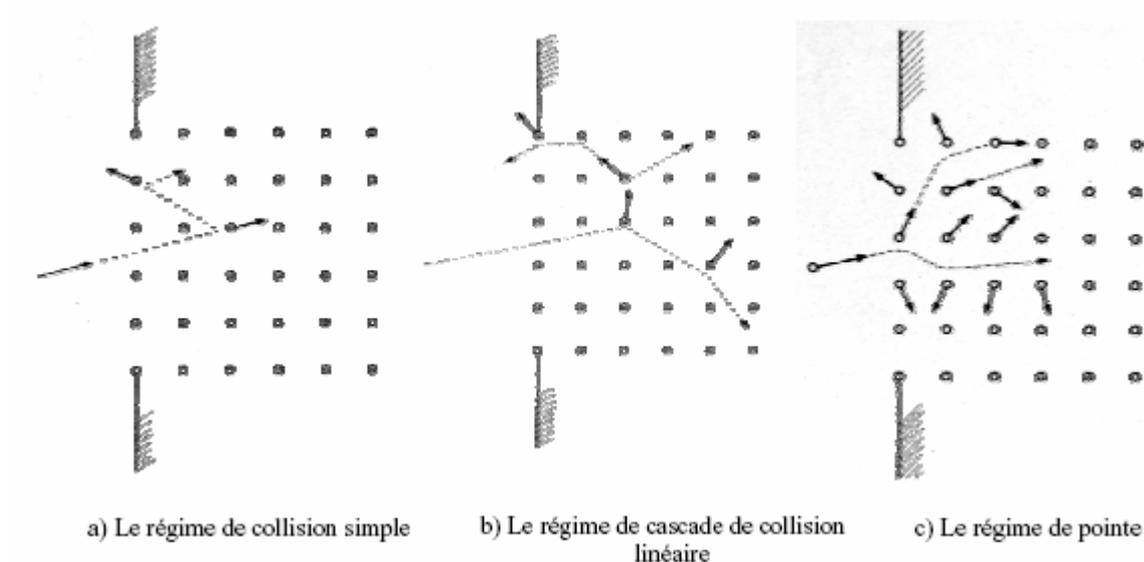


Figure II.1 : les trois régimes de sputtering nucléaire [21].

-Le régime de collisions simples est caractérisé par un faible nombre d'atomes pulvérisés, il concerne des ions légers, comme par exemple pour des ions incidents H, He de basses énergies pour lesquels l'énergie moyenne transmise au PKA est trop faible pour que se développe une cascade de collision.

-Cependant dans le régime des cascades linéaires l'énergie transmise aux PKA est suffisante pour produire des cascades. Dans ce régime, les cascades sont supposées être indépendantes autrement dit pas de chevauchement entre elles, ce qui justifie l'appellation « cascades linéaires ».

Dans ces conditions, la phase de collision peut être décrite dans le cadre de la théorie de transport. Ce qui constitue la base de la théorie des cascades de collisions linéaires de P.Sigmund [7,21]. Selon cette théorie, les mécanismes de sputtering peuvent se décomposer en trois processus :

- 1) le ralentissement et la dissipation de l'énergie de l'ion
- 2) le développement de la cascade elle-même
- 3) le passage des atomes de la cascade de collision à la surface, qui deviennent alors des particules pulvérisées.

Les sections efficaces différentielles de transfert d'énergie et les pouvoirs d'arrêt pour les collisions élastiques sont données par Lindhard [3]. Sigmund approxime les sections efficaces de Thomas-Fermi par une loi sous forme de puissances de E. Les sections efficaces différentielles dépendent

alors d'un coefficient m (compris entre 0 et 1) et d'une variable C_m qui dépend de λ_m qui elle-même est variable sans dimension. Suivant la région en énergie dans laquelle on se trouve, m et λ_m auront des valeurs différentes, comme c'est mentionné dans le **tableau I.1**.

Dans l'expression du rendement de sputtering, c'est la section efficace du pouvoir d'arrêt nucléaire $S_n(E)$ qui est employée. Elle s'écrit sous la forme :

$$S_n(E) = \int_0^E T d\sigma = \frac{C_m \gamma^{1-m} E^{(1-2m)}}{1-m} \quad (\text{II-1})$$

avec $d\sigma$ donné par l'équation (I-13)

La perte d'énergie d'une particule en mouvement est :

$$\left. \frac{dE}{dx} \right| = -N_a S(E) \quad (\text{II-2})$$

Le rendement de sputtering selon la théorie des cascades linéaires de Sigmund est défini par la relation :

$$Y = \Lambda F'_D \quad (\text{II-3})$$

Avec
$$\Lambda = \frac{\Gamma_m}{8(1-2m)} \frac{1}{N_a C_m U_s^{1-2m}} \quad (\text{II-4})$$

Et Γ_m est un paramètre défini dans [18] comme étant :

$$\Gamma_m = \frac{m}{\varphi(1) - \varphi(1-m)} \quad (\text{II-5})$$

tel que :
$$\varphi(x) = \frac{d[\log \Gamma(x)]}{dx} \quad (\text{II-6})$$

Pour $m=0$ l'expression de Λ :

$$\Lambda = \frac{3}{4\pi^2} \frac{1}{N_a C_0 U_s} \quad (\text{II-7})$$

avec
$$C_0 = \frac{\pi}{2} \lambda_0 a^2 \quad (\text{II-8})$$

où $\lambda_0 = 24$ [22], $a = 0.219 \text{ \AA}$: étant la distance interatomique de Born-Mayer [22].

N_a : est la densité atomique de la cible, U_s : est l'énergie de surface.

Le facteur F'_D dans la relation (II-3) représente la densité d'énergie déposée [18], défini par :

$$F'_D = \alpha N_a S_n(E) \quad (\text{II-9})$$

où α est une fonction du rapport de la masses m_2/m_1 entre la masse de la cible et celle du projectile.

Cependant, la dépendance de α des propriétés du système n'était pas très bien explicitée dans la théorie de Sigmund, c'est pour quoi ce paramètre a fait l'objet de plusieurs travaux [23-27], Nous avons utilisé dans notre travail la relation de Matsunami et al. [25] donnée par :

$$\alpha = \left(0.08 + 0.164 \left(\frac{m_2}{m_1} \right)^{0.4} + 0.0145 \left(\frac{m_2}{m_1} \right)^{1.29} \right) Q, \quad (\text{II-10})$$

où Q : est un facteur tabulé dépendant de la cible [25]

Selon la théorie des cascades linéaire [28,29] le rendement d'émission directe Y_{lin} est, donc donné par :

$$Y_{lin} = \frac{3}{2\pi^3} F_D' \frac{1}{N_a \lambda_0 a^2 U_s} \quad (\text{II-11})$$

Contrairement au régime des cascades linéaires, mentionnées précédemment, le troisième régime (le régime de pointe) concerne les fortes densités d'énergie transmises aux atomes cibles ce qui implique que tous les atomes dans le volume déplacé sont en mouvement. Dans ce cas les cascades interfèrent les une avec les autres, induisant des effets non linéaires, qui sont décrits par ce qu'on appelle la pointe thermique ou thermal spike.

II.3. modèles de thermal spike :

Lorsque les atomes déplacés arrivent à la fin de leurs parcours avec une énergie inférieure ou égale à E_d , ils partagent leur énergie avec les atomes voisins. Ainsi, l'énergie partagée est convertie en énergie thermique (chaleur). Après un temps caractéristique d'environ 10^{-12} s temps de relaxation, un équilibre dynamique peut être atteint dans une région où la distribution d'énergie tend vers une distribution de Maxwell-Boltzmann. Ceci est connu sous le nom de pointe thermique ou « thermal spike ».

Dans le cas où la densité des atomes déplacés est assez grande, une région de chevauchement de cascades peut être produite. Par conséquent, presque toutes les cascades participent à la formation de la pointe thermique. La création de cette dernière peut provoquer un changement de phase vers l'état liquide (fusion) ou l'état gazeux (sublimation) à cause de l'élévation de la température locale. Pour des vitesses qui suivent la distribution de Maxwell-Boltzmann, la température T_{ts} est reliée

à la densité d'énergie moyenne $\bar{\theta}_D$:

$$\bar{\theta}_D = \frac{3}{2} k_B T_{ts} \quad (\text{II-12})$$

$\bar{\theta}_D$ est aussi donnée par [21] :

$$\bar{\theta}_D = \frac{0.32\nu(E_0)}{N_a V} \quad (\text{II-13})$$

où N_a et V sont respectivement la densité atomique du solide et le volume de la pointe thermique, $\nu(E_0)$ étant l'énergie totale d'endommagement qui peut être calculée à partir de la relation (I-42), en remplaçant le nombre moyen d'atomes déplacés $N_d(T)$ par $\nu(T)$ (éq.I-38), soit :

$$\nu(E_0) = \int_0^{E_0} \frac{dE}{S(E)} \int_{T_{\min}}^{T_M} \nu(T) \frac{d\sigma(E, T)}{dT} dT \quad (\text{II-14})$$

En effet, lors de l'impact d'un ion projectile, l'énergie est déposée localement dans un certain volume dans le quel tous les atomes sont en mouvement. Ceci conduit à une distribution de l'énergie cinétique des atomes ce qui se traduit par une élévation de température. L'évolution de la température le long de la trajectoire va dépendre de la quantité d'énergie déposée, et de son extension spatiale. Suite à l'élévation brutale de température au niveau de la surface, le matériau peut émettre des particules suivant les deux mécanismes illustrés dans les **figureII-2(a,b)**.

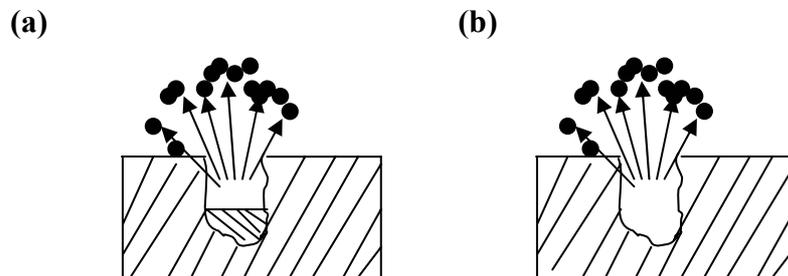


Figure II-2 : schéma des mécanismes de sputtering par pointe thermique
(a)sputtering par évaporation thermique **(b)** par flux gazeux

Le premier processus est une **évaporation thermique** : dans ce cas, les atomes sont émis **un à un** suite à un mouvement individuel à partir de la surface de façon indépendante. Le second mécanisme correspond à une évaporation par **flux gazeux**. En effet, la zone de la cible où l'énergie est déposée se vaporise instantanément et les particules sont émises **en une seule fois** suite à un mouvement collectif. Nous allons dans un premier temps décrire le mécanisme du sputtering par évaporation puis le sputtering par flux gazeux.

II-3-1 : Sputtering par évaporation thermique :

Le modèle standard le plus utilisé de l'évaporation à partir du TS est le modèle de Sigmund et Claussen [30]. En réalité, la température dans le thermal spike dépend aussi bien de l'espace que du temps. Et son profil suppose une géométrie bien précise.

Quatre hypothèses essentielles sont à respecter dans le modèle de pulvérisation activée thermiquement:

- l'équilibre thermique local
- la conduction de la chaleur
- le flux d'éjection déterminé uniquement par la température.
- une géométrie cylindrique du volume déplacé.

Le profil de la température est obtenu à partir de l'équation de conduction de la chaleur. Cette équation s'écrit :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \kappa(T) \frac{\partial T}{\partial r} \right) = C(T) \frac{\partial T}{\partial t} \quad (\text{II-15})$$

Dans cette équation $\kappa(T)$ représente la conductivité thermique et $C(T)$ la chaleur spécifique de la cible. Tel que la diffusivité thermique est donnée par :

$$\kappa = \frac{25}{48} \frac{1}{N \lambda_0 a^2} \left(\frac{kT}{\pi M} \right)^{1/2}$$

D'autre part la résolution de cette équation est basée sur la normalisation suivante :

$$\frac{3}{2} Nk \int d^2 \rho T(\rho, t) = F'_D \quad (\text{II-16})$$

où ρ est le rayon du volume cylindrique du TS. Et F'_D définie dans l'équation II-9.

Ce qui donne le profil:

$$T(\rho, t) = t^{-2/3} \left[A - \rho^2 / (12 \chi t^{2/3}) \right]^2 \quad (\text{II-17})$$

avec

$$\chi = \kappa T^{-1/2} \quad (\text{II-18})$$

et
$$A = \left(F'_D / 6\pi\chi Nk_B \right)^{1/3} \quad (\text{II-19})$$

où k_B : est la constante de Boltzmann.

Un profil de température Gaussien de température à la surface est utilisé pour calculer la probabilité qu'un atome ait une énergie plus grande que l'énergie de liaison de surface, U_s .

De cette façon, le flux de particules pulvérisées, ϕ , dépend uniquement de la température locale.

Le rendement Y_{TS} dû au thermal spike est décrit par la relation :

$$Y_{TS} = \int dt \int \pi d^2 \rho \phi(T(\rho, t)), \quad (\text{II-20})$$

où $\phi(T)$ est le taux de particules évaporées à partir de la surface sous une température T_0 considérée à la surface, en considérant un gaz idéal soumis à une barrière de potentiel de surface U_s , donné par :

$$\phi(T_0) = N_a \left(\frac{k_B T_0}{2\pi m} \right)^{1/2} \exp\left(-\frac{U_s}{k_B T_0} \right) \quad (\text{II-21})$$

m : la masse de la particule éjectée.

Donc le rendement dû au TS de vient :

$$Y_{TS} = 0.036 \left(\frac{\lambda_0 a^2 F_D'^2}{U_s^2} \right) g \left(\frac{U_s}{kT_0} \right) \quad (\text{II-22})$$

où :

$$\frac{U_s}{kT_0} = \frac{U_s}{\alpha S_n} 2\pi N \langle \rho^2 \rangle \quad (\text{II-23})$$

$\langle \rho^2 \rangle$ est le carré moyen du rayon du volume du TS. $\langle \rho^2 \rangle$ est le paramètre libre du modèle.
avec :

$$g(\xi) = (1 + \xi - \xi^2) \exp(-\xi) + \xi^3 \int_{\xi}^{\infty} \frac{e^{-x}}{x} dx \quad (\text{II-24})$$

Cette fonction est approximée à :

$$g(\xi) = 3e^{-\xi} \quad (\text{II-25})$$

Ce modèle prévoit une dépendance quadratique du rendement de pulvérisation en fonction du dépôt d'énergie.

