

République Algérienne Démocratique et populaire
Ministère de l'enseignement supérieur et de la Recherche Scientifique
Université Mouloud Mammeri/ Tizi Ouzou



UMMTO

THESE DE DOCTORAT

Spécialité : Physique
Option : Sciences Nucléaires

Présentée par :

Touchrift Brahim

THEME

**Etude des mécanismes de perte d'énergie
des ions moléculaires légers dans les solides.**

Soutenu le 24 novembre 2021

devant le jury d'examen:

M. Aouchiche Hocine, Professeur/UMMTO,
M^{me} Salah Houria, Directeur de Recherche/CRNA,
M. Ziane AbdelHamid, Professeur/UMMTO,
M. Hassani Saoud, Directeur de Recherche/CRNA,
M. khelifi Rachid, Professeur/U. Blida,
M^{me} Hammoum Karima, Maitre de conférences A/UMMTO, Examinatrice.

Président
Directrice de la thèse
Co-Directeur de la thèse.
Examinateur
Examinateur

Examinatrice.

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Monsieur H. Aouchiche qui m'a fait l'honneur de présider le jury.

Messieurs S. Hassani, Directeur de Recherche au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, R. Khelifi, Professeur à l'Université Saad Dahleb de Blida 1 et Madame K. Hammoom, Maître de Conférence A à l'Université Mouloud Maamri de Tizi Ouzou ont manifesté leur intérêt pour ce travail en me faisant l'honneur de le juger. Je tiens à leur exprimer ici mes sincères remerciements.

Mes remerciements s'adressent particulièrement à Madame H. Salah, Directeur de Recherche au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, pour son investissement et son implication totale dans cette thèse.

Je tiens également à remercier Monsieur H. Ziane, Professeur à l'Université Mouloud Maamri de Tizi Ouzou co-Directeur de cette thèse, pour ses échanges et conseils prodigués lors de nos rencontres et appels.

Le Docteur C. Jeines de l'Université de Serrey (U.K), co-auteur du code IBA DataFurnace peut trouver ici toute ma gratitude pour tous ses conseils concernant l'utilisation du code IBA DataFurnace.

Je remercie Madame N. Benouali, Ingénieur d'état en informatique, Chercheur Confirmée au Centre de Recherche Nucléaire de Draria pour sa contribution à la réalisation des calculs numériques.

Je remercie Monsieur N. Souami, Chercheur Principal au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger pour la caractérisation des échantillons par microscopie électronique.

Mes remerciements vont également aux ingénieurs de laboratoire du service accélérateur Van de Graaff qui ont toujours fait le maximum pour nous donner le meilleur faisceau de particules possible.

Enfin je tiens à remercier le personnel du Service de la Post Graduation de la faculté des sciences de l'Université Mouloud Maamri de Tizi Ouzou pour leur efficacité et leur sympathie.

RESUME

Cette thèse a pour objet d'étudier l'évolution des processus dynamiques intervenant lors de l'interaction des molécules diatomiques avec des cibles solides. Nous avons, en particulier, discuté l'effet d'interférence se produisant entre les deux atomes constituant la molécule d'hydrogène, et l'influence de l'explosion Coulombienne sur l'élargissement de la perte d'énergie. Ces deux phénomènes sont rencontrés pendant le ralentissement des ions issus de la dissociation de la molécule H_2 en mouvement dans le milieu, sous l'effet du potentiel répulsif écranté.

Notre contribution à l'évaluation de la perte d'énergie de projectiles moléculaires porte, en premier lieu, sur le calcul numérique de la perte d'énergie des molécules H_2^+ dans l'aluminium en utilisant la théorie diélectrique de Lindhard et en exploitant les équations développées par N. Arista et les modèles GMR et L&S pour le confinement des électrons dans les solides.

Sur le plan expérimental, nous avons évalué ; (i) la variation de la distance inter-atomique en fonction de l'énergie incidente et le terme d'interférence, (ii) déterminé le rapport du pouvoir d'arrêt moléculaire/atomique pour les ions H_2^+ traversant une cible solide de silicium, (iii) utilisé la Diffusion Elastique Non Rutherford (EBS) pour la mesure de la perte d'énergie des ions H_2^+ dans l'aluminium, et (iv) appliqué les résonances des réactions $C^{12}(d,d_0)C^{12}$ et $Al^{27}(p,p_0)Al^{27}$ pour l'observation des effets de voisinage et de l'explosion Coulombienne.

Pour le traitement des données expérimentales, nous avons utilisé, pour la première fois, le code DataFurnace- développé à l'origine pour extraire les profils en profondeur à partir des spectres de l'analyse par faisceaux atomiques - pour déterminer l'accroissement de la perte d'énergie des faisceaux moléculaires à partir de l'analyse des spectres IBA.

Les résultats obtenus dans ce travail ont permis d'observer d'une manière simple et efficace l'effet de voisinage des ions en mouvement corrélé dans le silicium et l'aluminium. Les valeurs obtenues pour l'augmentation de la perte d'énergie et le facteur de l'élargissement de la perte d'énergie sont respectivement de 1,3 et 2, ce qui est en bon accord avec les résultats obtenus dans la littérature.

Ces résultats ont démontré l'applicabilité de la méthode EBS comme nouvelle approche à l'étude des effets moléculaires et la possibilité d'utiliser l'effet de voisinage pour détecter une résonance fine (quelques dizaines d'électronvolts), difficile à déterminer expérimentalement.

Mots clés : Pouvoir d'arrêt, Effet de voisinage, Explosion Coulombienne, DataFurnace, Diffusion Elastique, Techniques Nucléaires.

ABSTRACT

In this thesis the evolution of the dynamical processes involved in the interaction of diatomic molecules with solid targets are studied. We particularly, discussed the interference effect between the two atoms constituting the hydrogen molecule, and assessed the influence of the Coulomb explosion on the energy loss enlargement. These two phenomena are encountered during the slowing down of the ions resulting from the dissociation of the H_2^+ molecule traveling through a solid medium, under the effect of the screened repulsive potential.

Our contribution to evaluate the molecular projectile energy loss started with the numerical calculation of the energy loss of H_2^+ molecules in aluminum using the Lindhard dielectric theory. To describe the solid state electron density distribution we considered the equations developed by N. Arista and the GMR and L&S models.

Experimentally, we; (i) evaluated the variation of the inter-atomic distance as a function of the incident energy and the interference term, (ii) determined the molecular/atomic stopping power ratio for H_2^+ ions passing through a solid silicon target, (iii) applied the Non-Rutherford Elastic Scattering to measure the energy loss of H_2^+ ions in aluminum, and (iv) applied the $^{12}C(d,d0)^{12}C$ and $^{27}Al(p,p0)^{27}Al$ reactions, at resonances, to reveal the occurrence of vicinage and Coulomb explosion effects.

For data processing, we used for the first time, the DataFurnace code - originally developed to extract depth profiles from atomic beam analysis spectra- to determine the increase in energy loss of molecular ions with respect to atomic ones, from IBA spectra.

The results obtained in this work allowed the observation of the vicinage effect of ions in a correlated motion slowing down in silicon and aluminum targets, in a simple and efficient way. The values obtained for the energy loss enhancement and energy loss broadening factor are respectively, 1.3 and 2, which are considered to be in good agreement with the results found in the literature.

These results have also, demonstrated the applicability of the EBS method to study molecular effects and revealed the possibility of using the vicinage effect to detect fine resonances (a few tens of electron-volts), difficult to determine experimentally.

Key words: Stopping Power, Vicinage Effect, Coulomb Explosion, DataFurnace, Elastic Scattering, Nuclear Techniques.

GLOSSAIRE

ADC	Analogue to Digital Converter
amu	atomic mass unit
BI	Bayesian Inference
CAB	Cores and Bonds
EBS	Elastic Backscattering Spectrometry
ERDA	Elastic Recoil Detection Analysis
FEG	Free Electron Gas
FWHM	Full Width at Half Maximum
HP(Ge)	Germanium Hyperpur
IBA	Ion Beam Analysis
MCA	Multi-Channel Analyser
MCB	Multi-Channel Buffer
MCMC	Markov Chain Monte Carlo
NDF	Nuno's DataFurnace
NRA	Nuclear Reaction Analysis
NRP	Narrow Resonance Profiling
PIGE	Proton Induced Gamma Emission
PVD	Physical Vapor Deposition
PIXE	Proton Induced X-Ray Emission
RBS	Rutherford Backscattering Spectrometry
RPA	Random Phase Approximation
SA	Simulated Annealing
SSBD	Silicon Surface Barrier Detector
TFU	Thin Film Unit
VDG	Van De Graaff
WiNDF	Windows Nuno's DataFurnace
ZBL	Ziegler Biersack Littmark

Liste des figures

Figure 1.1. Spectres en énergie des particules α de 5.486 MeV traversant des feuilles de Ti de différentes épaisseurs [66].

Figure 1.2. Variation de ELF en fonction des paramètres u et z . Les contributions dues aux collisions proches et aux excitations plasmons sont indiquées respectivement par les régions (I) et (II).

Figure 1.3. Energie potentiel de Morse en fonction de la distance internucléaire (bleu). Le potentiel d'oscillateur harmonique est représenté en vert.

Figure 1.4. Géométrie de la technique RBS.

Figure 1.5. Spectre RBS obtenu pour une cible multicouches. Les éléments de masse plus élevées apparaissent aux énergies plus élevées.

Figure 1.6. Fonction d'excitation de la diffusion élastique $^{14}\text{N}(p,p)^{14}\text{N}$, mesurée au GANIL [77].

Figure 1.7. Rendement de la diffusion élastique des particules α sur l'oxygène, mesuré à 3,05 MeV et 165° [80].

Figure 1.8. Géométrie de la technique ERDA.

Figure 1.9. Spectre en énergie de l'hydrogène enregistré à partir de mesures ERDA [86] sur une cible a-C:H. La simulation est effectuée par le code SIMNRA [87].

Figure 1.10. Géométrie de la technique NRA-PIGE.

Figure 1.11. Diagramme du recuit simulé.

Figure 1.12 Environnement d'exécution du code NDF, avec des exemples de spectres simulés.

Figure 2.1. Schéma de la chambre d'analyse utilisée avec la chaîne électronique associée.

Figure 2.2. Variation du rendement de la réaction $^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$ en fonction de la fréquence.

Figure 3.1. Rapport du pouvoir d'arrêt calculé, pour une cible d'aluminium, en fonction de la distance internucléaire r_{12} , pour les vitesses $v = 1, 2, 5, 10$ u.a. Les interférences positives sont observées sur cette figure, dépendamment de r_{12} et v .

Figure 3.2. Fonction d'interférence I calculée pour Al en fonction de l'énergie incidente des ions H_2^+ . Modèle de l'atome libre de la distribution de la densité électronique : sans correction (ligne continue), avec correction GMR (ligne discontinue), avec correction L&S (en pointillé).

Figure 3.3. Rapport du pouvoir d'arrêt calculé pour Al en fonction de l'énergie des ions incidents H_2^+ . Utilisation du modèle de l'atome libre pour la distribution de la densité électronique sans correction de l'effet de l'état solide (ligne continue), avec correction GMR (courbe discontinue), correction L&S (courbe en pointillé).