II-3-2: Sputtering par flux gazeux:

Le sputtering par flux gazeux fait référence à un processus au cours duquel l'énergie déposée localement entraîne une transition brutale d'une zone de la cible (solide ou liquide) en phase gazeuse ; après quoi, les particules sont éjectées sous forme gazeuse. Ce mécanisme d'émission est parfois appelé pulvérisation par phase explosive.

Dans le cas du modèle de flux gazeux, la densité d'énergie déposée dans un volume du matériau cible est si grande que le volume ou des parties de ce dernier, ayant une densité d'énergie élevée, peuvent être amenés au-dessus du **point critique** (T_c, P_c), de la transition de phase.

Dans le cas du modèle de flux gazeux, une partie du matériau cible solide a reçu assez d'énergie pour se trouver au-dessus du point critique ; ainsi, cette partie passe directement de la phase solide à la phase gazeuse. Comme, dans la partie du matériau cible se trouvant au-dessus du point critique, la phase solide ne peut être distinguée de la phase gazeuse, le concept de barrière de surface n'existe donc pas dans ce modèle contrairement au modèle d'évaporation thermique.

De nombreuses approches ont été utilisées pour modéliser les processus de pulvérisation par flux gazeux, par exemple :

- 1) J. Sunner et collaborateurs [31] ont utilisé un modèle thermodynamique simple.
- 2) Urbassek & Waldeer [32] ont eu recours à des simulations de dynamique moléculaire.
- 3) D.E. David et collaborateurs [33] , Urbassek & Michl [34] et R. Kelly [35] ont utilisé des descriptions analytiques de l'expansion adiabatique.

En résumé, le sputtering par pointe thermique, induite par une élévation très localisée de la température, a été principalement interprété soit en terme d'évaporation, soit en terme de flux gazeux. Pour ce qui est de l'évaporation, les particules étant éjectées une à une, le processus de sputtering des particules est un **processus individuel**. Concernant le modèle de flux gazeux, le processus d'éjection des particules est un **processus collectif** puisque les particules sont pulvérisées en une seule fois suite à une transition de phase brutale.

Il faut noter que dans les deux cas il existe une énergie minimale de sputtering liée à :

-à la barrière de surface U_s , du modèle individuel.

-à la température de condensation T_c , du modèle collectif.

Ainsi, une dépendance du rendement de sputtering en fonction du pouvoir d'arrêt sera:

-en $\left(\frac{dE}{dx}\right)^n$ avec $n=1$ ou 2 avec le modèle individuel.

-en $\left(\frac{dE}{dx}\right)^3$ avec le modèle collectif.

Les deux modèles prévoient une dépendance angulaire du rendement de pulvérisation en $(\cos \theta)$, Dans le cas du modèle collectif, de H.M. Urbassek [34] et R.Kelly [35], les auteurs prédisent une évolution en $(\cos \theta)^n$, avec $n>1$.

II-4 - Modèles de sputtering par choc :

D'après M.J. Guinan [36], l'énergie se dissipe plus probablement par un mécanisme hydrodynamique que par un mécanisme thermique. Contrairement aux modèles de pulvérisation par pointe thermique (évaporation ou flux gazeux), les modèles de pulvérisation par choc correspondent à une réponse du continuum du matériau cible excité.

Ainsi, la pulvérisation par choc se caractérise soit par son caractère indirect, soit par le mouvement collectif induit à distance. Les modèles de pulvérisation par choc ne traitent donc pas uniquement l'émission de particules comme un processus diffusif mais également comme un processus collectif.

Avec ces modèles, le sputtering n'est pas seulement attribuée à la densité d'énergie mais aussi au gradient de densité d'énergie impliquant l'action **d'une contrainte dans le cas du modèle d'onde de choc** ou **d'une force dans le cas du modèle d'impulsion de pression**, s'exerçant sur les atomes du matériau cible.

-Le modèle de sputtering par impulsion de pression est basé sur le concept qu'une force qui peut être induite par la modification locale de la densité d'énergie et conduit alors à une émission dirigée. Dans le cas d'ions incidents d'énergie de l'ordre du MeV sur des cibles organiques.

-Une onde de choc est une perturbation mécanique relativement étroite au travers de laquelle des changements significatifs des paramètres thermodynamiques ont lieu tel que : la pression, la température et la densité du matériau. Le terme « étroite » utilisé signifie que la largeur de l'onde de choc n'est pas plus grande que quelques distances interatomiques. Cette dernière se propage elle-même avec une vitesse supérieure à celle du son dans le milieu.

En effet, dans le cas du bombardement d'une cible isolante par des ions lourds rapides, le fort taux d'ionisation dans le sillage de l'ion lourd projectile dans la cible conduit à un transfert d'énergie cinétique via une explosion coulombienne collective, assimilable à une onde de choc. La brusque dissipation de l'énergie déposée par l'ion projectile au coeur de la trace serait à l'origine de cette onde de choc. Ainsi, la création de traces et la pulvérisation peuvent résulter de la création et de la propagation de cette onde.



Figure II-3: représentation des différentes étapes de la pulvérisation par onde de choc [37]

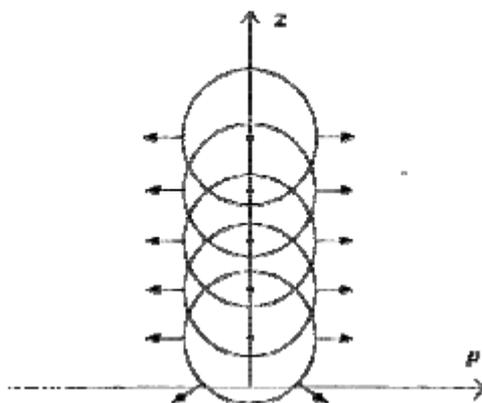


Figure II-4 : l'éjection de particules du matériau cible résulte de l'expansion induite par les impulsions radiales tout le long de la trace

Les modèles de sputtering par onde de choc et par impulsion de pression sont tous deux des modèles collectifs et mettent en évidence l'existence d'un seuil de pulvérisation lié à la barrière de surface U_s . Cependant, la différence entre ces deux modèles réside dans les caractéristiques des processus d'excitation propres à chaque modèle, et non pas dans les mécanismes d'émission.

II.5. Modèles semi empiriques:

En 1984, un groupe de recherche of The Institute of Plasma Physics, Negoya University, a publié une compilation des rendements expérimentaux de sputtering et avait proposé une formule semi empirique qui prédit la dépendance en énergie du rendement de toute combinaison projectile-cible [25]. Depuis, plusieurs travaux [38,39] basés sur la formule de Bohdansky [40] ont été faits, cette formule donne la rendement de sputtering sous la forme suivante :

$$Y(E) = Q s_n(\varepsilon) \left[1 - \left(\frac{E_{th}}{E} \right)^{2/3} \right] \left[1 - \left(\frac{E_{th}}{E} \right) \right]^2 \quad (II-26)$$

où : E est l'énergie du projectile, $s_n(\varepsilon)$: la section efficace d'arrêt nucléaire et ε l'énergie réduite. Q et E_{th} sont des paramètres ajustables.

Yamamura et al. [27] proposaient une formule semi empirique qui tient compte à la fois des collisions élastique et inélastique dans le cas d'incidence normale. Ce modèle semi empirique est connu sous le nom de ACAT.

Le rendement total sous une incidence normale $Y(E)$ [27]:

$$Y(E) = 0.042 \frac{Q \alpha^* \left(\frac{m_2}{m_1} \right)}{U_s} \frac{S_n(E)}{1 + \Gamma k_e \varepsilon^{0.3}} \left[1 - \left(\frac{E_{th}}{E} \right) \right]^S \quad (II-27)$$

Le coefficient d'arrêt électronique k_e de Lindhard est définie par :

Où : $m_{1,2}$ sont les masses du projectile et la cible respectivement.

$$k_e = 0.079 \frac{(m_1 + m_2)^{3/2}}{m_1^{3/2} m_2^{1/2}} \frac{Z_1^{3/2} Z_2^{1/2}}{\left(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3} \right)^{3/4}} \quad (II-28)$$

$$S_n(E) = 84.78 \frac{m_1}{m_1 + m_2} \frac{Z_1 Z_2}{\left(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3} \right)^{1/2}} s_n^{TF}(\varepsilon) \quad (II-29)$$

$$\text{où } s_n^{TF}(\varepsilon) = \frac{3.441 \sqrt{\varepsilon} \ln(\varepsilon + 2.718)}{1 + 6.355 \sqrt{\varepsilon} + \varepsilon (6.882 \sqrt{\varepsilon} - 1.708)} \quad (II-30)$$

$$\text{avec } \varepsilon = \frac{0.03255}{Z_1 Z_2 \left(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3} \right)^{1/2}} \frac{m_2}{m_1 + m_2} E(eV) \quad (II-31)$$

Le facteur Γ dans l'éq. (II-27) est donné par :

$$\Gamma = \frac{W}{1 + \left(\frac{m_1}{7}\right)^3} \quad (\text{II-32})$$

Q et W sont des paramètres ajustables [27].

Le fit des valeurs de α^* en fonction du rapport des masses donne [27] :

$$\begin{cases} \alpha^* = 0.249 \left(\frac{m_2}{m_1}\right)^{0.56} + 0.0035 \left(\frac{m_2}{m_1}\right)^{1.5} & m_1 \geq m_2 \\ \alpha^* = 0.088 \left(\frac{m_2}{m_1}\right)^{-0.15} + 0.165 \left(\frac{m_2}{m_1}\right) & m_1 \leq m_2 \end{cases} \quad (\text{II-33})$$

En ce qui concerne l'énergie seuil le meilleur ajustement conduit à :

$$\begin{cases} \frac{E_{th}}{U_s} = \frac{6.7}{\gamma} & m_1 \geq m_2 \\ \frac{E_{th}}{U_s} = \frac{1 + 5.7 \frac{m_1}{m_2}}{\gamma} & m_1 \leq m_2 \end{cases} \quad (\text{II-34})$$

où γ est le facteur de transfert d'énergie lors d'une collision élastique (voir éq.I-3).

Actuellement cette formule est la plus utilisée [41] pour reproduire le rendement de sputtering par une cible et un projectile donnés. De plus en ce qui concerne les projectile légers, la formule de la réf.[42] permet d'avoir le rendement, cette fois, en fonction des énergies des ions émis.

Les modèles existants sont insuffisants pour décrire le mécanisme d'émission ce qui a stimulé l'utilisation de la simulation par dynamique moléculaire comme technique pour accéder à d'autres informations complémentaires qui ne sont pas donnés par les modèles analytiques. Notamment en ce qui concerne l'analyse des particules (atomes et agrégats) neutres soumises à une post-ionisation par laser ou par des électrons.

II.6. Simulation par dynamique moléculaire :

Une description bien adaptée est donnée par

Selon la réf. [43] ; l'évolution temporelle du système (projectile + cible) peut-être déterminée en résolvant les équations du mouvement de Newton et en prenant en compte les forces d'interaction entre toutes les particules [44]. Les paramètres d'entrée sont les positions et les vitesses initiales du projectile et de tous les atomes de la cible ; la plupart du temps, on supposera que le réseau a une structure régulière [45].

Les techniques de simulation de dynamiques moléculaires, utilisées pour modéliser l'interaction atome - surface, sont plus appropriées pour les collisions à faibles énergies, car dans ce cas-là, l'énergie est partagée entre plusieurs particules et l'approximation des collisions binaires n'est plus valable [46]. Les inconvénients de ces codes sont qu'ils nécessitent des temps de calculs très longs et qu'une bonne statistique ne peut être atteinte qu'à faible énergie [47].

Chapitre III :
Emission secondaire
métallique sous l'impact d'ions
atomiques

Emission secondaire métallique sous l'impact d'ions atomiques

Ce chapitre est composé de deux parties; la première concerne la correction apportée au modèle de thermal spike. Dans la seconde partie, nous présentons les rendements de sputtering à partir de différentes cibles, sous l'impact de différents ions atomiques en utilisant le modèle CL et le TS corrigé.

III.1.INTRODUCTION:

Le sputtering est le résultat du dépôt d'énergie dans le matériau par le projectile. Cette énergie déposée est convertie :

- en mouvement d'atomes jusqu'à l'éjection de certains d'entre eux (l'émission directe ou linéaire) [28,29] à partir de la surface.
- en chaleur suite aux collisions multiples entre les cascades d'atomes déplacés, ce qui conduit à la formation du thermal spike (TS) (une pointe thermique) [30]. Des particules peuvent être émises sous forme de flux d'évaporation à partir de ce TS.

Par conséquent les deux mécanisme d'émission (directe et T.S.) contribuent au rendement mesuré expérimentalement [48]. Ce dernier est influencé par plusieurs paramètres, comme : L'énergie incidente, le type d'ion primaire, la cible et l'angle d'incidence...etc. c'est pour quoi le rendement est utilisé comme sonde de l'interaction ion-matière.

Le sputtering a été constaté pour la première fois en 1852 par Grove [49], et depuis ce phénomène a fait l'objet de plusieurs expériences dans le but de comprendre les processus de sputtering. En effet, la compréhension du mécanisme permet de mieux orienter ses applications. On peut citer par exemple la désorption de molécules d'intérêt biomédical (virus) à partir de surfaces organiques sous l'impact d'ions à fin d'étudier sa structure, son influence par des agents physico-chimiques. D'autres applications peuvent être mentionnées notamment en physique du solide, en astrophysique, en environnement...etc.

Les approches théoriques développées pour interpréter l'observation expérimentale sont basées principalement sur deux concepts différents ; à savoir les collisions binaires élastiques entre atomes, décrites par la théorie des cascades [28,29], ce qui représente la composante du rendement linéaire. Le modèle de la pointe thermique quant à lui décrit le sputtering sous forme de flux de particules évaporées [30]. Ainsi, le rendement total est considéré comme formé de deux composantes correspondantes à l'émission directe ou linéaire et à l'évaporation du TS [48].

$$Y_{tot} = Y_{lin} + Y_{TS}$$

Le rendement expérimental de l'Ag sous l'impact d'ions Sb^+ , sous une incidence normale, a été analysé par Sigmund et Claussen [30] dans le cadre d'un modèle de TS développé par ces auteurs. Bouneau et al.[50] ont aussi appliqué ce modèle TS pour interpréter le rendement de l'Au bombardé par des ions Au^+ en considérant le paramètre libre du modèle comme variable avec l'énergie incidente. Cependant dans les deux cas l'accord avec l'expérience n'était pas satisfaisant, ce qui nous a motivé à reprendre cette analyse.