Figure 3.4. Rapport du pouvoir d'arrêt calculé pour Al en fonction de l'énergie incidente des ions H_2^+ , pour les distances internucléaires $r_{12} = 1.06, 1.17$ and 1.29 \AA .

Figure 3.5. Spectres en énergie des réactions $^{12}\text{C}(d,d)^{12}\text{C}$ et $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$ obtenus pour une cible épaisse de $(\text{CH}_2)_n$ (échantillon de référence), non déformée. Les spectres correspondent au début et la fin d'une analyse réalisée à 1,2 MeV pendant une heure.

Figure 3.6. Spectres expérimental (symboles) et simulé (trait) correspondants à l'échantillon de référence; (a) simulation sans considérer la présence des pores, la structure est donnée à droite, (b) simulation en introduisant les pores à 55% dans la structure et (c) représente le profil en carbone.

Figure 3.7. Spectres en énergie obtenus par l'analyse d'un échantillon de $(\text{CH}_2)_n$ étiré. (—) spectre de référence, (\blacktriangle) spectre irradié à $2.3 \times 10^{15} \text{ at.cm}^{-2}$, (oo) spectre irradié à $2.4 \times 10^{15} \text{ at.cm}^{-2}$.

Figure 3.8. Spectres expérimentaux (symboles) et simulés avec le programme Datafurnace (trait) pour une dose de (a) $2.4 \times 10^{15} \text{ at.cm}^{-2}$, (b) $2.3 \times 10^{15} \text{ at.cm}^{-2}$.

Figure 3.9. Profils de concentration obtenus par DataFurnace ; (a) à partir de la réaction nucléaire et (b) à partir de la RBS. Les doses sont indiquées sur les figures.

Figure 3.10. Spectres enregistrés en série lors d'une irradiation continue de deux heures aux deutons de 1.2 MeV avec une intensité de 15 nA.

Figure 3.11. Spots observés à la surface du graphite utilisé comme support pour le polyéthylène, suite à une irradiation aux deutons de 1.2 MeV.

Figure 3.12. Figures géométriques créées à la surface du graphite supportant un échantillon de $(\text{CH}_2)_n$; (a) figure type Lichtenberg, (b) régions fondues sous l'effet d'impacts énergétiques. L'analyse de ces régions a montré qu'elles sont exclusivement formées de carbone.

Figure 3.13. Spectres RBS des ions H^+ et H_2^+ obtenus pour une cible de silicium à 1550 keV/u et 130° .

Figure 3.14. Spectres RBS des ions H^+ et H_2^+ obtenus pour une cible SIMOX à 990 keV/u et 165° .

Figure 3.15. Section efficace de la diffusion élastique $^{12}C(p,p)^{12}C$ mesurée autour de la résonance à 1.735 MeV à un angle de diffusion de 165° . La courbe en pointillés représente les données prises de la référence [118].

Figure 3.16. Spectres EBS des ions H^+ et H_2^+ obtenus à 1690 keV/uma et 165° , pour un film de Al (20 nm) déposé sur un substrat de graphite.

Figure 3.17. Spectres EBS expérimental (symbole) et simulé (trait continu), obtenus à 1690 keV et 165° pour une cible de 20 nm d'Al déposée sur du graphite avec (a) H^+ et (b) H_2^+ .

Figure 3.18. Spectres EBS obtenus à 1690 keV/uma et 165° pour une cible de 100 nm d'Al déposée sur du graphite avec un faisceau H^+ (trait continu) et H_2^+ (symbole).

Figure 3.19. Spectres EBS expérimental (symbole) et simulé (trait continu), obtenus à 1690 keV/uma et 165° pour une cible de 100 nm d'Al déposée sur du graphite avec un faisceau (a) H^+ et (b) H_2^+ .

Figure 3.20. Spectre en énergie obtenu pour une cible de C/Al/Au analysée avec un faisceau de protons de 1121 keV à 165° .

Figure 3.21. Courbe de rendement de la diffusion élastique des protons sur l'aluminium (symbole). La courbe en trait plein représente un fit mathématique des données expérimentales.

Figure 3.22. Courbe de rendement de la diffusion élastique des protons sur l'or (symboles). La courbe en trait plein représente un fit mathématique des données expérimentales.

Figure 3.23. Spectres EBS obtenus à 165° avec les ions H^+ et H_2^+ d'énergie 1121 MeV/atome.

Figure 3.24. Spectres en énergie EBS obtenus à 165° utilisant des ions H^+ à 1121 keV/at. (o) données expérimentales et (trait continu) spectre simulé.

Figure 3.25 Spectres en énergie EBS obtenus à 165° utilisant les ions H_2^+ de 1121 keV/at. (o) données expérimentales et (trait continu) spectre simulé.

Figure 3.26. Courbe de rendement de la diffusion élastique $C^{12}(d,d_0)C^{12}$, mesurée autour de la résonance 1440 MeV à un angle de diffusion de 165° .

Figure 3.27. Section efficace différentielle pour des deutons diffusés sur du carbone à 170° dans la gamme d'énergie 600-1980 keV [108].

Figure 3.28. Spectres en énergie expérimental (en rouge) et théorique (en bleu) de rétrodiffusion à 165° obtenus ; (a) pour les ions D^+ , (b) pour les ions D_2^+ .

Figure 3.29. Comparaison des spectres de la diffusion élastique $^{12}C(d,d)^{12}C$, obtenus à 165° avec les ions incidents D^+ (o) et D_2^+ (trait plein) d'énergie 1440 keV/at.

LISTE DES TABLEAUX

Table 1.1. Résumé des principales caractéristiques des codes d'analyse IBA

Table 2.1. Résonances utilisées pour la calibration de l'accélérateur.

Table 3.1. Résumé des résultats expérimentaux et théoriques obtenus dans ce travail.

Table 3.2. Paramètres d'ajustement déterminés à partir du traitement par le code Data Furnace des spectres en énergie pour les ions H^+ et H_2^+ .

TABLE DES MATIERES

RESUME	IV
ABSTRACT	V
GLOSSAIRE	VI
LISTE DES FIGURE	VIII
LISTE DES TABLEAUX	XII
INTRODUCTION GENERALE	1

PREMIERE PARTIE : BASES THEORIQUES

CHAPITRE 1 : RALENTISSEMENT DES PARTICULES CHARGEES DANS LA MATIERE

1.1	Introduction	7
1.2	Interaction des ions atomiques avec la matière	8
1.2.1	Pouvoir d'arrêt	8
1.2.2	Dispersion en énergie (straggling)	11
1.3	La Théorie diélectrique de Lindhard	12
1.3.1	La Constante diélectrique	14
1.3.1.1	Densité de charge électronique: Cas du gaz d'électrons libres	14
1.3.1.2	Densité de charges électroniques: distribution dans un solide	16
1.3.1.2.1	Modèle G.M.R (Gertner, Meron, Rosner)	16
1.3.1.2.2	Modèle L&S (Latta et Scanlon)	17
1.4	Interaction des ions moléculaires avec la matière	18
1.4.1	Fragmentation de la molécule	18
1.4.2	Application du formalisme diélectrique au calcul de la perte d'énergie des projectiles moléculaires	20
1.4.3	Le Modèle du gaz d'électrons	21
1.4.4	Cas des agrégats de vitesses élevées	22
1.5	La théorie de Bethe-Bloch	23

CHAPITRE 2 : TECHNIQUES D'ANALYSE PAR FAISCEAUX D'IONS

2.1	Introduction	27
2.2	Techniques d'analyse par rétrodiffusion de Rutherford (RBS)	28
2.2.1	Principe de base de la RBS	28
2.2.2	Cinématique	29
2.2.3	Section efficace de diffusion élastique	31
2.2.3.1	Diffusion élastique de Rutherford	31
2.2.3.2	Diffusion élastique Non- Rutherford(Résonante)	32
2.3	Technique d'analyse par détection du noyau de recul (ERDA)	34
2.3.1	Principe de base de l'ERDA	34
2.3.2	Cinématique	34
2.3.3	Section efficace de recul élastique	36
2.4	Technique d'analyse par réactions nucléaires (NRA et PIGE)	37
2.4.1	Principe de la méthode	37
2.4.2	Cinématique	38
2.4.3	Section efficace de réactions nucléaires	39
2.5	Technique d'analyse PIXE (Particle Induced X-ray Emission)	41
2.6	Méthodes du tracé des profils de concentration	42
2.6.1	Profil déterminé à partir du spectre en énergie des particules émises	42
2.6.2	Profil déterminé par balayage autour d'une résonance	43
2.7	Calcul du profil de concentration	43

CHAPITRE 3 : LE CODE IBA DATAFURNACE

3.1	Introduction	46
3.2	Description générale	47
3.3	Algorithme du code DataFurnace	49
3.3.1	La méthode du « recuit simulé » (simulated annealing)	49
3.3.2	Estimation des incertitudes par MCMC (Markov Chain Monte Carlo)	51
3.3.3	Inférence Bayésienne	52
3.3.4	Programme des itérations (Cooling schedule)	53
3.3.5	Algorithme SA dans le code NDF : Exemple	53
		55

3.4	Exécuter NDF DataFurnace	
3.4.1	Fichier géométrie	55
3.4.2	Fichier structure	55
3.4.3	Fichier batch	55
3.4.4	Unité utilisée pour la profondeur	55
3.5	Comparaison avec les autres codes d'analyse IBA	56

DEUXIEME PARTIE : LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL

CHAPITRE 1 : GENERALITES SUR LES ACCELERATEURS

1.1	Introduction	59
1.2	Les différents types d'accélérateurs	60
1.2.1	Accélérateurs électrostatiques	60
1.2.1.1	Accélérateur Van de Graaff	60
1.2.1.2	Accélérateur Tandem	62
1.2.2	Accélérateurs linéaires à radiofréquences ou Linac	62
1.2.3	Accélérateurs circulaires	63
1.3	Principe d'accélération	64
1.4	Source d'ions	65
1.4.1	Source d'ions à filament (source de type Freeman)	65
1.4.2	Source ECR	66
1.5	Transport de faisceaux	66
1.5.1	La lentille électrostatique	68
1.5.2	Le Secteur magnétique	68
1.5.3	La Lentille magnétique (et lentille quadripolaire pour les champs forts)	69

CHAPITRE 2 : INSTRUMENTATION

2.1	Introduction	72
2.2	Chambre d'analyse et électronique d'acquisition	72
2.2.1	La chambre d'analyse	72
2.2.2	Les détecteurs	73
2.2.2.1	Détecteurs de particules chargées	73
2.2.2.2	Détecteurs de photons	74
2.2.3	Le préamplificateur	74