III.2.PROCEDURE D'ANALYSE :

De prime abord, nous allons rappeler les définitions du rendement selon les modèles standards qui traitent le sputtering à savoir : la théorie des cascades linéaire de Sigmund [28,29] et l'évaporation dû au thermal spike [30].

III.2.1- Rendement total de l'émission secondaire sous l'impact d'ions atomiques :

Sur le plan analytique selon la théorie des cascades linéaires [28,29] le rendement d'émission directe (le paragraphe II.2) est donné par l'éq.II-11 :

$$Y_{lin} = \frac{3}{2\pi^3} F_D' \frac{1}{N\lambda_0 a^2 U_s}$$

En ce qui concerne le modèle standard le plus utilisé de l'évaporation à partir du TS (voir le paragraphe II.2) [30] le rendement Y_{TS} est décrit par la relation (II-22) :

$$Y_{TS} = 0.036 \left(\frac{\lambda_0 a^2 F_D'^2}{U_s^2} \right) g \left(\frac{U_s}{kT_0} \right)$$

Donc le rendement total est donné par :

$$Y_{tot} = \frac{3}{2\pi^3} F'_D \frac{1}{N\lambda_0 a^2 U_s} + 0.036 \left(\frac{\lambda_0 a^2 F'_D}{U_s} \right) g \left(\frac{U_s}{kT_0} \right) \quad (\text{III-1})$$

D'autre part le rendement de sputtering peut être prédit en utilisant une formule semi empirique établit par Yamamura et al.[27] suite à une compilation des données expérimentales existantes dans le cas de cibles métallique sous l'impact d'ions atomiques sous une incidence normale, l'éq.(II-27) :

$$Y(E) = 0.042 \frac{Q\alpha^* \left(\frac{m_2}{m_1} \right)}{U_s} \frac{S_n(E)}{1 + \Gamma k_e \varepsilon^{0.3}} \left[1 - \left(\frac{E_{th}}{E} \right) \right]^s$$

III.2.2. Analyse- Insuffisance des modèles :

Dans cette analyse, nous avons utilisé la théorie des cascades pour calculer le rendement linéaire, ainsi que le modèle de la pointe thermique pour obtenir le rendement de l'évaporation thermique. Nous avons remarqué, que l'utilisation du modèle standard du TS ne permet pas de reproduire de façon satisfaisante le rendement expérimental. Pour cela nous avons étudié l'origine de cette insuffisance du modèle ce qui nous a conduit à introduire une correction qui tient compte des propriétés thermodynamiques de la cible, comme nous allons le montrer dans ce qui suit.

Le modèle de TS a été établis à l'origine par P.Sigmund et C. Claussen, pour reproduire le rendement expérimental total de sputtering de l'Ag sous l'impact d'ions Sb^+ d'énergie [10 à 70 keV] de la Réf. [51] en supposant constant le carré moyen du paramètre libre du modèle $\langle \rho^2 \rangle = 240 \text{ \AA}^2$, correspondant au carré moyen du stragglng latéral des cascades de collision, et en considérant les deux contributions : linéaire et T.S. Autrement dit $Y_{tot} = Y_{lin} + Y_{TS}$ (Il faut rappeler que la somme des contributions a été faite pour la première fois par M.Szymonski and A.E.DeVries [48])

Cependant ceci n'a pas conduit à un bon accord avec l'expérience comme le montre la fig.III-1.

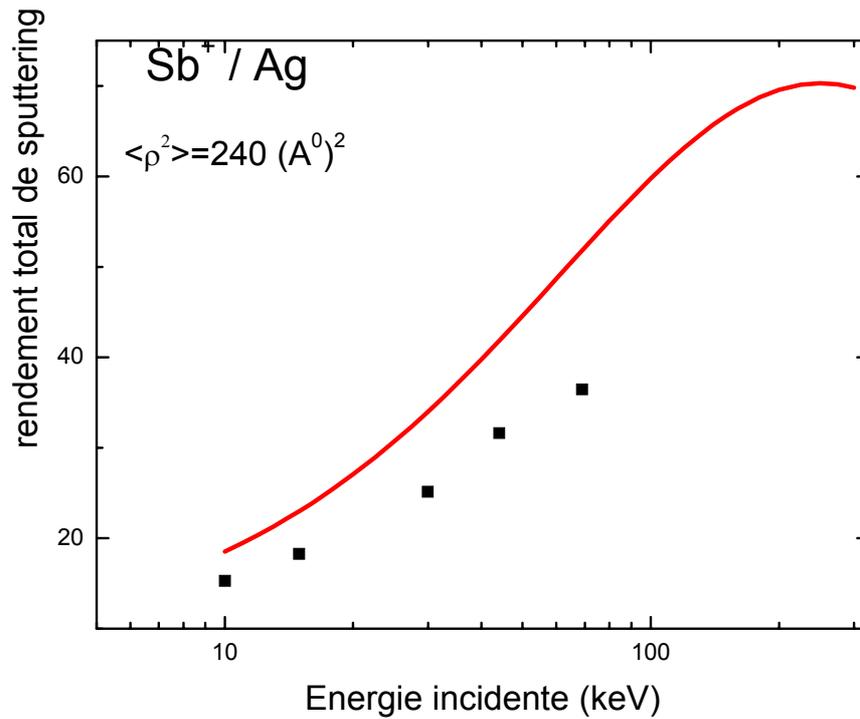


Figure III-1 : Rendement de sputtering à partir d'une cible d'Ag sous l'impact d'ions Sb^+ . Les carrés pleins sont les points expérimentaux de la Réf. [51]. La courbe continue est le rendement

total de l'éq.(III-1) avec $\langle \rho^2 \rangle = 240 A^0^2$ en utilisant l'éq.II-10.

D'autre part, à fin d'interpréter leurs expérience d'émission totale d'une cible d'or sous l'impact d'ions Au^+ d'énergie comprise entre 33keV et 2.8MeV, les auteurs de la réf.[50] avaient supposé que seul le thermal spike contribuait à l'émission. Pour cela ils avaient considéré que le paramètre libre du modèle $\langle \rho^2 \rangle$ variait avec l'énergie incidente. Cette variation a été obtenue en cherchant à reproduire le rendement expérimental total, ce qui a conduit à :

$$\langle \rho^2_0 \rangle = 50(E)^{1/3} \quad \text{(III-2)}$$

où : E est l'énergie incidente du projectile.

Cependant cette variation de $\langle \rho^2_0 \rangle$ n'a pas permis de reproduire le rendement expérimental comme nous pouvons le voir sur la figure III-2, de plus nous constatons un décalage par rapport aux points expérimentaux.

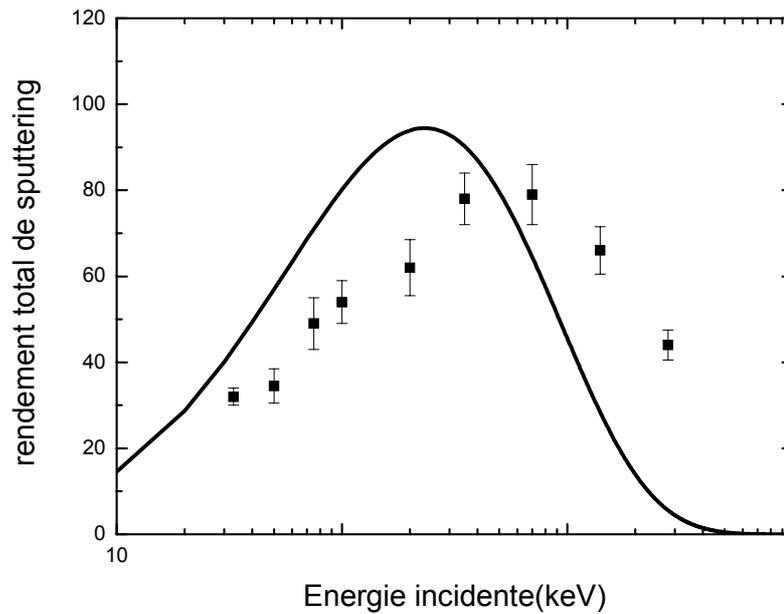


Figure III-2: Rendement de sputtering à partir d'une cible d' Au sous l'impact d'ions Au^+ . Les carré pleins sont les points expérimentaux de la Réf.[50]. La courbe continue est le rendement thermique de l'éq. (II-22) en considérant (III-2).

Le désaccord observé aussi bien dans cas de la figure III-1 de Sigmund et al. [30] que dans le cas de Bouneau et al.[50], peut être dû :

- soit à l'approximation de la fonction $g(\xi)$ dans l'expression (II-24).
- soit à l'absence d'un certain paramètre dont le modèle de TS ne tient pas compte.

Nous avons par conséquent étudié les deux possibilités précédentes. Le paragraphe suivant démontre, en effet, comment nous avons remédié à ce problème.

III.3.Résultats et Discussion :

A fin d'obtenir un bon accord entre le rendement calculé et l'expérience nous avons procédé à l'étude de l'origine du désaccord

III.3.1- la fonction $g(\xi)$:

Nous avons procédé au calcul numérique de la fonction g , en considérant l'équation (II-24).

Nous constatons sur les figures III-3 et III-4 que l'effet de l'approximation de g est bien mis en évidence et que cette approximation conduit à une sur estimation du rendement par rapport au rendement utilisant le calcul numérique de g .

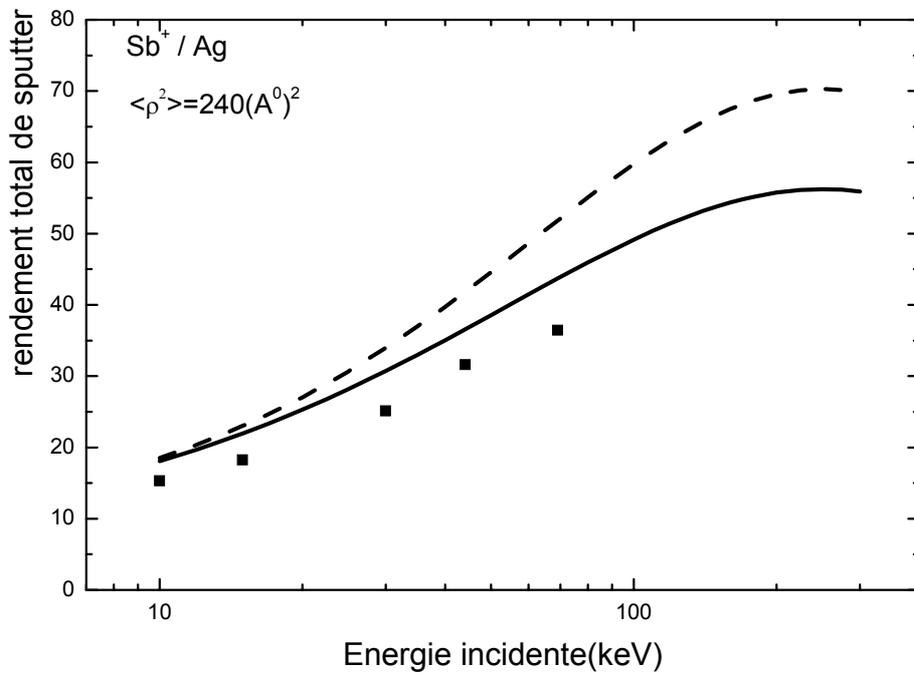


Figure III-3 Rendement de sputtering à partir d'une cible d'Ag sous l'impact d'ions Sb^+ . Les carrés pleins sont les points expérimentaux de la Réf.[51]. Le calcul du rendement total de l'éq.(III-1) $\langle \rho^2 \rangle = 240 A^0^2$. En pointillé en utilisent l'approximation $g(\xi) = 3e^{-\xi}$, et en continu utilisent le calcul numérique de $g(\xi)$

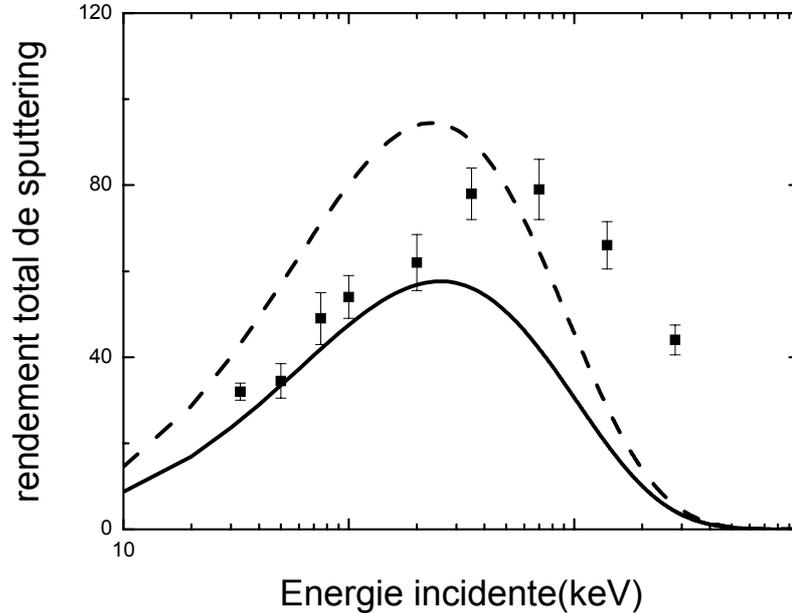


Figure III-4 : Rendement de sputtering à partir d'une cible d'Au sous l'impact d'ions Au^+ . Les carrés pleins sont les points expérimentaux de la Réf. [50]. Le calcul de Yts de l'éq.II-19 en utilisant éq.III-5 ,en pointillé avec l'approximation $g(\xi) = 3e^{-\xi}$, et en continu avec le calcul numérique de $g(\xi)$.

Bien que le calcul numériquement de la fonction g à partir de la relation (II-24) diminue l'écart par rapport à l'expérimental, mais le désaccord persiste malgré l'introduction de la dépendance en énergie du paramètre libre $\langle \rho^2_0 \rangle$ par l'équipe d'Orsay [50].

III.3.2 Nécessité d'une correction du modèle TS :

Le rendement de sputtering sous l'impact d'ions atomiques [50] calculé dans le cadre du modèle T.S., en considérant la dépendance du paramètre libre du modèle $\langle \rho^2_0 \rangle$ en énergie incidente, n'était pas suffisant pour reproduire le rendement expérimental comme le montre clairement la Figure III-4. Cet écart, observé par rapport aux points expérimentaux, semble être lié à l'absence de la dépendance du paramètre libre $\langle \rho^2_0 \rangle$ de l'aspect thermodynamique de la cible. En effet nous allons montrer dans ce qui suit qu'il en est ainsi.

Puisque le T.S. implique l'évaporation de particules (atomes, clusters ou molécules) à partir de la surface il convient donc d'introduire dans le paramètre libre du modèle l'énergie E_v dépendante de **la chaleur latente de vaporisation** Q_v . Cette dernière représente une grandeur thermodynamiques de la cible.

Soit ε_v l'énergie correspondante à Q_v :

$$\begin{array}{l} Q_v \rightarrow N_{Av} \\ \varepsilon_v \rightarrow M \end{array} \quad \rightarrow \quad \varepsilon_v = \frac{M}{N_{Av}} Q_v \quad (\text{eV}) \quad (\text{III-3})$$

avec M est la masse molaire.

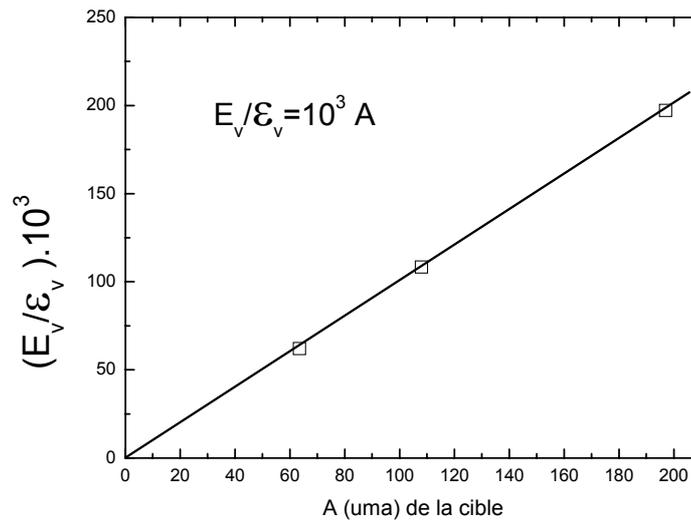


Figure III-5 : Variation du rapport des énergies $\frac{E_v}{\varepsilon_v}$ en fonction du nombre de masse.

Donc nous avons déduit que cette énergie E_v est définie comme:

$$E_v = \varepsilon_v A 10^3 \quad (\text{III-4})$$

où A : est le nombre de masse,

N_{Av} : est le nombre d'Avogadro.

Les valeurs de cette énergie concernant les cibles traitées sont données dans le tableau III-1.

Dans tout ce qui suit le rendement total de sputtering sera considéré comme dû aux deux mécanismes ; la pointe thermique TS et les cascades linéaires dans le cas d'une incidence normale.

En plus de l'énergie incidente, nous introduisons dans le paramètre libre du modèle, une correction qui tient compte de E_v , comme suit :

$$\langle \rho^2 \rangle = \langle \rho_0^2 \rangle \left(1 + \frac{E_v}{E_{inc}}\right)^{1/3} \quad (\text{III-5})$$

Cette correction a permis d'améliorer nettement l'accord avec les points expérimentaux comme nous le montrons dans les figures III-6 et III-7 en utilisant le calcul numérique de la fonction g.

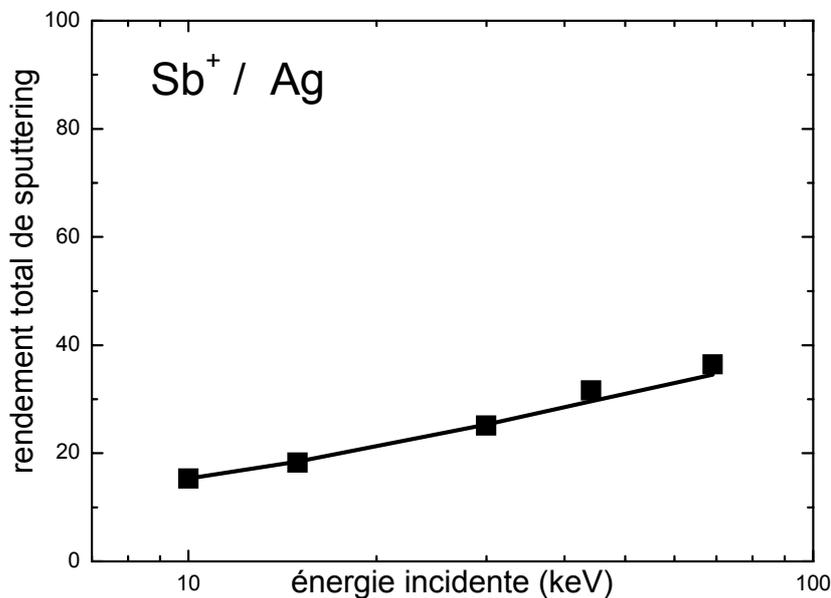


Figure III-6: Rendement de sputtering à partir d'une cible d'Ag sous l'impact d'ions Sb^+ . Les carrés représentent les points expérimentaux de la Réf. [51], la courbe continue est obtenue en introduisant notre correction.

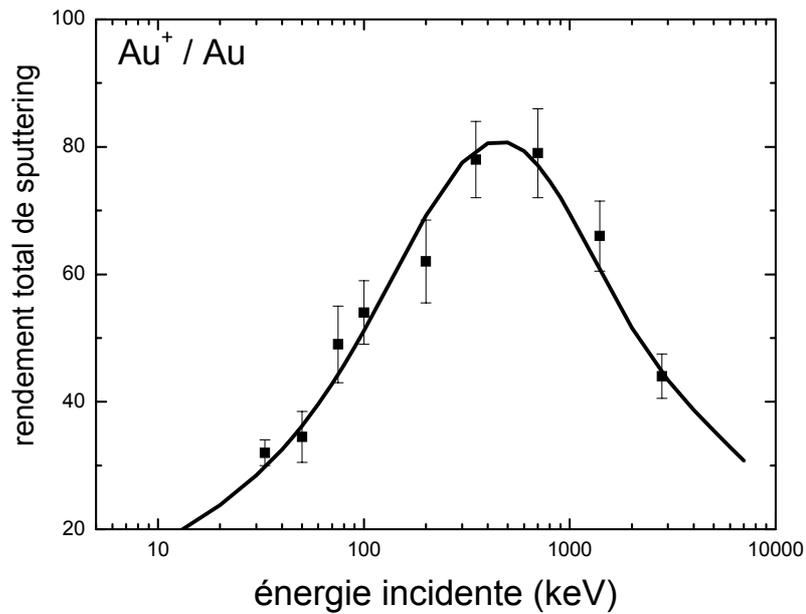


Figure III-7: Rendement de sputtering d'ions Au^+ sur une cible d'au. Les carrés représentent les points expérimentaux de la Réf.[50]. La courbe continue est obtenue en introduisant notre correction.

La figure III-8 représente une comparaison entre le paramètre de l'équipe d'Orsay [50] et celui obtenu dans ce travail par rapport au paramètre expérimental déduit par la méthode inverse, autrement dit, après avoir retranché la contribution linéaire du rendement expérimental, nous déduisons le paramètre $\langle \rho^2 \rangle_{\text{exp}}$, à l'aide de l'éq.II-22. Il est clair que la correction, apportée dans ce travail, donne un $\langle \rho^2 \rangle$ beaucoup plus proche de l'expérience par rapport à $\langle \rho^2_0 \rangle$ de l'équipe d'Orsay.

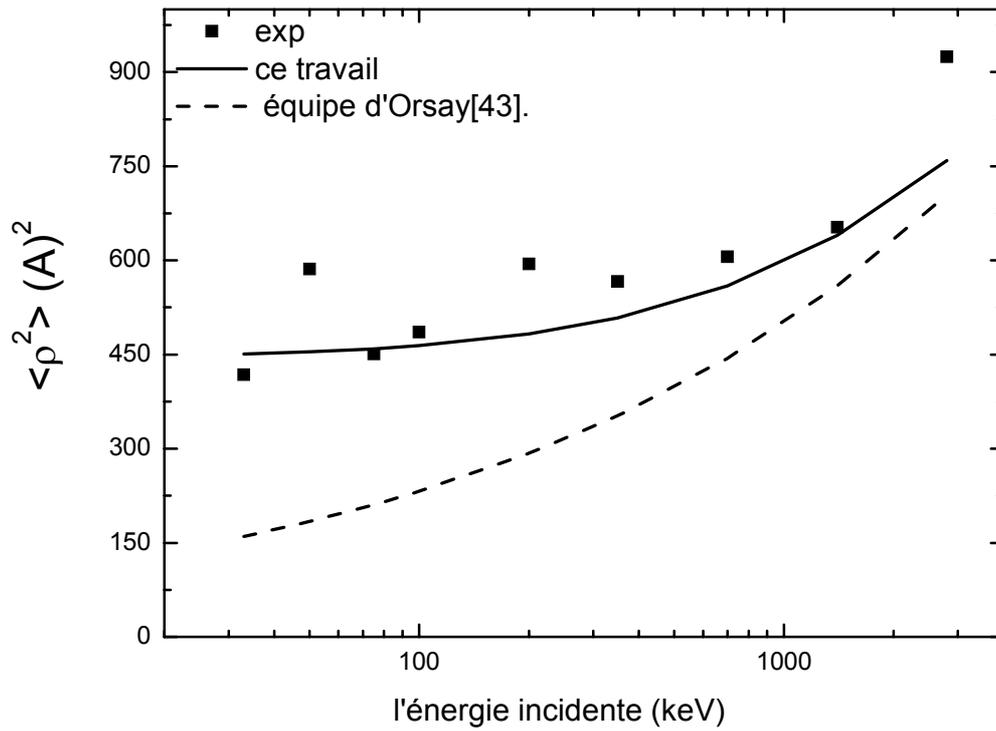


Figure III-8: Variation du paramètre libre $\langle \rho^2 \rangle$ en fonction de l'énergie incidente de la réf [50].

L'utilisation de la formule empirique de Yamamura et al. [27] ne donne pas un résultat satisfaisant comme le montre la figure III-9.

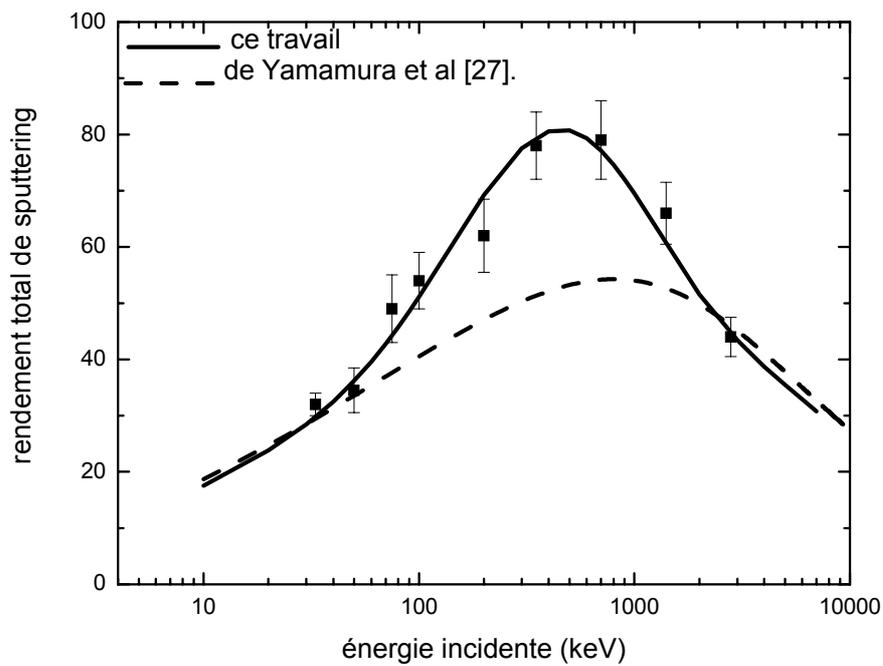


Figure III-10 : Rendement de sputtering d'ions Au^+ sur une cible d' Au. Les carrés représentent les points expérimentaux de la Réf.[50]. La courbe en pointillé est le rendement de la réf.[27] et en continu de ce travail.

La figure III-10 montre la comparaison entre notre travail et ce lui de Yamamura et al.[27] par rapport aux points expérimentaux. Elle illustre bien l'insuffisance de la formule semi empirique qui ne tient pas compte de l'aspect thermodynamique de la cible.

III.4.Validation de la correction :

Pour valider cette correction, nous l'avons appliquée à différentes expériences de sputtering total de plusieurs combinaisons (cible-projectile).

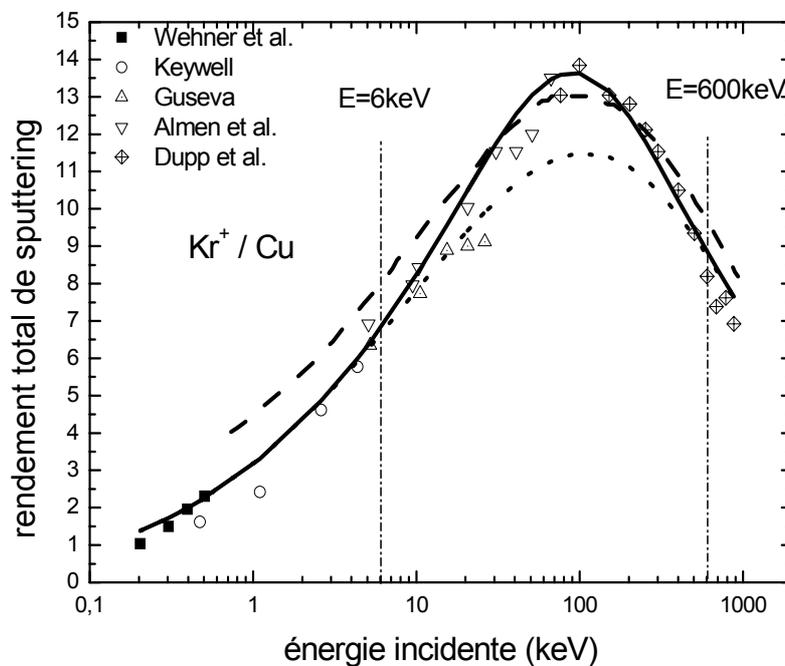


Figure III-11 : Le rendement de sputtering d'ions Kr^+ sur une cible de Cu. En pointillé le rendement dû aux cascades linéaires, en continu ce travail. En tiretée le rendement linéaire calculé par P.Sigmund [28,29].