2.2.4	L'amplificateur	74
2.2.5	La carte d'acquisition	74
2.3	Elaboration des cibles	75
2.3.1	Préparation des substrats	75
2.3.2	Dépôt des couches minces	75
2.4	Etalonnage de l'accélérateur	75
2.5	Sources d'erreurs	79
2.5.1	Mesure de la charge	79
2.5.2	Identification des particules	80
2.5.3	Empilements	80
2.5.4	Bruit Electronique	80
 TROISIEME PARTIE : RESULTATS 		
INTRODUCTION		83
		86
CHAPITRE 1 :	APPLICATION DU FORMALISME DIELECTRIQUE DE LINDHARD AU CALCUL DE LA PERTE D'ENERGIE DES IONS H_2^+ DANS L'ALUMINIUM	91
CHAPITRE 2 :	APPLICATION DU CODE DATAFURNACE AU TRAITEMENT DES SPECTRES IBA	
2.1	Mode Expérimental	92
2.2	Résultats	93
2.3	Discussion des résultats	95
CHAPITRE 3 :	DETERMINATION DU RAPPORT DES POUVOIRS D'ARRET MOLECULAIRE ET ATOMIQUE DE L'HYDROGENE AVEC LA METHODE DE RETRODIFFUSION RUTHERFORD	101
3.1	Mode expérimental	102
3.2	Evaluation expérimentale du rapport des pouvoirs d'arrêt moléculaire et atomique	
3.3	Conclusion	105
CHAPITRE 4 :	UTILISATION DE LA DIFFUSION ELASTIQUE NON-RUTHERFORD $^{12}C(P,P)^{12}C$ POUR LA MESURE DE LA PERTE D'ENERGIE DES IONS H_2^+ DANS L'ALUMINIUM	106

CHAPITRE 5 :	ETUDE DE L'EFFET DE VOISINAGE EN UTILISANT LES RESONANCES A 1121 KEV DE LA DIFFUSION ELASTIQUE ^{27}Al (P,P) ^{27}Al ET 1440 KEV DE LA DIFFUSION ELASTIQUE ^{12}C (D,D) ^{12}C	115
5.1	Introduction	116
5.2	Courbe d'excitation de la diffusion élastique ^{27}Al (p,p) ^{27}Al	116
5.3	Observation de l'effet de voisinage en utilisant la diffusion élastique ^{27}Al (p,p) ^{27}Al	
5.4	Courbe de rendement de la diffusion élastique ^{12}C (d,d) ^{12}C	122
5.5	Observation de l'effet de voisinage en utilisant la diffusion élastique ^{12}C (d,d) ^{12}C	123
5.6	Conclusion	125
	CONCLUSION GENERALE	126
	REFERENCES	129

INTRODUCTION GENERALE

Les interactions entre des projectiles atomiques et des cibles solides ont été étudiées de manière intensive depuis les travaux d'Ernest Rutherford en 1911 [1] et Niels Bohr en 1913 [2], menés pour le calcul de la perte d'énergie des particules chargées dans la matière. Lorsqu'une particule chargée rapide pénètre dans un solide, elle perd son énergie principalement par interaction avec les électrons du milieu traversé; soit par collisions binaires avec les électrons du milieu [3,4], ou par excitation collective des électrons du milieu [5-7]. L'approche adoptée pour l'évaluation du pouvoir d'arrêt considérait que la réaction du solide à un faisceau d'ions s'obtenait en superposant ses réactions à l'impact de chacun des ions, supposant qu'à l'intérieur du solide les ions ne se voyaient plus. Cette approche n'est pas valable quand il s'agit d'un faisceau formé par des agrégats d'atomes. L'expérience a montré que le pouvoir d'arrêt mesuré pour des agrégats ou molécules d'ions rapides pénétrant dans un milieu solide est considérablement accru par rapport à celui de la somme de l'énergie perdue par chaque atome de l'agrégat, pris individuellement. Ceci est expliqué par la perturbation provoquée par l'ion principal sur celui qui le précède, suite à l'éclatement de l'agrégat, due à l'explosion Coulombienne [8-14]. Des efforts considérables ont été déployés par la suite, pour mettre en évidence l'effet des ions moléculaires interagissant avec des couches minces pour l'étude de la perte d'énergie. Plusieurs résultats expérimentaux sont rapportés, en particulier depuis les deux dernières décennies [14-22].

Le pouvoir d'arrêt des matériaux pour les projectiles moléculaires est devenu un sujet d'intérêt croissant dans la mesure où leur utilisation permet de déposer de grandes quantités d'énergie, nécessaires dans des applications telles que la radiothérapie et en astrophysique. En outre, les effets de voisinage et le phénomène de l'explosion Coulombienne peuvent être exploités pour la caractérisation des matériaux. A ce titre, une nouvelle technique basée sur l'explosion Coulombienne a été développée pour mesurer de façon précise et directe, l'épaisseur des films minces [23,24]. Par ailleurs, de nombreux efforts sont dédiés à l'étude de l'interaction dynamique des ions moléculaires avec les

solides pour comprendre l'effet de voisinage comme phénomène physique [25]. N. Arista a publié un papier détaillé à ce sujet [26].

L'interaction des agrégats d'ions rapides avec les solides a commencé par l'étude de la transmission des ions H_2^+ dans des feuilles de carbone, par Poizat et Remillieux [11]. Mais, le premier travail important soulignant, de manière quantitative, la perte d'énergie accrue due à l'effet de voisinage a été rapporté par W. Brandt et ses collaborateurs [12]. Leurs mesures traitent de l'effet de proximité des ions dans des amas de di- et tri-protons, transmis par des feuilles de carbone et d'or de 100 keV/nucléon d'énergie. Ils ont souligné l'importance de l'évolution temporelle de la distance internucléaire entre les ions fragmentés sous l'effet de voisinage. Par la suite, de nombreux travaux théoriques [27-29] et expérimentaux [30-33] ont été consacrés à l'évaluation du rapport du pouvoir d'arrêt pour différents types et tailles des agrégats, et à la discussion des paramètres qui régissent le mouvement corrélé des fragments des agrégats. Nous devons toutefois admettre le nombre réduit de documents disponibles, par rapport à la compilation des travaux de Ziegler sur le pouvoir d'arrêt expérimental des différents matériaux pour les ions atomiques [34]. D'autre part, des efforts considérables, impliquant à la fois de petits groupes d'ions [27,29-31] et des plus lourds [32,35-41], ont été entrepris pour expliquer les résultats quantitatifs obtenus pour l'augmentation du pouvoir d'arrêt des agrégats, par rapport à la somme des ralentissements de chacun des ions, calculés dans des conditions similaires. Les résultats expérimentaux disponibles à ce jour concernent principalement les milieux solides interagissant avec les ions d'hydrogène H_2^+ et H_3^+ [42-46]. Cela est dû en particulier, à la disponibilité des installations pour leur production dans de nombreux laboratoires et à l'application réussie de la théorie à des fins d'analyse et de comparaison.

Les premières expériences impliquant des agrégats d'hydrogène dans des feuilles minces auto portées ont obtenu, par des mesures en transmission, un rapport du pouvoir d'arrêt des molécules à celui des atomes de 1,2. Plus récemment, la valeur maximale de 2,0 a été atteinte pour les faisceaux moléculaires H_3^+ en utilisant la résonance de la réaction nucléaire $^{18}O(p, \alpha)^{15}N$ à 151,2 keV [19], ce qui est en bon accord avec la théorie. Dans le même contexte, la rétrodiffusion de Rutherford (RBS) a été utilisée pour extraire avec précision les pouvoirs d'arrêt à partir des spectres en énergie, pour des cibles épaisses. Cette méthode, en combinaison avec des cibles SIMOX, s'est avérée particulièrement

appropriée pour les mesures de perte d'énergie des ions H_2^+ et H_3^+ dans le silicium (amorphe et cristallin) [47-52]. Dans un travail plus récent [53], les effets de voisinage et de l'explosion Coulombienne ont été étudiés en fonction de la profondeur pour des cibles épaisses de nitrure de silicium Si_3N_4 et de dioxyde de silicium SiO_2 , en utilisant les résonances étroites des réactions nucléaires (NRP).

L'objet de cette thèse est l'étude, tant qualitative que quantitative, des phénomènes de voisinage et de l'explosion Coulombienne en fonction de la nature de l'agrégat, de sa vitesse et de l'épaisseur de la cible, en utilisant les techniques IBA (Ion Beam Analysis).

On a considéré les ions H_2^+ et D_2^+ délivrés par l'accélérateur VDG de 3.75 MV du CRNA. Les mesures de pertes d'énergie des ions moléculaires sont effectuées en utilisant ; (i) la méthode RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry), (ii) la diffusion élastique Non Rutherford (EBS) et (iii) les résonances à 1121 keV et à 1440 keV, respectivement des réactions $^{27}Al(p,p)^{27}Al$ [41] et $^{12}C(d,d)^{12}C$ [54,55]. Afin de mieux contrôler la qualité de nos résultats, nous avons également, mesuré les rendements des diffusions élastiques utilisées dans nos conditions de travail. Les résultats des mesures ont été utilisés pour le traitement des données expérimentales.

Le traitement des données a été assuré en utilisant le code DataFurnace, développé à l'origine pour extraire les profils en profondeur à partir des spectres d'analyse par faisceaux d'ions. Le traitement théorique des effets de voisinage a été effectué en introduisant les équations établies par N. Arista dans le programme utilisé à l'origine pour le calcul numérique de la perte d'énergie des ions atomiques.

Ce manuscrit est organisé en trois parties. La première partie est dédiée aux bases fondamentales nécessaires à l'accomplissement de ce travail. Dans les trois chapitres de cette partie, on décrit brièvement et respectivement, (i) la théorie du ralentissement des ions atomiques légers dans la matière, ainsi que le formalisme diélectrique de Lindhard, utilisé dans notre cas pour l'étude des effets de corrélation, (ii) les concepts physiques des différentes techniques d'analyse utilisant les faisceaux d'ions, communément nommées méthodes IBA, et (iii) l'outil de simulation IBA DataFurnace, utilisé pour le traitement de nos données expérimentales.

La description détaillée des conditions expérimentales est présentée dans la deuxième partie du manuscrit. Celle-ci concerne les accélérateurs avec une brève description des sources d'ions et le transport du faisceau dans le chapitre 1 de cette partie, et l'instrumentation en rapport avec les expériences menées. Le chapitre 2 décrit la chambre à réactions, la chaîne d'acquisition et la préparation des cibles. La troisième et dernière partie présente les différents résultats obtenus avec les interprétations correspondantes. Cette partie est organisée en cinq chapitres. Dans le premier chapitre, on présente les résultats obtenus par l'application du formalisme diélectrique de Lindhard au calcul de la perte d'énergie des ions H_2^+ dans l'aluminium. Dans le deuxième chapitre sont donnés les résultats d'une étude menée pour suivre les effets des analyses par faisceaux d'ions sur des cibles fragiles comme les polymères. Nous avons utilisé le $(CH_2)_n$. Le traitement des données étant effectué avec le programme DataFurnace dans le but de le maîtriser.

Le rapport des pouvoirs d'arrêts moléculaire et atomique de l'hydrogène, déterminé avec la méthode de rétrodiffusion Rutherford, est présenté dans le chapitre trois et les résultats de l'utilisation de la diffusion élastique non-Rutherford $^{12}C(p,p)^{12}C$ pour la mesure de la perte d'énergie des ions H_2^+ dans l'aluminium sont donnés dans le chapitre quatre de cette partie. Le chapitre cinq est consacré à l'application de la résonance 1121 keV de la diffusion élastique $^{27}Al(p,p)^{27}Al$ et 1440 keV de la diffusion élastique $^{12}C(d,d)^{12}C$, à l'étude qualitative de l'effet de voisinage.

PREMIÈRE PARTIE

BASES THEORIQUES

Chapitre 1. Ralentissement des particules chargées dans la matière.

Chapitre 2. Techniques d'analyse par faisceaux d'ions.

Chapitre 3. Le Code IBA DataFurnace.

CHAPITRE 1

Ralentissement des particules chargées dans la matière

- 1.1 Introduction
- 1.2 Interaction des ions atomiques avec la matière
 - 1.2.1 Pouvoir d'arrêt
 - 1.2.2 Dispersion en énergie (straggling)
- 1.3 La Théorie diélectrique de Lindhard
 - 1.3.1 La Constante diélectrique
 - 1.3.1.1 Densité de charge électronique: Cas du gaz d'électrons libres
 - 1.3.1.2 Densité de charges électroniques: distribution dans un solide
 - 1.3.1.2.1 Modèle G.M.R (Gertner, Meron, Rosner)
 - 1.3.1.2.2 Modèle L&S (Latta et Scanlon)
- 1.4 Interaction des ions moléculaires avec la matière
 - 1.4.1 Fragmentation de la molécule
 - 1.4.2 Application du formalisme diélectrique au calcul de la perte d'énergie des projectiles moléculaires.
 - 1.4.3 Le Modèle du gaz d'électrons
 - 1.4.4 Cas des agrégats de vitesses élevées.
- 1.5 La théorie de Bethe-Bloch

1.1 Introduction

Le ralentissement des ions rapides dans la matière a fait l'objet de beaucoup de travaux, notamment théoriques, en raison des multiples applications rencontrées dans divers domaines de la physique. Toutes les études menées ont négligé les phénomènes de voisinage entre les ions du faisceau. On a considéré que la perte d'énergie s'obtenait en superposant les pertes d'énergies de chacun des ions. Cette approximation est justifiée car la distance entre les ions est assez grande pour permettre au système ion-matière de retrouver son état d'équilibre avant l'arrivée de l'ion suivant. Ce qui n'est pas exact pour les agrégats ou molécules d'ions dont les distances internucléaires ne donnent pas au milieu ralentisseur assez de temps pour se relaxer avant d'être excité de nouveau par un autre ion. La force de freinage agissant sur un constituant de l'agrégat peut être affectée par la présence de ses partenaires.

Une molécule ou plus généralement un agrégat d'ions rapide se déplaçant dans une cible solide perd ses électrons de valence dans les toutes premières couches atomiques. Ceci se produit généralement dans un temps de l'ordre de la femtoseconde (fs). L'état de charge est rapidement équilibré ($\cong 1\text{fs}$). Lorsque le projectile pénètre profondément dans la cible, les excitations électroniques présentent des effets d'interférence dues à la proximité des ions constituant la molécule. Cet effet est nommé effet de voisinage (vicinage effect), qui produit des interférences constructives conduisant à une augmentation de la perte d'énergie. En pénétrant plus profondément dans la cible, les ions constitutifs du projectile soumis aux forces de répulsion Coulombienne se dispersent spatialement. Ce phénomène nommé "explosion Coulombienne" se produit pendant une dizaine de fs.

On ne peut étudier les effets collectifs des ions sur le pouvoir d'arrêt sans étudier le ralentissement des ions isolés dans un solide. Une particule chargée rapide de vitesse supérieure à la vitesse de Bohr ($v_0=2.18 \cdot 10^8 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$) en mouvement dans un solide, interagit avec les électrons des atomes par collisions binaires qui correspondent aux modes d'excitation individuels du solide, ou par interactions distantes correspondant aux modes collectifs d'excitation du solide. Dans ce dernier cas le milieu ralentisseur comme décrit dans la théorie diélectrique par Lindhard et Winter [56], est constitué par des cœurs d'ions positifs entourés d'un nuage d'électrons.

Ce chapitre est dédié à l'analyse théorique du phénomène de voisinage en considérant la vitesse du projectile moléculaire, la distance internucléaire et les paramètres définissant le gaz d'électrons libres, appliqué dans le modèle de Thomas-Fermi pour représenter le solide-cible.

Nous exposons dans la première section de ce chapitre, la théorie de Lindhard appliquée à l'analyse physique et mathématique du processus de ralentissement d'un projectile atomique. Nous étudierons ensuite la perte d'énergie de la molécule H_2^+ dans une cible d'aluminium par l'extension des calculs précédents, en introduisant le traitement développé par N. Arista [27] pour considérer l'effet de voisinage dans le calcul du pouvoir d'arrêt.

1.2 Interaction des ions atomiques avec la matière

1.2.1 Pouvoir d'arrêt

La connaissance de la perte d'énergie des ions dans les solides est nécessaire pour évaluer l'épaisseur de la couche analysée, déterminer la composition et les profils de concentration, étudier l'inter-diffusion aux interfaces des films minces, etc. Plusieurs paramètres sont impliqués dans le calcul du pouvoir d'arrêt; le potentiel d'interaction, les corrections de couches, les effets de densité, l'écrantage de la charge des noyaux cibles, etc. SRIM (Stopping and Ranges of Ions in Materials) [57] est incontestablement le programme le plus utilisé dans les calculs des sections efficaces d'arrêt dans la matière. Les nombreuses mesures expérimentales ont permis à Ziegler et al. d'établir un modèle semi-empirique permettant d'obtenir une très bonne estimation du pouvoir d'arrêt dans les matériaux. Dans ce modèle, le pouvoir d'arrêt pour les protons est calculé à partir des équations suivantes [58]:

$$-\frac{dE}{\rho dx} = S(E) = \frac{602.22}{A} \cdot \frac{S_L S_H}{S_L + S_H} \quad (1.1)$$

$$S_L = aE^b + cE^d \quad (1.2)$$

$$S_H = \left(\frac{e}{Ef}\right) \ln\left(\frac{g}{E} + hE\right) \quad (1.3)$$

Les coefficients a, b, c, d, e, f, g et h dépendent du numéro atomique Z de l'élément cible, A est la masse atomique de l'élément, E est l'énergie du proton en keV.

Pour des ions plus lourds que les protons, le pouvoir d'arrêt électronique peut être calculé à partir de celui des protons en utilisant la loi d'échelle (Ziegler, 1977) [58]:

$$S_E = \frac{S_e^{ref} (\gamma Z_1)^2}{(Z_1^{ref})^2} \quad (1.4)$$

où S_e^{ref} et Z_1^{ref} sont le pouvoir d'arrêt et la charge nucléaire d'un ion se déplaçant à la même vitesse que l'ion incident, pris comme référence ($Z_1^{ref} = 1$ pour un proton), γZ_1 est la charge effective de l'ion incident. Le paramètre γ dépend de la vitesse du projectile.

Le pouvoir d'arrêt dans une substance composée de molécules peut être estimé par une combinaison linéaire des pouvoirs d'arrêt des éléments constituant la molécule, normalisés par rapport à leurs abondances dans le composé. Cette combinaison linéaire est connue sous le nom de la règle d'additivité de Bragg. Dans le cas d'un milieu composé d'une molécule $A_m B_n$, le pouvoir d'arrêt est calculé à partir de l'expression [59]:

$$S_e(A_m B_n) = m S_e(A) + n S_e(B) \quad (1.5)$$

Si cette règle a donné de bons résultats pour certains composés, des limites existent encore pour d'autres composés, notamment les composés organiques et les oxydes, et plus généralement les composés dont les électrons sont fortement liés. Comme alternative à cette règle, une autre approche tenant compte des liaisons chimiques des électrons est considérée ; le modèle CAB. Dans cette approche deux contributions au pouvoir d'arrêt sont considérées; une provenant du cœur de l'atome et l'autre des électrons de valence, d'où son appellation Core And Bonds (CAB) [60]. L'expression du pouvoir d'arrêt dans ce modèle est donnée par:

$$S_{comp}(V) = \sum_i^{coeurs} S_i^{coeur}(V) + \sum_j^{liaisons} S_j^{liaison}(V) \quad (1.6)$$

Les mécanismes d'interaction par lesquels l'ion perd de l'énergie sont : (i) excitation ou ionisation des électrons de la cible (perte d'énergie électronique), (ii) collisions élastiques avec les noyaux des atomes de la cible (perte d'énergie nucléaire) [61].

Selon le processus collisionnel considéré, les pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire sont bien définis. Ces deux contributions sont d'usage à être séparées, et leur sommation permet d'obtenir le pouvoir d'arrêt total:

$$S(E) = \left. \frac{dE}{dx} \right|_{elec.} + \left. \frac{dE}{dx} \right|_{nucl.} \quad (1.7)$$

En considérant les conditions des analyses IBA, la composante électronique s'avère prépondérante. La composante nucléaire pouvant conduire au déplacement des atomes lors des chocs balistiques (conservation de l'énergie et du moment cinétique) est faible et n'intervient qu'aux faibles énergies. Dans le domaine d'énergie de quelques centaines de keV et dans le cas des protons, le ralentissement nucléaire est négligeable.

L'ion projectile en mouvement cède de l'énergie au milieu traversé et sa vitesse diminue jusqu'à son arrêt total dans le cas d'une cible épaisse. Le pouvoir d'arrêt total permet d'évaluer le parcours R de l'ion dans la matière à partir de l'équation [60]:

$$R = \int_{E_0}^0 \frac{1}{S(E)} dE \quad (1.8)$$

avec
$$S(E) = \frac{dE}{dx} (E) \quad (1.9)$$

E_0 est l'énergie de la particule incidente à la surface de la cible. La perte d'énergie dans la cible est tout simplement l'intégrale du pouvoir d'arrêt sur la distance parcourue.

1.2.2 Dispersion en énergie (straggling)

La dispersion en énergie résulte de la nature statistique des processus de perte d'énergie des particules chargées dans la matière. Cette dispersion, décrite par une gaussienne, est généralement connue sous le nom de "straggling". Elle est donnée par l'expression dite de Bohr [62] qui représente la variance de la moyenne des pertes d'énergie:

$$\Omega_B^2 = 4\pi(z e^2)^2 N_A Z x \quad (1.10)$$

z et Z sont les numéros atomiques du projectile et de la cible, respectivement. e est la charge de l'électron. N , la densité atomique de la cible et t son épaisseur. Cette formule est valable pour des vitesses élevées des particules ($v \gg v_B$), v_B étant la vitesse de Bohr. Les électrons de la cible sont considérés libres et le projectile complètement ionisé.

Plusieurs auteurs ont contribué à l'amélioration de la théorie de Bohr. A ce titre, nous citons les corrections proposées par Lindhard et Scharff [63] pour les ions de faibles vitesses. Bonderup et Hvelplund [64] ont raffiné le formalisme de Lindhard et Scharff en améliorant la description de la cible au moyen du modèle atomique de Lenz-Jensen. Chu [65] a par la suite, amélioré cette théorie pour les protons et les ions de l'hélium, en introduisant le modèle des orbitales atomiques de Hartree-Fock-Slater pour décrire les électrons de la cible. La figure 1.1 montre l'effet du straggling sur les spectres en énergie des particules α traversant des feuilles de Ti d'épaisseur variant entre 0.87 et 6.25 mg/cm^2 [66].