La figure III-11 représente l'émission totale des particules à partir d'une surface de cuivre bombardée par des ions krypton (Kr^+) d'énergie incidente allant de 0.2 keV à 875 keV. Nous constatons que le rendement linéaire reproduit l'expérience pour des énergies incidentes inférieures à 6 keV, et supérieures à 600 keV. Par contre, entre ces deux limites d'énergie, l'écart est important, autrement dit le rendement expérimental est sous estimé. La théorie des cascades collisionnelles prévoit un maximum moins prononcé que l'expérience, et cet écart est comblé par

la contribution du rendement dû à la pointe thermique. En effet ce dernier n'a de contribution efficace que dans cet intervalle, puisque au delà de 600 keV et en dessous de 6 keV sa valeur est négligeable par rapport au rendement linéaire, comme le montre la figure. En d'autres termes le TS ne contribue de façon effective que dans la gamme d'énergie comprenant l'énergie E_v .

Il faut noter que le calcul de P.Sigmund [28,29] utilise un autre paramètre α [52], que celui utilisé dans notre travail, nous utilisons celui de Matsunami et al.[25].

Dans ce qui suit nous présentons d'autres exemples de la validité de notre correction :

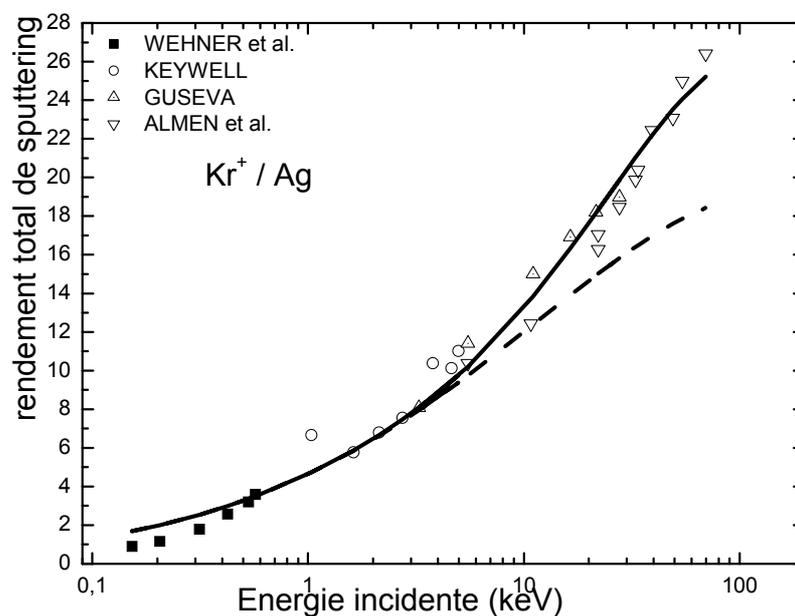


Figure III-12.a : Le rendement de sputtering d'une cible de Ag sous l'impact des ions Kr^+ . La courbe pointillée rendement dû aux cascades linéaires et celle en continue le rendement total de ce travail.

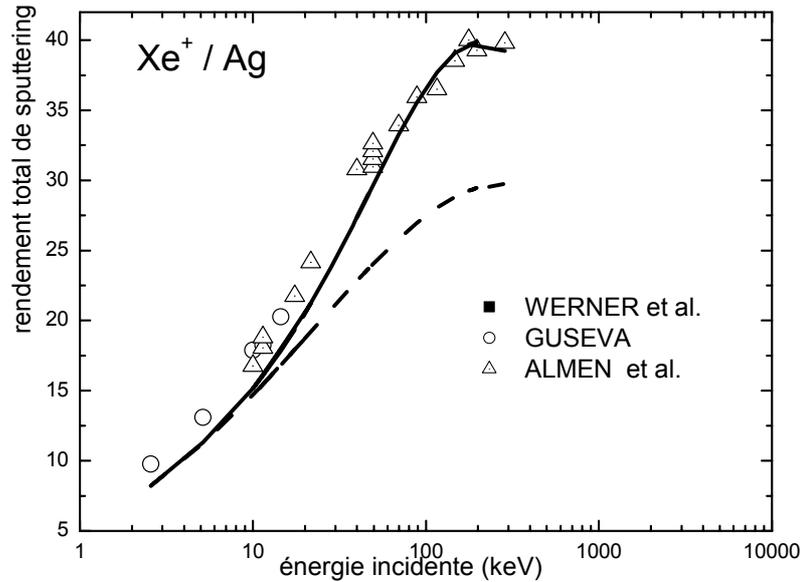


Figure III-12.b : Rendement de sputtering d'une cible de Ag sous l'impact des ions Xe^+ . La courbe pointillée le rendement dû aux cascades linéaires et celle en (continue le rendement total de ce travail.

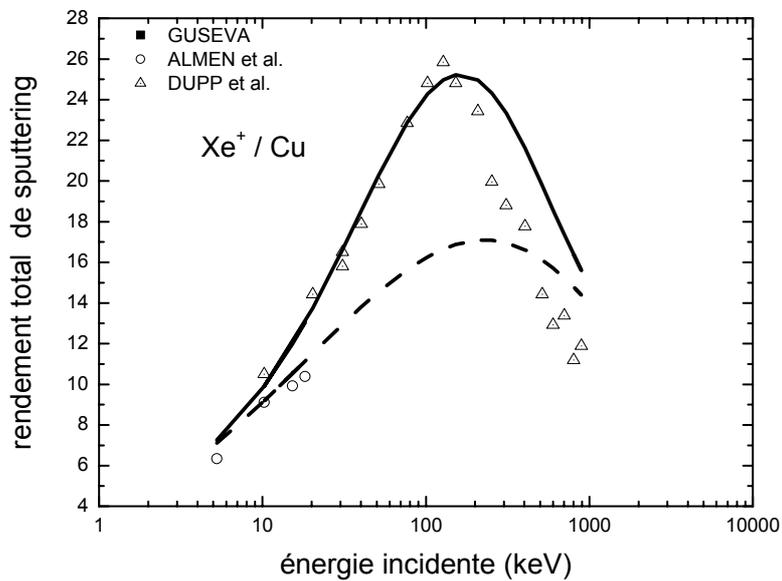


Figure III-13 : Rendement de sputtering d'une cible de Cu sous l'impact des ions Xe^+ . La courbe pointillée rendement dû aux cascades linéaires et celle en continue rendement total de ce travail.

Pour récapituler nous pouvons écrire le carré moyen du rayon du volume cylindrique $\langle \rho^2 \rangle$ représentant le paramètre libre du modèle, sous la forme suivante :

$$\langle \rho^2 \rangle (E)_{(projectile^+ / Cible)} = CE^{4/3} \left(1 + \frac{E_v}{E}\right)^{1/3}$$

Avec :

E : l'énergie incidente, et C : une constante dépendante du couple.

| projectile | cible | E_v (keV) | $C (A^{0.2} keV^{-1/3})$ |
|------------|-------|-------------|--------------------------|
| Xe | Cu | 197.5 | 22 |
| Au | Au | 700 | 50 |
| Xe | Ag | 290 | 37 |
| Kr | Ag | 290 | 20 |
| Kr | Cu | 197.5 | 20 |
| Sb | Ag | 290 | 30 |

Tableau III-1 : Tableau récapitulatif du couple (projectile -cible) utilisés.

III.5.CONCLUSION :

A travers les différents résultats expérimentaux traités dans ce travail, nous avons constaté que le rendement total de sputtering métallique sous l'impact d'ions atomiques lourds étaient assez bien reproduit par la théorie des cascades linéaire de Sigmund à des énergies incidentes relativement faibles.

L'application du modèle TS standard n'a pas permis de reproduire de façon satisfaisante le rendement expérimental dans le cas des systèmes traités. L'analyse de cette insuffisance a montré que ce modèle ne tient pas compte explicitement de l'énergie incidente et de l'aspect thermodynamique de la cible dû à la température engendrée sous l'impact des ions incidents. Malgré, l'introduction de l'énergie incidente dans le paramètre libre du modèle du TS, par l'équipe d'Orsay, ceci n'a pu reproduire que la forme du sputtering car le décalage par rapport aux points expérimentaux subsiste toujours.

Le calcul numérique explicite de la fonction g (sans approximation) avec l'introduction de l'énergie E_v correspondant à la chaleur latente de vaporisation de la cible a permis :

- de reproduire de façon satisfaisante le rendement expérimental de sputtering.
- de mettre en évidence l'influence de l'aspect thermodynamique de la cible au voisinage du maximum du rendement de sputtering.

Pour reproduire ce rendement expérimental, sur une gamme qui va de quelques keV à quelques MeV, il est indispensable de tenir compte de la contribution des deux processus d'émission secondaire correspondants aux cascades linéaires et à l'évaporation à partir de la pointe thermique tout en tenant compte de l'énergie E_v .

Cette correction apportée au modèle du TS dans le cas du sputtering métallique sous l'impact des ions atomiques, est étendue à l'émission sous l'impact des agrégats (Clusters).

Chapitre VI :
Emission secondaire métallique sous
l'impact d'ions agrégats (poly-
atomiques)

Emission secondaire métallique sous l'impact d'ions agrégats (poly-atomiques)

Les agrégats, grains de matière constitués de deux à quelques milliers d'atomes, sont appelés à connaître un essor considérable en raison de leur multifonctionnalité. Les agrégats constituent des objets très recherchés dans différents domaines (nanoparticule, physique du solide etc...). Dans ce chapitre, nous nous intéressons aux processus physiques qui sont à l'origine de l'émission secondaire sous l'impact des agrégats.

IV.1.Introduction :

Le bombardement d'une surface solide par des projectiles agrégats conduit à l'augmentation de divers effets : formation de cratère, modification de la structure du matériau, ainsi que le renforcement de l'émission secondaire. En effet le rendement de sputtering induit par un agrégat formé de « n » atomes est plus important que celui induit par tous ces constituants à l'état libre à la même vitesse, c'est ce qu'on appelle l'effet non linéaire.

Un projectile polyatomique constitue un outil unique pour bombarder une petite surface de solide par plusieurs atomes simultanément en y déposant une densité d'énergie importante.

IV.2.Travaux Antérieurs :

Habituellement appelés « non linéaires », les effets de l'augmentation du rendement de sputtering sous l'impact de projectiles agrégats, étaient observés pour la première fois il y a près de trente ans [53,26]. Les auteurs de cette réf. ont mis en évidence, pour la première fois que le rendement de sputtering induit par des projectiles diatomiques, sur une surface métallique, était supérieur à deux fois celui induit par des projectiles atomiques à la même vitesse. Depuis, plusieurs expériences ont été faites pour l'étude de ces effets non linéaires du rendement d'émission secondaire, en utilisant Se_2 et Te_2 [53,26] et Sb_2 , Sb_3 et Bi_2 [54,51] sur des cibles d'Ag et d'Au. Dans le cas de l' Au_n^+ sur Au [50], la variation du rendement de sputtering en fonction de l'énergie incidente présente un maximum plus prononcé que celui prévu par la théorie des cascades de Sigmund [28,29].

Plus récemment, Andersen [55] attribue cette augmentation du rendement de sputtering à l'apparition de spikes en opposition aux cascades collisionnelles de Sigmund. Les spikes de déplacement sont caractérisés par une densité élevée d'atomes déplacés, les cascades linéaires, quand à elles, sont caractérisées par une densité d'atomes déplacés plus faible. Du fait que les

processus de transport d'énergie et les mécanismes qui sont à l'origine du sputtering sont moins évidents, plusieurs modèles ont été développés. Parmi ces modèles, l'approche du thermal spike standard est la plus utilisée, ce ci est probablement dû au fait que les prédictions qualitatives de ce modèle sont plus proches de l'expérience. Selon les auteurs des réfs [56,50] le modèle standard du Thermal Spike ne peut être appliqué sur toute une gamme d'énergie sans la connaissance du rayon initial de la géométrie du spike. Jakas et Bringa [57] ont récemment testé l'influence des ondes élastiques dans un thermal spike dans le cadre d'une géométrie cylindrique. Leur version étendue du modèle du thermal spike prévoit, qu'à de grandes énergies déposées, la pression du thermal spike dans le cœur de la pointe donne une augmentation de l'expansion latérale de l'onde élastique qui conduit au refroidissement du spike et diminue ainsi le rendement de sputtering.

Les simulations de dynamique moléculaire ont été adaptées pour le sputtering sous l'impact de clusters [58] en considérant des énergies incidentes très faibles par rapport à la gamme d'énergie des réf. [56] et [50]. Brunelle et Della-Negra ont développé un modèle semi empirique pour interpréter leurs mesures du rendement de sputtering métallique [59]. En se basant sur l'énergie déposée dans une certaine profondeur, ces auteurs obtiennent un accord global satisfaisant avec le nuage de points expérimentaux normalisés par rapport au carré de la taille du cluster [50]. Bien que cette relation ne soit pas universelle, d'après ces auteurs, elle permet néanmoins d'apporter des informations complémentaires en ce qui concerne la compréhension de l'émission secondaire dû aux agrégats.

Cependant, l'origine de ces effets non linéaires et ainsi que la manière dont le cluster pénètre dans la cible (dépôt d'énergie, fragmentation, corrélations spatiotemporelles) restent encore mal élucidées.

Dans toutes les approches précédemment proposées, il a été supposé que l'agrégat se fragmente totalement à l'impact sur la surface de la cible, ce qui implique que ses atomes constituants pénètrent dans la cible avec la même énergie indépendamment les uns de autres. Le rendement obtenu est toujours normalisé par rapport au rendement du monomère, afin de révéler l'effet de taille. Mais cette image de fragmentation reste insuffisante pour décrire ce mécanisme d'émission sous l'impact d'agrégats.

Pour cela nous proposons une nouvelle approche, qui sera basée sur la contribution à l'émission des fragments pénétrants avec des angles différents et des énergies différentes.

Dans ce qui suit nous présentons ce modèle semi analytique.

IV.3. PRESENTATION DU MODELE :

Dans le but d'interpréter leurs résultats expérimentaux obtenus récemment sur le sputtering total à partir de surfaces d'or sous l'impact d'ions agrégats Au_n^+ , Bouneau et al. [50] avaient appliqué le modèle de la pointe thermique. Comme nous l'avons montré au dans le chapitre III, malgré la correction apportée par ces auteurs au paramètre libre du modèle, le rendement expérimental est loin d'être reproduit. Dans leur calcul, ils supposaient que le cluster se fragmente au niveau de la surface et que ces constituants pénètrent avec la même énergie (l'énergie atomique) et le même angle. Afin de comparer le rendement expérimental d'un agrégat de taille « n » au rendement d'un monomère obtenu dans le cadre du TS, les auteurs avaient normalisé le rendement de l'agrégat à n^2 . Cependant, nous avons bien vu dans le chapitre précédant que le rendement de sputtering sous l'impact d'ions atomiques est dû aux cascades linéaires et au thermal spike. Pour cela nous avons repris le calcul en tenant compte du rendement linéaire des cascades, mais le rendement expérimental reste encore mal reproduit. Nous constatons que le fait de considérer le rendement d'un agrégat de taille « n » comme étant la somme des rendements de ses fragments à la même énergie, en d'autres termes n fois où même n^2 fois le rendement atomique ne suffit pas à reproduire le résultat expérimental. Par conséquent, le mécanisme d'émission secondaire sous l'impact d'ions agrégats est encore mal élucidé.