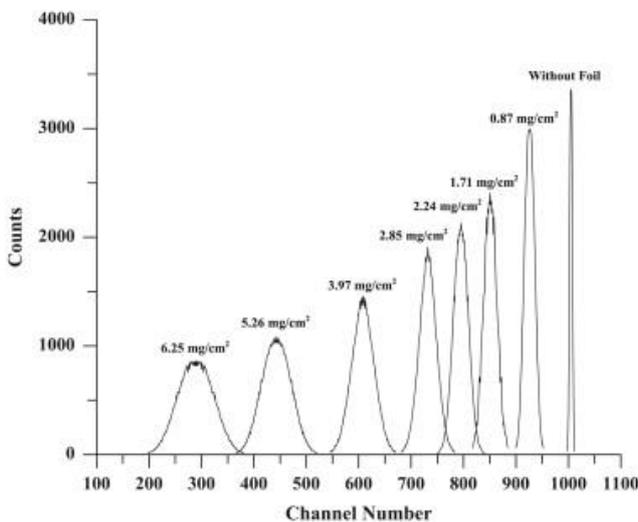


Figure 1.1. Spectres en énergie des particules α de 5.486 MeV traversant des feuilles de Ti de différentes épaisseurs [66].

1.3 La Théorie diélectrique de Lindhard

Une particule se déplaçant dans un milieu solide avec une vitesse v crée un champ induit qui agit sur l'ion et le ralentit. L'approximation de base dans la théorie diélectrique est de considérer l'effet de la particule comme une perturbation; ce qui simplifie cette théorie au traitement des paramètres du milieu ralentisseur. Ce milieu peut être considéré comme un gaz d'électrons libres dont les paramètres sont décrits par les constantes diélectriques transversale $\varepsilon^{tr}(k, \omega)$ et longitudinale $\varepsilon^l(k, \omega)$ qui sont des fonctions complexes du nombre d'onde et de la fréquence. La probabilité de transférer une quantité d'énergie $\hbar\omega$ et un moment $\hbar k$ au milieu est proportionnelle à la partie imaginaire de l'inverse de la fonction de réponse diélectrique ε^l , appelée fonction perte d'énergie ou ELF (Energie Loss Function). Soit :

$$ELF = \text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon(\omega, k)} \right] \quad (1.10)$$

C'est à partir de cette fonction que seront calculées les sections efficaces d'arrêt des particules chargées, dans le cadre du modèle diélectrique de Lindhard [56].

Dans les calculs du pouvoir d'arrêt, on suppose le plus souvent que les ions du faisceau incident sont ponctuels et totalement séparés les uns des autres. Cette hypothèse s'avère invalide dans le cas de faisceaux constitués de molécules ou d'agrégats d'atomes (clusters). Leurs positions relatives influent fortement sur les résultats du pouvoir d'arrêt calculé.

Nous rappelons dans ce qui suit les principales phases de calcul du ralentissement dans le cas d'un gaz d'électrons libre, formulé de façon détaillée par Lindhard et Winter [56]. Arista [27] a par la suite, traité le cas de la perte d'énergie d'un faisceau de molécules et d'agrégats d'atomes en se basant sur le formalisme diélectrique.

Il s'agit dans ce modèle d'étudier la perturbation du milieu qui devient polarisé, suite au déplacement des électrons du milieu par le passage de la particule incidente. Ceci induit un champ électrique $\vec{E}_{ind}(\vec{r}, t)$, à partir du potentiel électrique $\Phi(\vec{r}, t)$ ($\vec{E}_{ind}(\vec{r}, t) = \nabla\Phi(\vec{r}, t)$), et une force de freinage $\vec{F}_{ind} = Z_1 e \vec{E}_{ind}(\vec{r}, t)$, dirigés en sens inverse du

mouvement du projectile. $\Phi(\vec{r}, t)$ est généré par une densité de charge $\rho(\vec{r}, t)$, exprimée par la distribution de Dirac :

$$\rho(\vec{r}, t) = Z_1 e \delta(\vec{r} - \vec{v}t) \quad (1.11)$$

pour une particule de charge $Z_1 e$ et de vitesse \vec{v} .

La relation entre $\Phi(\vec{r}, t)$ et $\rho(\vec{r}, t)$ est donnée par l'équation de poisson :

$$\varepsilon(\vec{r}, t) \nabla^2 \Phi(\vec{r}, t) = 4\pi \rho(\vec{r}, t) \quad (1.12)$$

où $\varepsilon(\vec{r}, t)$ est la constante diélectrique qui traduit les propriétés électromagnétiques du milieu.

La transformée de Fourier permet d'exprimer le potentiel d'interaction charge-milieu dans le domaine fréquentiel:

$$\Phi(\vec{k}, \varepsilon) = 4\pi \frac{\rho(\vec{k}, \omega)}{k^2} \frac{1}{\varepsilon(\vec{k}, \omega)} \quad (1.13)$$

En développant le potentiel électrique induit, on obtient l'expression de la force de freinage qui agit sur le projectile, pour un gaz d'électron de densité n , soit:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi Z_1 e^4}{mv^2} n L \quad (1.14)$$

où m est la masse de l'électron, et L une quantité sans dimension :

$$L = \frac{i}{\pi \omega_0^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_{-kv}^{kv} \omega d\omega \left(\frac{1}{\varepsilon^l(k, \omega)} - 1 \right) \quad (1.15)$$

ω_0 étant la fréquence plasma donné par :

$$\omega_0^2 = \frac{4\pi n e^2}{m} \quad (1.16)$$

1.3.1 La Constante diélectrique

1.3.1.1 Densité de charge électronique: Cas du gaz d'électrons libres

Le ralentissement d'une particule chargée en fonction de sa vitesse peut être calculé, connaissant la constante diélectrique. Pour un gaz d'électrons libre, le traitement par la théorie des perturbations conduit à la formule générale suivante :

$$\varepsilon^l(k, \omega) = 1 + \frac{2m^2 \omega_0^2}{\hbar^2 k^2} \sum_n \frac{f(E_n)}{N} \left\{ \frac{1}{k^2 + 2\vec{k} \cdot \vec{k}_n - \frac{2m}{\hbar}(\omega + i\delta)} + \frac{1}{k^2 + 2\vec{k} \cdot \vec{k}_n + \frac{2m}{\hbar}(\omega + i\delta)} \right\} \quad (1.17)$$

E_n et k_n sont respectivement l'énergie et le vecteur d'onde de l'électron dans l'état n . Dans le cas d'un gaz de Fermi dégénéré, la fonction de distribution $f(E_n) = 1$ pour $E_n < E_F$ et $f(E_n) = 0$ pour $E_n > E_F$. L'énergie de Fermi est liée à la densité n du gaz par la relation :

$$E_F = \frac{1}{2} m v_F^2 = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m} = \frac{\hbar^2}{2m} (3\pi^2 n)^{\frac{2}{3}} \quad (1.18)$$

$$\varepsilon^l = 1 + \frac{\chi^2}{z^2} \{f_1(u, z) + i f_2(u, z)\} \quad (1.19)$$

avec :

$$f_1(u, z) = \frac{1}{2} + \frac{1}{8z} [1 - (z - u)^2] \log \left| \frac{z - u + 1}{z - u - 1} \right| + \frac{1}{8z} [1 - (z + u)^2] \log \left| \frac{z + u + 1}{z + u - 1} \right| \quad (1.20)$$

et

$$f_2 = \begin{cases} \frac{\pi}{2} u, & \text{pour } z + u < 1 \\ \frac{\pi}{8z} [1 - (z - u)^2], & \text{pour } |z - u| < 1 < z + u \\ 0, & \text{pour } |z - u| > 1 \end{cases} \quad (1.21)$$

Les variables k et ω sont remplacées par les variables sans dimension z et u , où

$$z = \frac{k}{2k_F} \quad \text{et} \quad u = \frac{\omega}{kv_F}.$$

Le paramètre χ^2 dans (1.19) est défini par :

$$\chi^2 = \frac{e^2}{\pi \hbar v_F} \quad (1.22)$$

C'est la mesure du rapport entre l'énergie potentielle et l'énergie cinétique de deux particules voisines. Ce qui montre que l'approximation de particules libres est valable uniquement pour les faibles valeurs de χ^2 .

En introduisant la constante diélectrique, le facteur L prend la forme :

$$L = \frac{-6}{\pi \chi^2} \int_0^{v/v_F} u du \int_0^\infty z dz \operatorname{Im} \left(\frac{1}{\varepsilon^l} - 1 \right) \quad (1.23)$$

$$= \frac{6}{\pi} \int_0^{v/v_F} u du \int_0^\infty dz \frac{z^3 f_2(u, z)}{[z^2 + \chi^2 f_1(u, z)]^2 + [\chi^2 f_2(u, z)]^2} \quad (1.24)$$

On retrouve dans l'expression du nombre d'arrêt L l'inverse de la partie imaginaire de la fonction diélectrique appelée fonction de perte d'énergie ou ELF.

$$\operatorname{ELF}(q, \omega) = \operatorname{Im} \left[-\frac{1}{\varepsilon(q, \omega)} \right] \quad (1.25)$$

La fonction ELF contient toutes les informations de la structure électronique du matériau qui constitue le milieu ralentisseur. Elle est par conséquent, très importante dans le calcul du pouvoir d'arrêt. En l'exprimant avec les fonctions $f_1(u, z)$ et $f_2(u, z)$ introduites plus haut, on obtient l'expression de la fonction ELF (u, z) suivante :

$$\operatorname{ELF}(u, z) = \frac{z^2 \chi^2 f_2(z, u)}{[z^2 + \chi^2 f_1(z, u)]^2 + [\chi^2 f_2(z, u)]^2} \quad (1.26)$$

Cette fonction prend des valeurs significatives dans la région $|z - u| < 0$, et également dans la région $u > z + 1$, pour laquelle $\varepsilon^l = 0$, c.a.d. $z^2 + \chi^2 f_1(u, z) = 0$. La première contribution correspond principalement aux collisions proches, alors que la seconde

provient des collisions lointaines. Le comportement de la fonction ELF est illustré dans la figure 1.2.

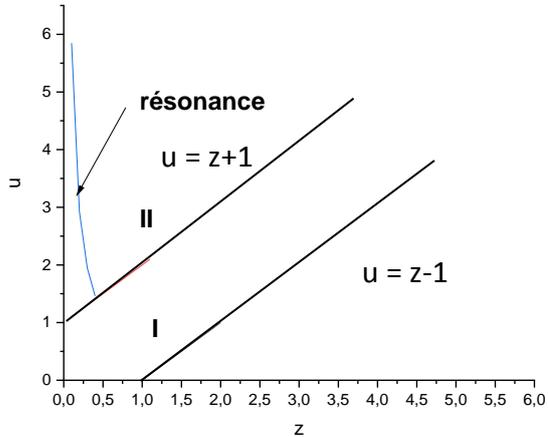


Figure 1.2. Variation de ELF en fonction des paramètres u et z . Les contributions dues aux collisions proches et aux excitations plasmons sont indiquées respectivement par les régions (I) et (II).

1.3.1.2 Densité de charges électroniques: distribution dans un solide

La distribution de la densité des électrons dans les solides diffère de celle de l'atome libre principalement, dans la région périphérique où l'absorption de l'énergie transférée est importante. Des modèles sont proposés afin de corriger la densité électronique calculée pour l'atome libre, considérant l'atome lié dans un réseau solide.

1.3.1.2.1 Modèle G.M.R (Gertner, Meron, Rosner)

Le modèle GMR [67] considère un recouvrement des fonctions d'onde des électrons des couches externes des atomes dans le solide. Il propose deux régions pour la détermination des densités électroniques pour la correction du pouvoir d'arrêt, calculé dans le cadre du modèle de l'atome libre; une région externe de densité électronique constante C_0 et une région interne avec une correction constante C_i de la densité électronique. Les constantes C_0 et C_i ainsi que le rayon R qui définit la limite entre les régions interne et externe sont fixés par les équations suivantes:

$$C_0(V_I - V_R) = N_{eff} \quad (1.27)$$

$$\int_0^R 4\pi r^2 \rho_A(r) dr + C_i V_R = Z_2 - N_{eff} \quad (1.28)$$

$$C_0 = C_i + \rho_A(R) \quad (1.29)$$

où

V_I est le volume moyen occupé par un atome dans le solide,

N_{eff} est le nombre effectif des électrons participant à l'excitation du plasma,

$\rho_A(r)$ est la densité des électrons de l'atome libre et

$V_R = \frac{4}{3}\pi R^3$ est le volume de la région atomique interne.

La densité électronique est de la forme:

$$\rho(r) = \rho_A(R) + C_i \quad \text{pour } r < R \quad (1.30)$$

$$\rho(r) = C_0 \quad \text{pour } r \geq R \quad (1.31)$$

1.3.1.2.2 Modèle L&S (Latta et Scanlon)

Le modèle L&S [68] considère que les fonctions d'onde de l'atome libre ne satisfont pas les conditions aux limites d'une cible solide. La densité électronique attribuée à chaque atome ne devrait pas être distribuée au-delà d'une région infinie. Une correction est proposée considérant une modification dans la région $r \sim r_0$ avec une normalisation de la densité $\rho(r)$ par :

$$\int_0^{r_0} \rho'(r) 4\pi r^2 dr = Z_2 \quad \text{et} \quad (1.32)$$

$$\rho'(r) = \rho(r) + Cr^p \quad (1.33)$$

p est une constante arbitraire positive ou nulle

C est une constante de normalisation

$\rho(r)$ est la densité corrigée

r_0 est le rayon moyen d'un atome dans le réseau, donné par :

$$r_0 = \left(\frac{4}{3}\pi N\right)^{-1/3},$$

N est le nombre d'atomes par unité de volume du milieu ralentisseur.

1.4 Interaction des ions moléculaires avec la matière

1.4.1 Fragmentation de la molécule

Lorsqu'un faisceau moléculaire en mouvement rapide de vitesse v largement supérieure à la vitesse de Bohr v_0 ($v_0 = e^2/\hbar$) est projeté sur une cible solide, les électrons les plus faiblement liés au projectile sont expulsés à la surface de la cible (à une profondeur de quelques Å). Les constituants moléculaires forment alors un amas d'ions qui explose sous l'influence de la répulsion Coulombienne.

Dans une molécule diatomique, les deux atomes sont liés par une force de rappel caractérisée par une énergie potentielle $V(r)$, fonction de la distance entre les noyaux. L'ion moléculaire est décrit par les niveaux quantiques vibrationnels ν et la distance internucléaire r_0 [69]. La population des niveaux vibrationnels est calculée à partir du principe de Franck-Condon [70] qui stipule que lors d'une transition électronique d'une molécule, le passage d'un électron d'un état à un autre n'affecte pas la position et le moment des noyaux. Par conséquent, les distances interatomiques sont différentes dans les deux états électroniques, conduisant à une excitation vibrationnelle de la molécule. Le modèle le plus simple pouvant représenter la vibration d'une molécule est l'oscillateur harmonique. Cependant il s'avère que l'énergie potentielle croît indéfiniment pour les distances internucléaires élevées, alors que l'énergie nécessaire pour dissocier une molécule est finie. La forme de l'énergie qui satisfait cette condition est celle proposée par Morse comme illustré sur la figure 1.3. Sur cette figure sont comparées les courbes de potentiel de l'oscillateur harmonique et de Morse. D_0 et D_e représentés sur cette figure sont respectivement l'énergie de liaison et l'énergie de dissociation spectroscopique correspondant à l'intervalle entre le minimum et la valeur asymptotique de l'énergie aux grandes distances internucléaires.

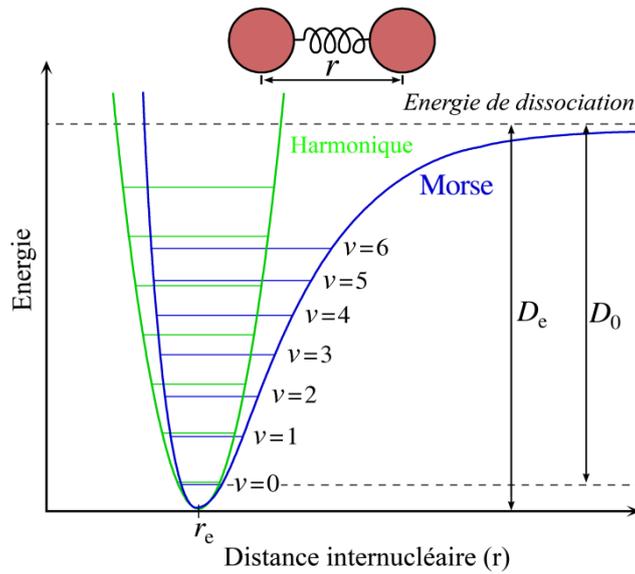


Figure 1.3. Energie potentiel de Morse en fonction de la distance internucléaire (bleu). Le potentiel d'oscillateur harmonique est représenté en vert.

Le calcul des facteurs de Franck-Condon (proportionnel à la probabilité de transition de l'état initial à l'état final) nécessite la connaissance des solutions de l'équation de Schrödinger pour les vibrations moléculaires :

$$\frac{d^2\psi_v}{dr^2} + \frac{2\mu}{h^2}(E_v - V(r))\psi_v = 0 \quad (1.34)$$

où μ est la masse réduite de la molécule

E_v est l'énergie de vibration correspondant à l'état ψ_v

$V(r)$ est l'énergie potentiel de Morse [71], donnée par :

$$V(r) = D_e(1 - e^{\beta(r-r_e)})^2 \quad (1.35)$$

Avec
$$\beta = \omega_e \sqrt{\frac{2\pi^2 C \mu}{D_e h}}$$

C est la vitesses de la lumière,
 μ est la masse réduite,
 ω_e est l'énergie de transition,
 h est la constante de Planck.

Le facteur de Franck-Condon FFC est :

$$FFC = |S(\nu, \nu')|^2 \quad (1.36)$$

où
$$S(\nu, \nu') = \int_{-\infty}^{+\infty} \varphi_{\nu}(r) \varphi'_{\nu'}(r) dr \quad (1.37)$$

$\varphi_{\nu}(r)$ et $\varphi'_{\nu'}(r)$ sont respectivement les fonctions d'onde de vibration de l'état initial et de l'état final d'une transition vibronique,

Pour le cas qui nous intéresse, les ions H_2^+ occupent l'un des dix-neuf états vibrationnels ν de la molécule, avec une probabilité $P(\nu)$ et une distance internucléaire moyenne $\bar{r}_0=1.29 \text{ \AA}$, supérieure à $r_0= 1.06 \text{ \AA}$ qui correspond à l'état fondamental, et 1.17 \AA qui est la valeur de la distance internucléaire la plus probable. Pour l'étude de l'effet de l'explosion Coulombienne sur le ralentissement des ions moléculaires H_2^+ dans les solides, la valeur moyenne est le plus souvent considérée en raison de l'asymétrie de la distribution de la distance internucléaire [12].

1.4.2 Application du formalisme diélectrique au calcul de la perte d'énergie des projectiles moléculaires.

La densité de charge dans le cas d'un projectile moléculaire s'écrit :

$$\rho(\vec{r}, t) = \sum_i Z_i e \delta(\vec{r} - \vec{r}_i - \vec{v}t) \quad (1.38)$$

où \vec{r}_i représentent les positions des charges correspondant au temps $t = 0$.

Pour des vitesses non relativistes, le champ électrique généré par l'agrégat ou le projectile moléculaire est déterminé à partir des équations de poisson selon la relation :

$$\vec{E}(\vec{k}, \omega) = -(4\pi i \vec{k} / k^2) \rho(\vec{k}, \omega) / \epsilon(\vec{k}, \omega) \quad (1.39)$$

A partir des transformées de Fourier, l'expression du champ électrique est donnée par :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{-1}{2\pi^2} \sum_i Z_i e \int d^3 k \frac{2i \vec{k} \exp[i\vec{k} \cdot (\vec{r} - \vec{r}_i - \vec{v}t)]}{k^2 \epsilon(\vec{k}, \vec{k} \cdot \vec{v})} \quad (1.40)$$

Ces expressions représentent la somme des champs dus aux charges externes et aux champs dus à la polarisation induite dans le milieu.

La force agissant sur la j^{eme} particule est :

$$\vec{F} = Z_j e \vec{E}(\vec{r}_j + \vec{v}t, t) \quad (1.41)$$

$$= \frac{Z_j e}{(2\pi)^2} \sum_i Z_i \int d^3 k \frac{2\vec{k}}{k^2} \left[\text{Im} \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{k}, \vec{k} \cdot \vec{v})} \right) \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_{ji}) + \text{Re} \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{k}, \vec{k} \cdot \vec{v})} \right) \sin(\vec{k} \cdot \vec{r}_{ji}) \right] \quad (1.42)$$

où $\vec{r}_{ji} = \vec{r}_j - \vec{r}_i$. Il est montré que les forces mutuelles agissant à travers le terme $\text{Re}(1/\varepsilon)$ sont opposées, et s'éliminent si on fait la sommation des forces agissant sur toutes les charges de l'agrégat. Le pouvoir d'arrêt par unité de temps est par conséquent, donné par :

$$\frac{dW}{dt} = \sum_j \vec{v} \cdot \vec{F}_j \quad (1.43)$$

$$= \frac{e^2}{2\pi^2} \int d^3 k \frac{\vec{k} \cdot \vec{v}}{k^2} \text{Im} \left(\frac{-1}{\varepsilon(\vec{k}, \vec{k} \cdot \vec{v})} \right) (\sum_i Z_i^2 + \sum_{i \neq j} Z_i Z_j \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_{ij})) \quad (1.44)$$

Les termes avec $i = j$, qui donnent la perte d'énergie des charges totalement indépendantes, sont séparés des termes avec $i \neq j$, qui représentent les effets d'interférence sur la perte d'énergie dus à la perturbation simultanée du milieu par les charges dans un mouvement corrélé. Dans le cas simple d'un mouvement corrélé de deux charges $Z_1 e$ et $Z_2 e$ de vitesse \vec{v} , séparées par une distance internucléaire r_0 ($\vec{r}_0 = \vec{r}_1 - \vec{r}_2$), la perte d'énergie des deux charges est donnée par :

$$\frac{dW}{dt} = \frac{e^2}{2\pi^2} \int d^3 k \frac{\vec{k} \cdot \vec{v}}{k^2} \text{Im} \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{k}, \vec{k} \cdot \vec{v})} \right) [(Z_1^2 + Z_2^2) + 2Z_1 Z_2 \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_0)] \quad (1.45)$$