IV.3.1.Hypothèses du modèle :

Afin de remonter au mécanisme d'émission secondaire sous l'impact d'ions agrégats nous avons développé un modèle basé sur les hypothèses suivantes :

1°/cible métallique.

2°/ le rendement de sputtering Y est la somme des deux contribution dû aux cascades linéaires

Y_{lin} et au thermal spike Y_{TS} :

$$Y = Y_{lin} + Y_{TS}$$

3°/la fragmentation de l'agrégat au niveau de la surface de la cible est équivalente au bombardement de la surface par les constituants de l'agrégat avec des énergies et des angles différents. Comme nous allons le voir sur le paragraphe suivant.

IV.3.2.Description du modèle :

Nous considérons un agrégat de numéro atomique z_1 et de taille n , arrivant avec une énergie E_0 sur une surface métallique de numéro atomique z_2 . L'agrégat se fragmente à l'impact sur la surface, alors les constituants pénètrent indépendamment les uns des autres avec des énergies et des angles différents. En fait l'agrégat est épluché de ses électrons de valence, par conséquent tous ses constituants deviennent ionisés, ce qui conduit à la répulsion coulombienne entre ces atomes. Soit E_c l'énergie de cette répulsion.

Considérons pour simplifier, un agrégat de taille $n=2$, et soit E_{fi} l'énergie du fragment 'i'. Cette énergie peut être obtenue en utilisant la fragmentation binaire et le principe de la conservation de l'énergie totale.

$$E_{tot} = \sum_i E_{fi} \quad (IV-1)$$

D'autre part :

$$E_{fi} = \frac{1}{2} m_i \bar{v}_i^2 \quad (IV-2)$$

$$\text{Or: } \bar{v}_i(lab) = \bar{v}_0 + \bar{u}_i(CM) \quad (IV-3)$$

De (IV-2) et (IV-3) :

$$\begin{aligned} \Rightarrow E_{fi} &= \frac{1}{2} m_i (\bar{v}_0 + \bar{u}_i)^2 \\ \Rightarrow E_{fi} &= \frac{1}{2} m_i v_0^2 + \frac{1}{2} m_i u_i^2 + m_i \bar{v}_0 \cdot \bar{u}_i \end{aligned} \quad (IV-4)$$

Où: \bar{v}_i : est la vitesse du fragment 'i' de masse m_i ($i=1,2$) dans le système du laboratoire.

\bar{u}_i : est la vitesse du fragment 'i' de masse m_i ($i=1,2$) dans le système du Centre de Masse.

\bar{v}_0 : est la vitesse du centre de masse.

Et comme l'énergie totale s'écrit :

$$E_{tot} = E_0 + E_c \quad (IV-5)$$

$$E_0 + E_c = \frac{1}{2} m_1 v_1^2 + \frac{1}{2} m_2 v_2^2 \quad (IV-6)$$

En fait dans notre cas les fragments sont des atomes de même masse $m_1=m_2=m$ (m : la masse atomique).

Ce qui conduit à:

$$E_{f1} = \frac{E_0}{2} + \frac{E_c}{2} + \sqrt{E_0 E_c} \cos(\theta_1) \quad (IV-7)$$

θ_i : est l'angle du fragment i dans le système du CM.

Dans le cas d'un cluster formé de deux atomes nous tirons au hasard une direction définie par θ_1 puis nous calculons l'énergie du fragment à partir de l'éq.IV-7. L'énergie du second fragment sera déduite en utilisant la conservation de l'énergie totale ; autrement dit :

$$E_{f2} = E_{tot} - E_{f1} \quad (IV-8)$$

sa direction est déduite par l'éq.IV-7.

Ce calcul de la fragmentation binaire est généralisé sur une multifragmentation en atomes d'un agrégat de taille « n ».

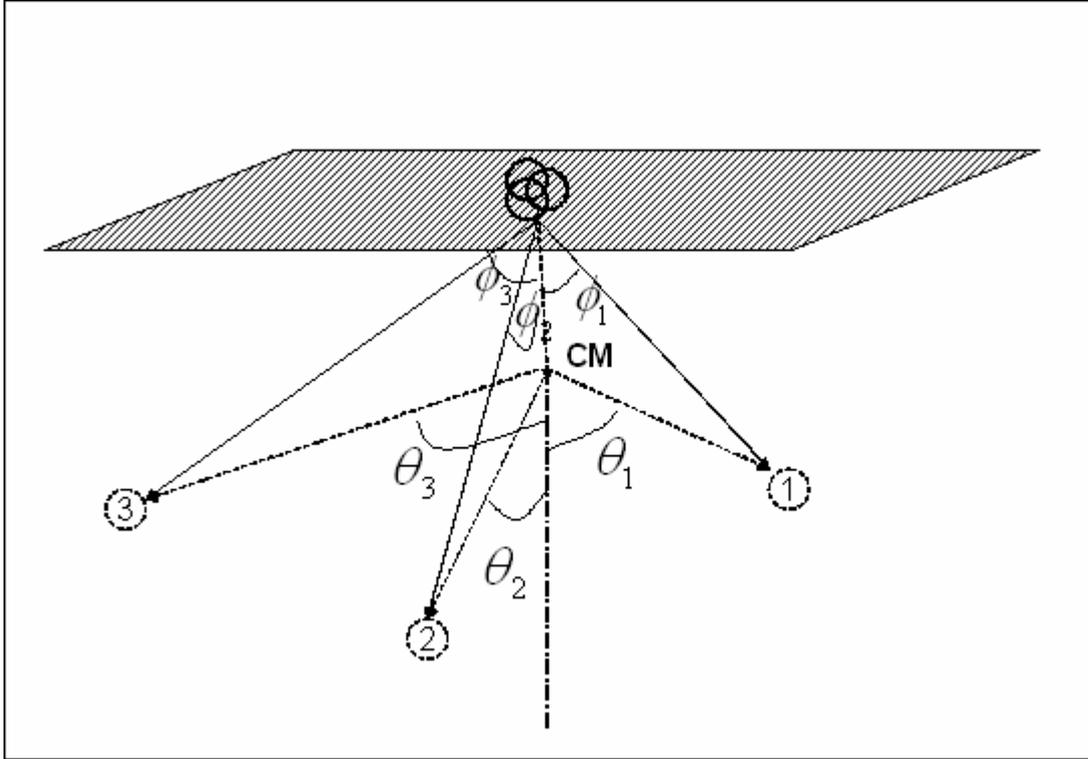


Figure IV-1 : schéma illustrant le mécanisme de la fragmentation binaire utilisé dans notre simulation

On peut montrer que l'énergie E_{fi} d'un fragment « i » ($i=1, n-1$) résultant d'une multifragmentation, s'écrit sous la forme :

$$E_{fi} = \frac{E_0}{n} + \frac{(n-1)E_c}{n} + \frac{2}{n} \sqrt{(n-1)E_0 E_c} \cos(\theta_i) \quad \text{pour } : (i=1, n-1) \quad (IV-9-a)$$

On tire (n-1) directions au hasard et on calcule pour chaque fragment l'énergie E_{fi} , dans le calcul le centre de masse est supposé fixe, de telle sorte que $\sum_{i=1}^{n-1} E_{fi} \prec E_{tot}$, par conséquent : l'énergie du dernier fragment est déduite :

$$E_{fn} = E_{tot} - \sum_{i=1}^{n-1} E_{fi} \quad (\text{IV-9-b})$$

Le rendement d'un fragment d'énergie E_{fi} sera donné par :

$$Y(E_{fi}) = Y_{lin}(E_{fi}) + Y_{TS}(E_{fi}) \quad (\text{IV-10})$$

Ainsi le rendement Y_f de la fragmentation atomique :

$$Y_f(E_0) = \sum_{i=1}^n Y(E_{fi}) \quad (\text{IV-11})$$

Cependant l'utilisation de ce dernier à lui seul ne suffit pas à reproduire les points expérimentaux. Pour cela nous avons considéré, en plus de la fragmentation atomique, la contribution de l'agrégat en tant que entité physique entière avec un rendement de sputtering Y_0 :

$$Y_0(E_0) = Y_{lin}(E_0) + Y_{TS}(E_0) \quad (\text{IV-12})$$

Pour le calcul des rendements de thermal spike et des cascades linéaires du cluster, nous avons besoin de connaître son pouvoir d'arrêt nucléaire. Selon les réf. [60,61] le pouvoir d'arrêt d'un agrégat est approximé par la somme des pouvoir d'arrêt de ses constituants à la même vitesse, autrement dit :

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_{nucl}^{cluster}(E_0) = n \left. \frac{dE}{dx} \right|_{nucl}^{atm} \left(\frac{E_0}{n} \right) \quad (\text{IV-13})$$

Cependant l'utilisation de cette approximation [60,61] dans le calcul du rendement, n'a pas conduit à un bon accord avec les points expérimentaux. Ce qui nous a conduit à introduire une nouvelle approximation : « le pouvoir d'arrêt nucléaire d'un cluster est égale à n fois le pouvoir d'arrêt nucléaire d'un atome ayant la même énergie que le cluster ».

Cependant les contributions, au rendement total, du rendement des fragments Y_f et du cluster en tant qu'entité entière Y_0 , se font avec des probabilités p et q respectivement :

$$Y_{tot}(E_0) = p Y_f(E_0) + q Y_0(E_0) \quad \text{avec } p+q=1 \quad (\text{IV-14})$$

nous obtenons :

$$Y_{tot}(E_0) = p \sum_{i=1}^n Y_i(E_{f_i}) + (1-p)Y_0(E_0) \quad (\text{IV-15})$$

Ces contributions relatives sont fonction de l'énergie incidente et de la taille de l'agrégat :

$$p = f(E_0, n) \quad (\text{IV-16})$$

IV.3.3.Procedure de simulation par Monte-Carlo:

Le rendement total Y_{tot} est donné par la relation (IV-15). Cependant, du fait que l'angle θ_i dans le système du centre de masse varie aléatoirement, elle ne nous permet pas d'obtenir directement Y_{tot} d'après la relation analytique (IV-15) (aspect stochastique du processus). Par contre ce calcul peut être fait par simulation numérique en utilisant la méthode de Monte- Carlo. Ce qui nécessite la connaissance des densités de probabilité des variables décrivant le modèle, en l'occurrence les angles d'orientation des fragments $f(\theta)$ et leurs énergies $f(E_f)$. Ces variables sont, en effet, difficiles à déterminer analytiquement à cause de l'aspect stochastique de la fragmentation.

Pour réaliser cette simulation, nous supposons que les angles varient de façon isotrope ce qui nous permet d'écrire leur densité de probabilité sous la forme :

$$f(\theta)d\theta = \frac{d\Omega}{4\pi} = \frac{1}{2} \sin(\theta)d\theta \quad (\text{IV-17})$$

D'autre part, nous pouvons remonter à la densité de probabilité des énergies des fragments E_f , d'après :

$$f(E_f) = f(\theta) \left| \frac{dE_f}{d\theta} \right| \quad (\text{IV-18})$$

En utilisant les relations (IV-8) et (IV-9-a) et (IV-9-b) nous obtenons :

$$f(E_f) = \frac{n}{4\sqrt{(n-1)E_0E_c}} \quad (\text{IV-19})$$

L'énergie E_f est distribuée entre E_{min} et E_{max} , en sachant que l'angle θ appartient à l'intervalle $[0, \pi]$; tel que :

$$E_{\min} = \frac{E_0}{n} + \frac{(n-1)E_c}{n} - \frac{2}{n}\sqrt{(n-1)E_0E_c} \quad (\text{IV-20-a})$$

$$E_{\max} = \frac{E_0}{n} + \frac{(n-1)E_c}{n} + \frac{2}{n}\sqrt{(n-1)E_0E_c} \quad (\text{IV-20-b})$$

il est facile de montrer que $f(E_f)$ est normalisée :

$$\int_{E_{\min}}^{E_{\max}} f(E_f) dE_f = \frac{n}{4\sqrt{(1-n)E_0E_c}} (E_{\max} - E_{\min}) = 1 \quad (\text{IV-21})$$

Afin de générer les énergies des fragments nous calculons la distribution de ces dernières, comme suit :

$$F(E_f) = \int_{E_{\min}}^{E_f} f(E_f) dE_f = \frac{n}{4\sqrt{(1-n)E_0E_c}} (E_f - E_{\min})$$

$$\Rightarrow F(E_f) = \frac{n}{4\sqrt{(1-n)E_0E_c}} (E_f - E_{\min}) \quad (\text{IV-22})$$

IV.4. Analyse de données :

Comme nous l'avons déjà vu précédemment, toutes les approches proposées dans la littérature, supposent que l'agrégat se fragmente totalement à l'impact sur la surface de la cible. De plus on suppose que ces atomes constituants pénètrent dans la cible avec la même énergie indépendamment les uns des autres sous une incidence normale. Mais cette image de fragmentation reste insuffisante pour décrire le mécanisme d'émission sous l'impact d'agrégats. Pour cela, nous avons repris l'analyse des données expérimentales du rendement de sputtering d'une cible d'or sous l'impact d'ions agrégats Au_n^+ ($n=2,5$) [50].

Pour l'étude de ce phénomène, nous avons, tout d'abord, voulu isoler l'effet non linéaire du

rendement total dû à un cluster de taille « n » en lui soustrayant n fois le rendement d'un atome avant l'énergie atomique $\left(\frac{E_0}{n}\right)$. La **figure IV-2** représente cette différence que nous pouvons appeler : partie non linéaire du rendement Y_{nl} . Cette différence peut être mise sous la forme : $Y_{nl} = Y_n^{exp} - n Y^{atm}$ pour tous les clusters Au_n

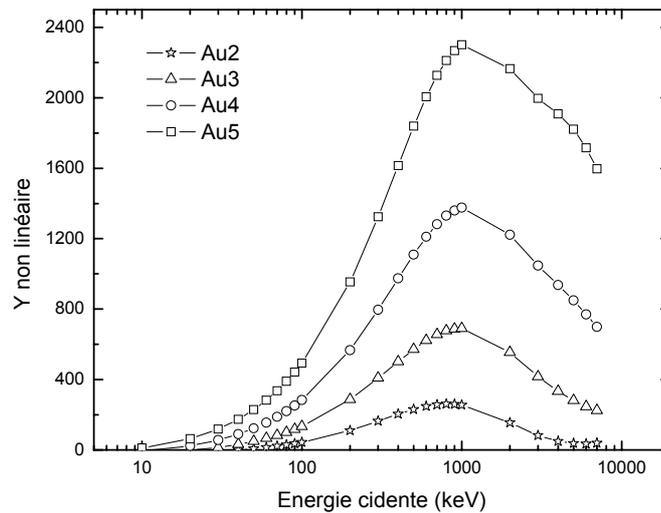


Figure IV-2 : Rendement de sputtering non linéaire d'une cible d'or sous l'impact d'agrégats Au_n^+

La figure IV-2 montre que plus la taille du cluster est grande plus cet effet est important. Y_{nl} présente un maximum commun entre toutes les tailles au alentour de l'énergie spécifique de la cible, E_v .

Nous avons constaté qu'en normalisant le rendement Y_{nl} par rapport à la taille (Y_{nl}/n) l'effet non linéaire est toujours apparent. Ce qui nous a conduit à normaliser par rapport à n^2 comme le montre la figures IV-3

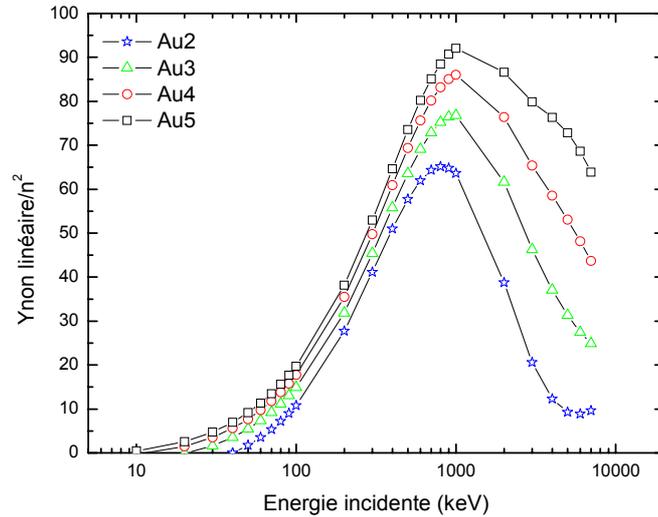


Figure IV-3: *le rendement de sputtering non linéaire d'une cible d'or sous l'impact d'agrégats Au_n^+ normalisé à n^2 .*

Nous constatons qu'à la différence de la figure IV-2, les rendements non linéaires, dans la figure IV-3, se rapprochent sans toutefois, perdre l'aspect non linéaire. Ce qui nous a permis de conclure que cet effet n n'est pas directement proportionnel n^2 , ce qui laisse présager un autre effet en plus de l'effet non linéaire précédent.

Dans le but de reproduire le rendement de sputtering d'une cible d'or sous l'impact d'ions clusters Au_n^+ , nous proposons une nouvelle approche sous forme de simulation par Monte Carlo basée sur les équation décrivant le modèle (IV-1 à IV-22), en considérant non seulement la contribution des fragments pénétrants indépendamment avec des angles et des énergies différents, mais aussi la contribution de l'agrégat en tant qu'entité entière pénétrant dans la cible. Cette simulation a été faite suivant l'algorithme correspondant aux étapes du modèle, précédemment cité.

Ce qui a conduit aux résultats que nous allons présenter dans le paragraphe suivant.

IV.5. Résultats et discussions :

L'utilisation de l'approximation de Shulga et al. et Andersen et al. [60,61], dans l'algorithme de simulation a conduit comme le montre la figure IV-4, à un décalage du rendement par rapport aux points expérimentaux, où à titre d'exemple nous représentons le rendement de sputtering de Au_3^+ sur une surface d'or en fonction de l'énergie total.

Car en effet, le rendement des fragments et celui du cluster en tant qu'entité physique présentent un maximum à la même énergie $E=1400$ keV, en fait cette énergie pour un cluster de taille n est donnée par : $E= (n-1) E_v$. Par conséquent le rendement total dû à ces deux contributions aurait un

maximum à la même énergie, tandis que le maximum des point expérimentaux, se trouve à une énergie inférieure. Ceci indique que l'utilisation de l'approximation Eq (IV-13) ne permet pas de reproduire le rendement expérimental et qu'elle ne décrit pas en réalité la perte d'énergie d'un cluster.

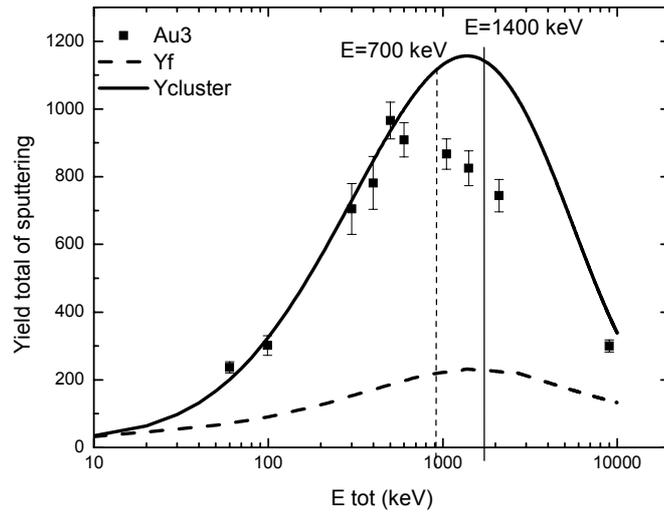


Figure IV-4 : Rendement de sputtering de l' Au^+_3 sur une cible d'or [50].

Ce qui nous a amené à modifier l'approximation de l'Eq (IV-13) en remplaçant l'énergie atomique E_0/n par l'énergie totale E_0 du cluster dans le pouvoir d'arrêt :

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_{nucl}^{cluster} (E_0) = n \left. \frac{dE}{dx} \right|_{nucl}^{atom} (E_0) \quad (IV-23)$$

En introduisant cette approximation dans l'algorithme de simulation, les deux maxima se séparent comme on peut le voir sur la figure IV-5 correspondante à l'émission sous l'impact de l'agrégat Au_4^+ considéré comme exemple d'illustration. Nous constatons que le nouveau maximum du rendement de sputtering dû à l'agrégat se situe à l'énergie spécifique de la cible de l'Eq. III-6.

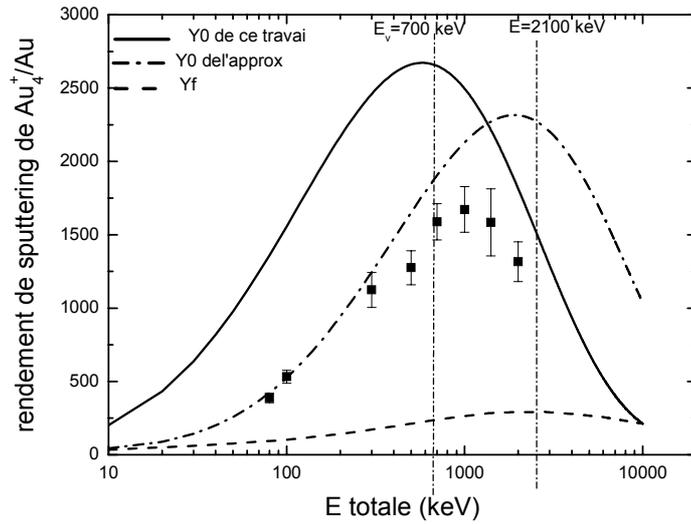


Figure IV-5 : Rendement de sputtering de l' Au^+_4 sur une cible d'or

Le rendement obtenu par la somme direct des deux rendements $\sum_{i=1}^n Y_i(E_{fi})$ et $Y_0(E_0)$ respectivement dû aux fragments et au cluster non fragmenté est donné par :

$$Y = \sum_{i=1}^n Y_i(E_{fi}) + Y_0(E_0) \quad (IV-24)$$

Nous avons remarqué que le rendement obtenu par la somme direct des deux rendements, ne reproduit pas le rendement expérimental. Ce qui semble indiquer que les fragments et le cluster ne contribuent pas au rendement total avec la même probabilité.

En effet, nous avons associé à ces deux contributions les probabilités p et q .

Ces probabilités ont été déterminées en utilisant les données expérimentales et en résolvant le système d'équations suivant, pour toutes les tailles:

$$\begin{cases} p + q = 1 \\ Y_{\text{exp}} = Y = p \sum_{i=1}^n Y_i(E_{fi}) + q Y_0(E_0) \end{cases} \quad (IV-25)$$

Nous avons obtenu :

$$p(E, n) = -0.15 \ln(E) + \left(1 + \frac{n}{10}\right) \quad \text{pour } n=2, 3, 4, 5. \quad (IV-26)$$

Cette relation montre que la probabilité de contribution à l'émission dépend, aussi bien de l'énergie incidente totale que de la taille du cluster n , comme le montre la figure IV-6.

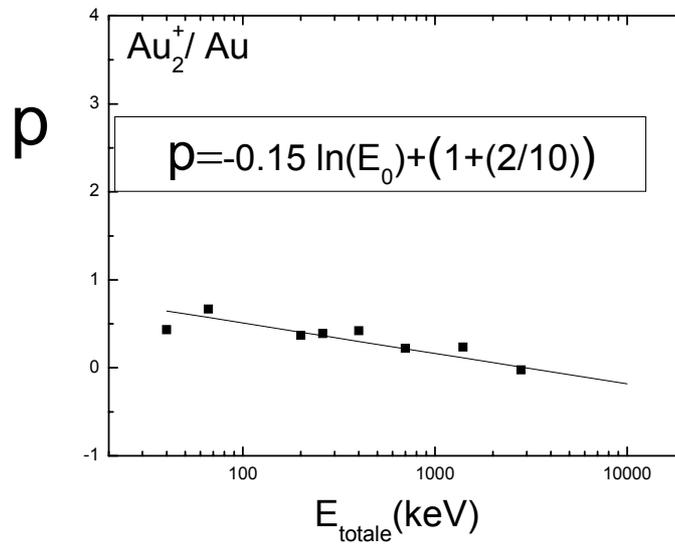


Figure IV-6 : Représente la probabilité de contribution relative du rendement des fragments constituants de l'agrégat Au_2^+ au rendement total d'une cible d'or.

En introduisant les probabilités de contribution ainsi obtenues dans notre simulation nous avons obtenu, comme le montrent les figures IV-7 a-b-c-d, un bon accord avec l'expérience.

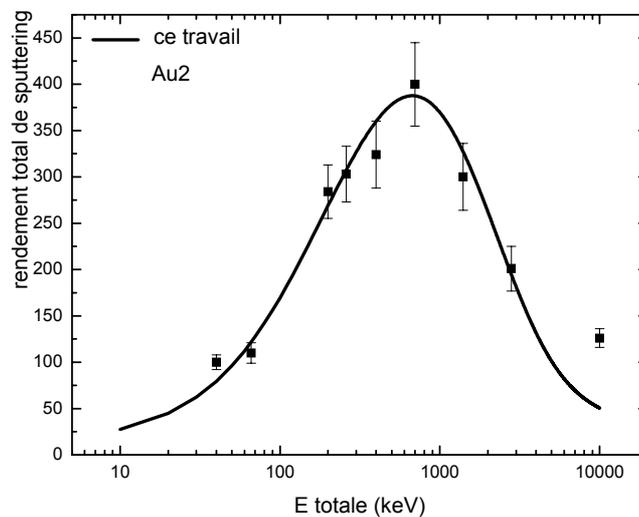


Figure IV-7-a: Rendement de sputtering d'une cible d'or sous l'impact de clusters Au_2^+ . Les carrés pleins les données expérimentales, et le trait continu notre modélisation.

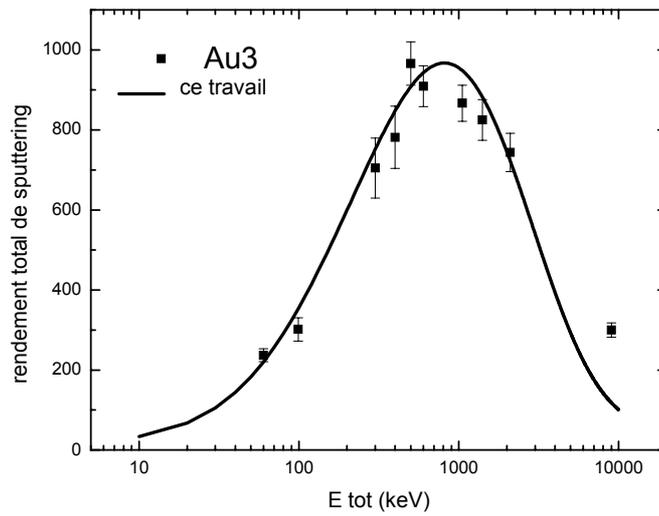


Figure IV-7-b: Rendement de sputtering d'une cible d'or sous l'impact de clusters Au^+_3 . Les carrés pleins les données expérimentales, et le trait continu notre modélisation.

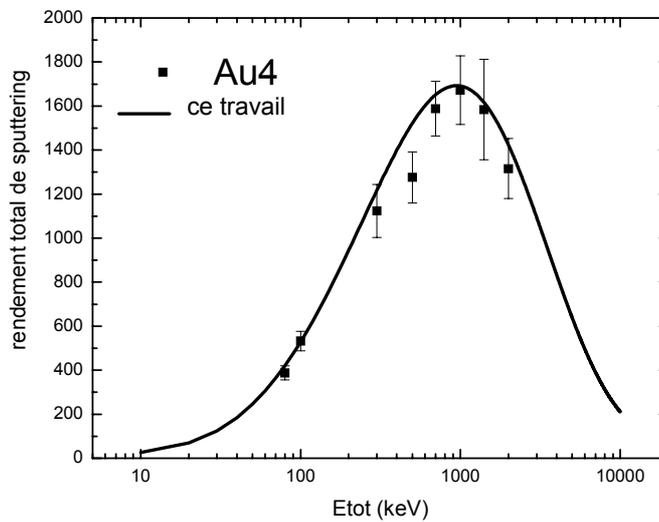


Figure IV-7-c: Rendement de sputtering d'une cible d'or sous l'impact de clusters Au^+_4 . Les carrés pleins les données expérimentales, et le trait continu notre modélisation.