1.4.3 Le Modèle du gaz d'électrons

Le traitement de la perte d'énergie dans un gaz d'électrons dégénéré, décrit par la constante diélectrique de Lindhard, est effectué en considérant le cas où les orientations de

la distance internucléaire \vec{r}_0 sont distribuées de façon aléatoire. La perte d'énergie moyenne dW/dt , correspondant aux orientations aléatoires de \vec{r}_0 , est obtenue en remplaçant le facteur $\cos(\vec{k} \cdot \vec{r})$ dans l'intégrale par sa moyenne angulaire $\sin(kr_0)/(kr_0)$. Utilisant la variable $\omega = \vec{k} \cdot \vec{v}$, il est possible d'écrire $d^3k = (k/v)dk d\omega d\Phi$, et obtenir après intégration sur l'angle azimutal Φ :

$$\left\langle \frac{dW}{dt} \right\rangle = \frac{2e^2}{\pi v} \int_0^{\infty} \frac{dk}{k} \int_0^{kv} \omega d\omega \operatorname{Im} \left(\frac{-1}{\varepsilon(k, \omega)} \right) \left((Z_1^2 + Z_2^2) + 2Z_1 Z_2 \frac{\sin kr_0}{kr_0} \right) \quad (1.46)$$

Pour introduire la constante diélectrique de Lindhard dans le cas d'un gaz d'électrons dégénéré, et en accord avec le développement de Arista, les intégrales dans l'équation (1.46) sont reformulées en introduisant les variables réduites $u = \omega/kv_F$ et $z = k/2k_F$, où v_F est la vitesse de Fermi du gaz et $k_F = mv_F/\hbar$, ce qui donne :

$$\left\langle \frac{dW}{dt} \right\rangle = \frac{4\pi n e^4}{mv} [(Z_1^2 + Z_2^2)L + 2Z_1 Z_2 I] \quad (1.47)$$

avec

$$L = \frac{6}{\pi \chi^2} \int_0^{\infty} z dz \int_0^w u du \operatorname{Im} \left(\frac{-1}{\varepsilon(u, z)} \right) \quad (1.48)$$

et

$$I = \frac{6}{\pi \chi^2} \int_0^{\infty} z dz \int_0^w u du \operatorname{Im} \left(\frac{-1}{\varepsilon(u, z)} \right) \frac{\sin(2k_F r_0 z)}{2k_F r_0 z} \quad (1.49)$$

où $\chi^2 = e^2/\pi\hbar v_F$, n est la densité des électrons, et $w = v/v_F$ est la vitesse réduite. La constante diélectrique est donnée par l'équation (1.19)

Le nombre d'arrêt L est le même que celui apparaissant dans le calcul de la perte d'énergie des charges isolées; alors que le terme d'interface I représente les contributions de la perte d'énergie des charges corrélées.

Dans l'annexe, nous donnons la subroutine introduite dans le programme de calcul du pouvoir d'arrêt, dans le cadre de la théorie diélectrique de Lindhard, pour l'évaluation du terme d'interférence I . Les calculs d'intégrale sont effectués dans la région où la condition $\operatorname{Im}(-1/\varepsilon(u, z)) \neq 0$ est satisfaite (voir la figure 1.2),

1.4.4 Cas des agrégats de vitesses élevées

Pour le calcul de la perte d'énergie aux vitesses élevées ($v \gg v_F$), l'approximation utilisée pour la constante diélectrique est :

$$\varepsilon(k, \omega) \cong 1 + \frac{\omega_p^2}{(\hbar k^2/2m)^2 - (\omega + i\delta)^2} \quad (1.50)$$

où δ est une quantité positive infinitésimalement petite. Cette approximation correspond au cas $\omega/k \gg v_F$. Quand $\delta \rightarrow 0$:

$$\text{Im} \left(\frac{-1}{\varepsilon(k, \omega)} \right) \cong \frac{\pi \omega_p^2}{2\omega k} [\delta(\omega - \omega_k) - \delta(\omega + \omega_k)] \quad (1.51)$$

avec

$$\omega_k^2 = \omega_p^2 + \left(\frac{\hbar k^2}{2m} \right)^2.$$

Avec ces approximations on obtient :

$$\left\langle \frac{dW}{dt} \right\rangle = \frac{4\pi e^4}{mv} \int_{k_1}^{k_2} \frac{dk}{k} \left((Z_1^2 + Z_2^2) + 2Z_1 Z_2 \frac{\sin(kr_0)}{kr_0} \right) \quad (1.52)$$

où les valeurs de k_1 et k_2 , pour $\left(\frac{mv^2}{\hbar \omega_p} \right)^2 \gg 1$, sont données par :

$$k_1 \cong \omega_p/v, \quad k_2 \cong 2mv/\hbar,$$

ce qui donne :

$$L = \int_{k_1}^{k_2} \frac{dk}{k} = \ln \left(\frac{2mv^2}{\hbar \omega_p} \right) \quad (1.53)$$

$$I = \int_{k_1}^{k_2} \frac{dk}{k} \frac{\sin(kr_0)}{kr_0} = F \left(\frac{r_0 \omega_p}{v} \right) - F \left(\frac{2mvr_0}{\hbar} \right) \quad (1.54)$$

La fonction $F(x)$ est donnée en termes de cosinus intégrale $Ci(x)$:

$$F(x) = x^{-1} - Ci(x). \quad (1.55)$$

1.5 La théorie de Bethe-Bloch

Le formalisme associé au pouvoir d'arrêt collisionnel fut d'abord développé par Bethe en 1933 avec un développement perturbatif au premier ordre en mécanique quantique et sous l'approximation de Born. Des développements additionnels ont été réalisés par Barkas et Bloch afin de tenir compte des limites de cette approximation au terme du premier ordre [72]. Les termes d'ordre supérieurs deviennent significatifs pour des ions de faibles vitesses [73].

Initialement, le ralentissement d'une particule chargée lourde dans une matrice a été évalué par Bohr [74]. Mais, le premier travail complet fut élaboré par Bethe [75] pour les particules chargées rapides, étendu par la suite au cas relativiste par le même auteur.

L'approche classique de Bohr considère une particule chargée de charge Z_1e en mouvement avec une vitesse v , passant à proximité d'un électron de charge e et de masse m_e , avec un paramètre d'impact b . Le moment Δp transmis à l'électron est :

$$\Delta p = \frac{2Z_1e^2}{bv} \quad (1.56)$$

et l'énergie transférée est :

$$\Delta E = \frac{(\Delta p)^2}{2m_e} = \frac{2Z_1^2e^4}{m_e v^2} \left(\frac{1}{b^2} \right) \quad (1.57)$$

Le pouvoir d'arrêt S est obtenu en intégrant l'énergie transférée à l'électron sur tous les paramètres d'impact possibles ; la cible étant constituée d'atomes de numéro atomique Z_2 . Soit :

$$S = 4\pi Z_2 \frac{Z_1^2 e^4}{m_e v^2} \int_{b_{min}}^{b_{max}} \frac{1}{b^2} b db \quad (1.58)$$

Avec $b_{min} \sim Z_1 e^2 / m v^2$ et $b_{max} \sim v / \omega$

En considérant ces valeurs, l'expression du pouvoir d'arrêt est :

$$S = \frac{dE}{dx} = 4\pi Z_2 \frac{Z_1^2 e^4}{m v^2} \ln \left(\frac{m v^3}{Z_1 e^2 \omega} \right) \quad (1.59)$$

La forme relativiste de cette équation est donnée par :

$$\frac{dE}{dx} = 4\pi Z_2 \frac{Z_1^2 e^4}{m_e v^2} \ln \left(\frac{\gamma^2 m_e v^3}{Z_1 e^2 \omega} \right) \quad (1.60)$$

Cette expression constitue la base de la théorie de Bohr pour l'évaluation de la perte d'énergie. Cette évaluation manque cependant de précision et ne peut être appliquée que pour des particules lourdes pour une gamme d'énergie limitée.

La théorie de Bohr a été remplacée plus tard par celle de Bethe et Bloch [75,76] utilisant l'approche quantique au premier ordre. Le pouvoir d'arrêt dans la théorie de Bethe considère que ; (1) l'ion se déplace plus rapidement que les électrons de la cible et qu'il est totalement épluché de ses électrons, et (2) l'ion est beaucoup plus lourd que les électrons de la cible.

L'équation de Bethe-Bloch a été modifiée plus récemment, en incluant des termes correctifs pour donner la formule utilisée actuellement :

$$\left(\frac{dE}{dx} \right) = \frac{Z_1^2 e^4 n Z_2}{4\pi \epsilon_0^2 m_e v^2} \left[\ln \left(\frac{2m_e v^2}{\bar{I}} \right) - \ln \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{v^2}{c^2} - \frac{\delta}{2} + Z_1 L_1 + Z_1^2 L_2 - \frac{C}{Z_2} \right] \quad (1.61)$$

Z et v sont respectivement, le numéro atomique et la vitesse de la particule,

e et m_e sont respectivement, la charge et la masse de l'électron,

n est la densité électronique du milieu ralentisseur,

\bar{I} est le potentiel moyen d'ionisation, dépendant uniquement du matériau,

L_1 et L_2 sont les corrections de Barkas et de Bloch,

$\frac{\delta}{2}$ est le terme correctif de l'effet de densité,

$\frac{C}{Z_2}$ est le terme de correction de couches.

Le potentiel moyen d'ionisation \bar{I} dépend seulement des propriétés du milieu. Il est déduit des données expérimentales par la mesure des pouvoirs d'arrêt ou par l'interaction des photons avec la matière [76]. La première méthode est moins précise car elle nécessite la détermination simultanée des termes correctifs de Barkas et de Bloch. En revanche, avec les données expérimentales issues de l'interaction photon matière, on détermine avec une

grande précision la valeur de I . Néanmoins, le nombre de matériaux pour lesquels ces données sont accessibles est limité.

L'équation 1.57 de Bethe et Bloch a été développée sous l'approximation de Born, estimant que la vitesse du projectile chargé est supérieure à celle des électrons du cortège atomique. Quand la vitesse de la particule cesse d'être beaucoup plus élevée que celle des électrons des cortèges électroniques des atomes du milieu, le pouvoir d'arrêt collisionnel est surestimé et on se trouve dans les limites de validité de l'hypothèse de Born. Les électrons de la couche K sont les plus affectés, car leur vitesse est supérieure à celle des couches plus profondes. La grandeur $\frac{c}{Z}$ corrige cet effet et elle est indépendante de la nature de la particule [76,77]. Cette correction augmente à basse énergie, avec les ions plus massifs et avec la densité électronique du matériau.

En 1956, Barkas et al. ont introduit une correction d'ordre supérieur liée à l'effet de charges [72]. Cette correction est proportionnelle au cube de la charge du projectile (Z_1^3) [76].