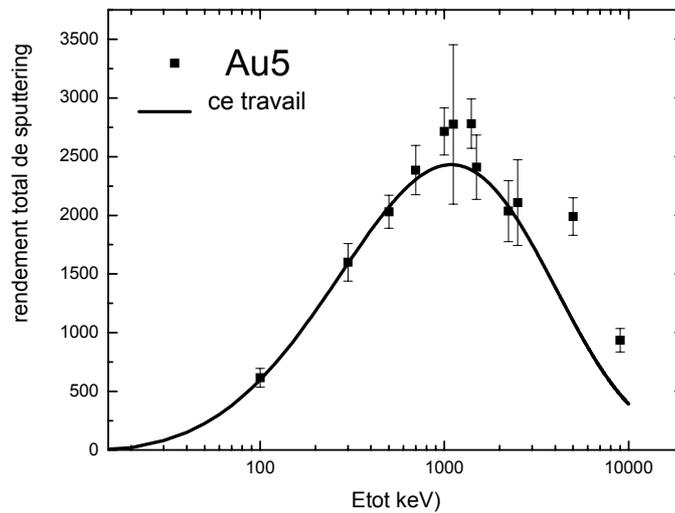


Figure IV-7 -d: Rendement de sputtering d'une cible d'or sous l'impact de clusters Au^{+}_5 . Les carrés pleins les données expérimentales, et le trait continu notre modélisation.

Il est important de noter que, cette modélisation a une limitation en taille, comme le montre la figure IV-8. De sorte que cette simulation ne reproduit pas le rendement de sputtering sous l'impact d'agrégats de taille supérieure à 5 ($n > 5$). Cela pourrait être dû à l'apparition d'un autre mécanisme de fragmentation. En effet, pour reproduire le rendement d'un cluster à partir de la taille 7, il faudrait tenir compte de la fragmentation en petits clusters ; plus la taille du cluster augmente plus il a de chance pour ce fragmenter en de petits clusters de plus petite taille. Cette fragmentation n'est pas prise en compte dans cette modélisation. Cette image de fragmentation est inscrite dans les perspectives de ce travail.

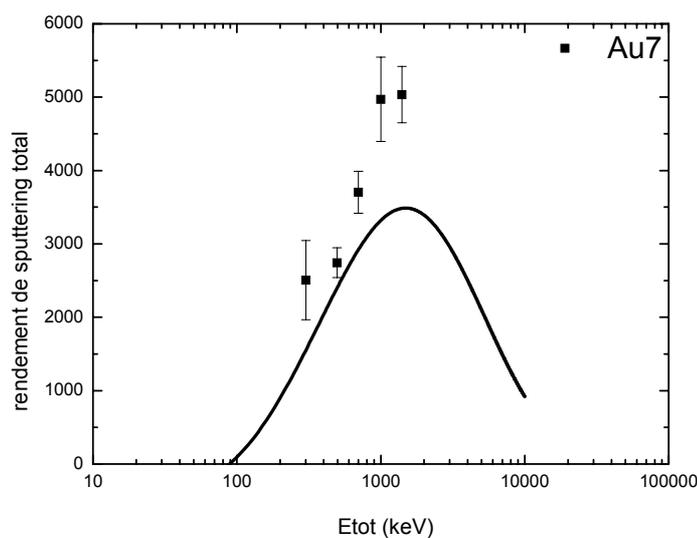


Figure IV-8 : Rendement de sputtering d'une cible d'or sous l'impact de clusters Au^{+}_7 . Les carrés pleins les données expérimentales, et le trait continu calcul de ce travail.

IV.6.Conclusion :

Pour interpréter les rendements de sputtering d'une surface d'or sous l'impact d'ions agrégat Au_n^+ , un modèle semi analytique a été développé. L'originalité de cette approche fait intervenir :

- La fragmentation du cluster au niveau de la surface de la cible en atomes qui pénètrent avec des énergies et des angles différents.
- En plus de la contribution des fragments au rendement de l'émission, la contribution de l'agrégat en tant que entité physique.
- Les deux contributions sont conditionnées par des probabilités dépendantes de l'énergie incidente et de la taille du cluster.
- D'une nouvelle approximation concernant le pouvoir d'arrêt des agrégats.

Les rendements calculés dans le cadre de cette approche par simulation Monte Carlo, sont en très bon accord avec les rendements mesurés jusqu'à la taille 5 du cluster incident. Pour des tailles supérieures à la taille 5, une nouvelle image de fragmentation est inscrite dans les perspectives de ce travail.

Conclusion Générale

Conclusion

L'étude de sputtering sous l'impact des ions atomiques aide à mieux comprendre les processus physiques liés aux agrégats.

A travers les différents résultats expérimentaux traités, nous avons constaté que le rendement total de sputtering métallique sous l'impact des ions atomiques lourds étaient assez bien reproduit par la théorie des cascades linéaire de Sigmund à des énergies incidentes relativement faibles.

L'application du modèle TS standard n'a pas permis de reproduire de façon satisfaisante le rendement expérimental dans le cas des systèmes traités. L'analyse de cette insuffisance a montré que le rayon de la géométrie utilisée dans ce modèle ne tient pas compte explicitement de l'énergie incidente et de l'aspect thermodynamique de la cible dû à la température engendré sous l'impact des ions incidents. Malgré, l'introduction de l'énergie incidente dans le paramètre libre du modèle du TS, par l'équipe d'Orsay, ceci n'a permis de reproduire que la forme du sputtering car le décalage par rapport aux points expérimentaux subsiste toujours.

Le calcul numérique explicite de la fonction g (sans approximation) avec l'introduction de l'énergie E_v correspondant à la chaleur latente de vaporisation de la cible a permis :

- de reproduire de façon satisfaisante le rendement expérimental de sputtering.
- de mettre en évidence l'influence de l'aspect thermodynamique de la cible au voisinage du maximum du rendement de sputtering.

Pour reproduire ce rendement expérimental, sur une gamme d'énergie qui va de quelques keV à quelques MeV, il est indispensable de tenir compte de la contribution des deux processus d'émission secondaire correspondants aux cascades linéaires et à l'évaporation à partir de la pointe thermique tout en introduisant l'énergie E_v .

Cette correction apportée au modèle d'évaporation a été utilisé dans le développement d'un modèle semi analytique afin d'interpréter les rendements de sputtering d'une surface d'or sous l'impact d'ions agrégat Au_n^+ .

L'originalité de cette approche fait intervenir :

- La fragmentation au niveau de la surface en atomes qui pénètrent avec des énergies et des angles différents.
- En plus de la contribution des fragments au rendement de l'émission, la contribution de l'agrégat en tant que entité physique.

- Les deux contributions sont conditionnées par des probabilités dépendantes de l'énergie incidente et de la taille du cluster.

- Une nouvelle approximation concernant le pouvoir d'arrêt des agrégats.

Les rendements calculés dans le cadre de cette approche par simulation Monte Carlo, sont en très bon accord avec les rendements mesurés jusqu'à la taille 5 du cluster incident. Pour des tailles supérieures une nouvelle image de fragmentation est inscrite dans les perspectives de ce travail.

REFERENCES

- [1] J.Lindhar, M. Schraff, and H.E.Schiott, Mat.Fys.Medd.Dan.Vib.Selsk.**33**,n°14 (1963)3.
- [2]K.B.Winterbon, P.Sigmund and J.B. Sanders Mat.Fys.Medd.Dan.Vib.Selsk.**37**,n°14.(1970).
- [3] J.Lindhar, V. Nielsen and M. Schraff , Kgl. Dan. Vidensk. Selsk. Mat.Fys.Medd.**36**,10 (1968)
- [4] K.B.Winterbon, Radiation Effects **13**,215(1972)
- [5]J.F. Ziegler, J.P.Biersack, and U. Littmark The Stopping and Range of Ions IN Solids(Pergamon Press, Inc. New York), (1985)
- [6]E.Rutheford,Phil.Mag.**21**(1911)669
- [7] P.Sigmund,Radiation Effects1.15(1969)
- [8] M. NastasiJ.W. Myer ,J.K. Hervonen, Ion-Solid Interaction (Fundamentals and Applications) Cambridge University Press (1996).
- [9] J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff and P.V. Thomsen, Mat. Fys. Medd.Dan. Vid. Selsk. **3**, 10 (1963).
- [10] J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff and P.V. Thomsen, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. **3**, 14 (1963).
- [11] T.J.Hoffman, H.L. Dodds, Jr,M.T. Robinson and D.K. Holmes, Nuclear Science and Engineering,68,204-211 (1978)
- [12] O.B.Firsov,Sov.Phys.JETP36(1959)1076.
- [13] H.A.Beth, Ann. Phys. Rev. **89**, 1256 (1953)
- [14] G.H. Kinchin and R.S. Pease Pert. Prog. Phys. 18,1 (1955)
- [15] M.T. Robinson Phil. Mag. 12, 741 (1965)
- [16] M.T. Robinson and O.S. Oen J. Nucl. Mater. 110, 147 (1982)
- [17] M.J.Norgett, M.T. Robinson, and I.M.Torrens, Nucl.Eng.Des.33,50 (1975)
- [18] Sputtering by Particule Bombardement I : Physical Sputtering of Single Elemet Solids, Topics in Applied Physicas Vol.**47**, R.Behrisch, ed.(Springer-Verlag,Berlin,1981)
- [19] A.DADA, Thèse de magister «
- [20] J.A.Brinkman, J. App.Phys.**25**,951(1954)
- [21] P. Sigmund, in Sputtering by Particle Bombardment I, ed. by R. Behrisch, Topics in Applied Physics, Springer Berlin, **47**, 9 (1981).
- [22] H.H.Andersen,P.Sigmund,RisóReport No.**103** ,(1965)
- [23]P.C.Zalm, J.Apll.Phys.**54**, 2660(1983)
- [24]Ch.Steinbrúchel ,App.Phys.,**A36**,37(1985) .

- [25] N.Matsunami et al. ,Atomic Data and Nuclear Data Tables,**31** N°1 (1984)
- [26] H.H.Andersen and H.L.Bay J.App.Phys. **46**,2416 (1975)
- [27] Y.Yamamura and H.Tawara Atom.Data Nucl.Data tables **62**, 149 (1996)
- [28]P.Sigmund, Phys.Rev.**184**, 383 (1969)
- [29]P.Sigmund, Phys.Rev.**187** , 768 (1969)
- [30]P.Sigmund & C. Claussen, J.App.Phys.**52**, (1981).
- [31] J. Sunner, A. Morales and P. Kebarle, Int. J. of Mass Spect. and Ion Proc. **86**, 169 (1988).
- [32]] H.M. Urbassek and K.T. Waldeer, Phys. Rev. Lett. **67**, 105 (1991).
- [33] D.E. David, T.F. Magnera, R-J. Tian, D. Stulik and J. Michl, Nucl. Instr. and Meth. B **14**, 378 (1986).
- [34] H.M. Urbassek and J. Michl, Nucl. Instr. and Meth. B **22**, 480 (1987).
- [35] R. Kelly, Nucl. Instr. and Meth. B **46**, 441 (1990).
- [36] M.J. Guinan, J. Nucl. Mater. **53**, 171 (1974).
- [37] R. Moshhammer, Thesis, Institute of Nuclear Physics, Technische Hochschule Darmstadt (1991).
- [38] W.Eckstein, C.Garcia-Rosales, J.Roth and W.Ottenberg, IPP9/82 (1993)
- [39] E.W.Thomas, R.K.Jenev, J.Botero, J.J.Smith and Yanghui Qiu, INDC(NDS)-287(1993)
- [40] J.Bohdansky , Nucl.Inst. and Meth. **B 2**, 587(1984)
- [41] S.Ninomia, C.Imada, M .Nagai, Y. Nakato, T.Aoki, J.Matsuo and N.Imamiski Nucl.Inst. and Meth. In Phys.Res. **B 230** 483,488 (2005)
- [42] T.Ono, Y.Aoki, T.Kawamura, T.Kenmotsu, Y.Yamamura (Received-sep.17, 2004) to be published.
- [43] C. Pedoussat Thèse de Doctorat de l'université de Toulouse III (1999).
- [44] A. Gras-Marti, H.M.Urbassek, N.R. Arista *et al.* Plenum Press, New York and London, Vol. **271**, 718.(1991)
- [45] W. Eckstein, Springer-Verlag, Berlin,Heidelberg and New York, (1991).
- [46] W.L. Morgan, Appl. Phys. Lett. **55** (2), 106-108 (1989).
- [47] G. Betz et K. Wien, International, J. Mass Spectrom. and Ion Processes **140**, 1-110 (1994).
- [48] M.Szymonski and A.E.De Vries, Phys.Lett. **63A** ,n° 3 ,359-360(1977)
- [49] W.R. Grove, Philos. Mag. **5**, 203 (1853).
- [50]S.Bouneau, A.Brunelle,S.Della-Negra,J.Depauw, .Jacquet, Y.LeBeyec, .Potrat,M.Falavier, J.CPoizat, H.H.Andersen, Phys.Rev.**B**(2002)144106.
- [51] S.S.Johar and D.A.Thompson, Surf .Sci, **90**, 319 (1979)
- [52] H.E.Shiótt, Kgl.Danske Videnskab. Selska, Mat.-Fys. Medd. **35**, N°9(1966)
- [53] H.H.Andersen,H.L.Bay,J.Appl.Phys.**45**,953,(1974)

- [54] D.A.Thompson and S.S.Johar. App. Phys. Lett. **34** ,342(1979)
- [55] H.H.Andersen.Mat. Fys. Medd.Dn.Vid.Selsk.43 (1993), 127
- [56]H.H.Andersen,A.Brunelle,S.Della-Negra, J.Depauw, D.Jacquet,Y.LeBeyec, J.Chaumont, H.Bernas, Phys.Rev.Lett.80(1998)5433
- [57] M.M.Jakas,E.M.Bringa, Phys.Nucl.Instr.and Meth.B 164-165 (2000) 687
- [58] Th.J.Colla,H.M. Urbassek,Nucl.Instr.and Meth.**B** 164-165(2000) 687)et (M.Lindenblatt, R.Heinrich,A.Wucher, B.J.Garrison, J.Chem .Phys 115(2001)8643)
- [59] A.Brunelle and S.Delle-Negra ,Nucl.Instr. and Meth.**B** 222 , 68-74 (2004)
- [60] V.I.Shulga, P.Sigmund Nucl.Instr. and Meth. **B 47**, 236 (1990)
- [61] H.H. Andersen A.Johensen ,M. Olsen V. Tuboltsev, Nucl.Instr. and Meth. **B 212** 56 (2003)
- [62] I. ADESIDA and L. KARAPIPERIS, Radiation Effects V^o**61** (1982)223-233.