CHAPITRE 2

Techniques d'analyse par faisceaux d'ions

2.1 Introduction

2.2 Technique d'analyse par rétrodiffusion de Rutherford (RBS)

2.2.1 Principe de base de la RBS

2.2.2 Cinématique

2.2.3 Section efficace de diffusion élastique

2.2.4 Pouvoir d'arrêt

2.2.5 Dispersion en énergie (straggling)

2.3 Technique d'analyse par détection du noyau de recul (ERDA)

2.3.1 Principe de base de l'ERDA

2.3.2 Cinématique

2.3.3 Section efficace de recul élastique

2.4 Techniques d'analyse par Réactions Nucléaires (NRA et PIGE).

2.4.1 Principe de la méthode

2.4.2 Cinématique

2.4.3 Sections efficaces de réactions nucléaires

2.5 Techniques d'analyse par émission de rayonnement X (PIXE).

2.6 Méthodes du tracé des profils de concentration

2.7 Calcul du profil de concentration.

2.1 Introduction

Dans ce travail, on s'intéresse uniquement aux techniques analytiques, s'appuyant sur l'interaction des ions légers énergétiques avec la matière. Celles-ci se regroupent sous l'appellation IBA (Ion Beam Analysis).

Les techniques IBA se distinguent par le type d'interaction qui se produit lorsqu'une cible solide est heurtée par un faisceau d'ions. Lorsque l'ion pénètre dans la matière, il perd de l'énergie à travers des processus inélastiques dans les cas de la rétrodiffusion Rutherford (RBS) et de l'émission de rayons X (PIXE), et par diffusions élastiques des noyaux de recul dans le cas de la technique d'analyse par détection du noyau de recul (ERDA). Dans le cas où les produits de réactions sont différents des ions incidents (réaction nucléaire), la technique est nommée Analyse par Réaction Nucléaire (NRA). Lorsque le produit de la réaction nucléaire considérée pour l'analyse est un photon gamma, on parle de la PIGE (Particle Induced Gamma Emission).

Les méthodes d'analyse par faisceaux d'ions (IBA) présentent de multiples avantages qui sont à l'origine de leur usage croissant dans de nombreux domaines des sciences et de l'industrie. Ces méthodes sont dérivées de la physique nucléaire. L'analyse des résultats obtenus à partir de l'interaction atomique ou nucléaire avec les atomes constituant le matériau permet d'obtenir des informations sur la composition élémentaire du matériau, à des profondeurs allant jusqu'à quelques μm . Les techniques IBA sont caractérisées par leur précision. Le choix de l'utilisation de l'une ou l'autre de ces techniques dépend de ce que l'on veut caractériser ou mesurer. Les informations sur l'identité des éléments présents dans le matériau, leur concentration et leur profil sont extraits de l'analyse du spectre en énergie des particules émises, suite à l'irradiation du matériau par le faisceau de particules d'analyse. Cette analyse est réalisée dans des conditions expérimentales bien définies par la géométrie de détection et le nombre de particules bombardant l'échantillon. L'échantillon ne subit pas de dégâts lors des analyses par ces techniques, d'où leur dénomination de techniques non destructives.

Une des grandeurs majeures des techniques IBA, communément notée $S(E)$, est le pouvoir d'arrêt qui traduit l'énergie moyenne perdue par la particule incidente par unité de

longueur parcourue dans un milieu donné. Cette perte d'énergie est transférée à la matière via un processus de collisions avec les électrons et/ou les noyaux du milieu traversé. Globalement, les ions perdent leur énergie par transfert au milieu traversé et finissent par s'arrêter dans le cas des cibles épaisses.

2.2 Technique d'analyse par rétrodiffusion de Rutherford (RBS).

2.2.1 Principe de base de la RBS

La technique d'analyse par rétrodiffusion élastique [77] est l'une des techniques les plus utilisées pour l'analyse quantitative (composition élémentaire, épaisseur, profil) des éléments, proche de la surface. Elle permet d'analyser les éléments de numéro atomique moyen ou élevé dans un substrat plus léger. Elle est cependant, très peu sensible dans le cas des éléments légers se trouvant à la surface d'une matrice plus lourde où le profil résultant couvre tout le spectre en énergie des atomes du substrat, noyant ainsi les éléments légers d'intérêt. L'analyse dans ce cas doit être complétée par l'utilisation d'autres techniques telles que la NRA et l'ERDA.

Généralement, les protons, deutons et particules α diffusés dans la gamme d'énergie 500 keV- quelques MeV, aux angles de rétrodiffusion typiques 130° - 170° , sont les plus utilisés comme projectiles. L'interaction ion-atome cible peut être décrite en utilisant le potentiel Coulombien à partir duquel la section efficace de la diffusion de Rutherford est analytiquement établie, permettant une quantification des résultats. Lorsque la barrière Coulombienne est franchie, la section efficace n'est plus Rutherford à cause des interactions nucléaires. Des sections efficaces mesurées sont alors utilisées. Cette contrainte présente cependant un grand avantage en augmentant le rendement des particules diffusées et par conséquent, la détection de faibles concentrations. Ceci fait de cette méthode une technique en elle-même, nommée technique EBS (Elastic Back-Scattering).

La technique d'analyse par rétrodiffusion élastique de Rutherford est basée sur l'interaction Coulombienne entre une particule incidente (le plus souvent des particules α de 2 MeV) et les noyaux des atomes-cibles. La RBS est une méthode absolue. Elle peut s'appliquer sans utilisation de standards et elle est non destructive. Le processus

expérimental est relativement simple et rapide et les profils de concentration sont obtenus avec des résolutions de quelques dizaines de nm.

L'interaction entre un faisceau d'ions et un noyau cible donne lieu à des particules rétrodiffusées. L'analyse des spectres en énergie de ces particules permet d'obtenir des informations sur la nature des éléments constituant la cible, à partir de la cinématique de réaction. Le rendement des particules rétrodiffusées qui est proportionnel à la section efficace de diffusion permet de déterminer la concentration des éléments de la cible, et la perte d'énergie permet de déterminer le gradient de concentration (concentration à une profondeur donnée). Le facteur cinématique, la section efficace, la perte d'énergie et la dispersion en énergie (straggling) sont les paramètres fondamentaux de la RBS.

2.2.2 Cinématique

Lorsqu'une particule incidente heurte les éléments d'une cible solide (figure 1.3), une fraction de son énergie est transférée à l'atome cible. Si l'énergie des particules incidentes est inférieure à la hauteur de la barrière Coulombienne (quelques MeV) et supérieure à l'énergie de liaison des atomes de la cible (quelques dizaines d'eV), et en l'absence de résonances, l'interaction ion-noyau est purement électrostatique et l'interaction est décrite par les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement. Si on appelle E_0 l'énergie cinétique avant collision, de la particule incidente de mass m et de vitesse v_0 , l'énergie de la particule après collision est déterminée à partir des équations de conservation de l'énergie et la quantité de mouvement suivantes:

$$E_0 = E_1 + E_2 \quad (2.1)$$

$$\frac{1}{2}mv_0^2 = \frac{1}{2}mv_1^2 + \frac{1}{2}Mv_2^2 \quad (2.2)$$

$$m\vec{v}_0 = m\vec{v}_1 + M\vec{v}_2 \quad (2.3)$$

E_2 est l'énergie cinétique après collision du noyau cible de masse M et de vitesse v_2 . E_1 est liée à E_0 via la relation :

$$E_1 = KE_0 \quad (2.4)$$

où K est le facteur cinématique donné par:

$$K = \frac{E_1}{E_0} = \left[\frac{m \cos \theta + \sqrt{M^2 - m^2 \sin^2(\theta)}}{m+M} \right]^2 \quad (2.5)$$

Cette équation permet d'identifier la masse M des atomes composant la cible par la mesure, à un angle θ connu, de l'énergie E_1 des particules rétrodiffusées par la cible, connaissant la masse m et l'énergie E_0 du faisceau incident. Un exemple de spectres RBS est montré sur la figure 1.5.

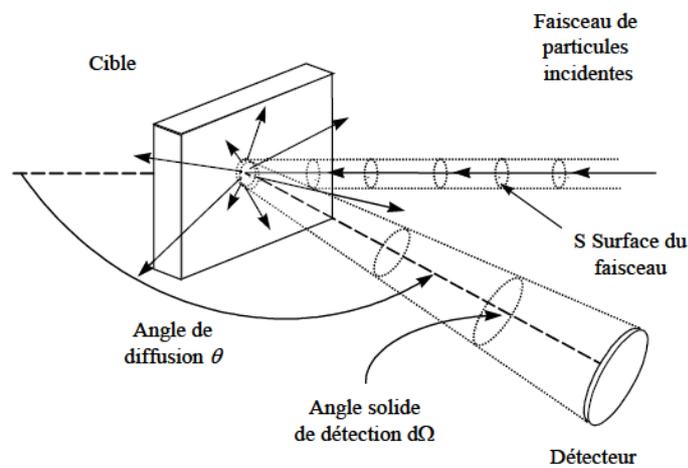


Figure 1.4. Géométrie de la technique RBS.

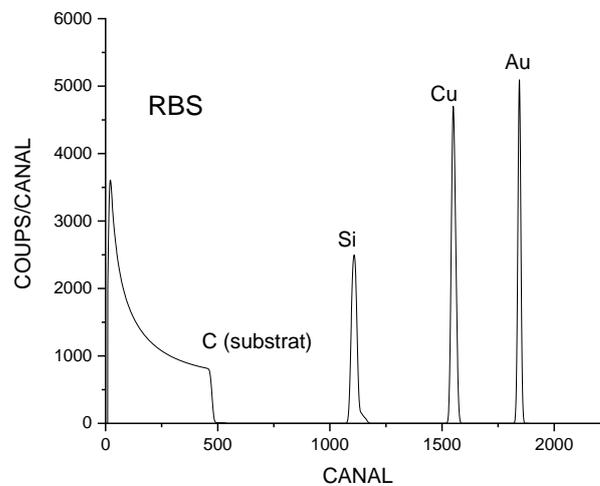


Figure 1.5. Spectre RBS obtenu pour une cible multicouche. Les éléments de masse plus élevées apparaissent aux énergies plus élevées.

2.2.3 Section efficace de diffusion élastique

2.2.3.1 Diffusion Élastique de Rutherford

La section efficace de diffusion est un paramètre fondamental pour comprendre comment évaluer l'abondance d'un élément dans un échantillon à partir de la fraction des ions diffusés. Elle est définie comme la probabilité de diffusion d'un noyau d'un élément de l'échantillon, heurté par un ion incident, dans une direction donnée. L'expression de la section efficace de diffusion attribuée à Rutherford est donnée par [78]:

$$\sigma_{Ruth} = \left[\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E} \right]^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left[\left(1 - \left(\frac{m}{M} \sin \theta \right)^2 \right)^{1/2} + \cos \theta \right]^2}{\left[1 - \left(\frac{m}{M} \sin \theta \right)^2 \right]^{1/2}} \quad (2.6)$$

où Z_1 et Z_2 sont les nombres atomiques et m et M sont les masses de l'ion et de la cible, respectivement. E et θ sont l'énergie de l'ion et l'angle de diffusion respectivement, dans le système de laboratoire.

La section efficace de Rutherford décrit la probabilité d'interaction entre l'ion et la cible dans une collision Coulombienne. Elle est proportionnelle au numéro atomique de la cible, d'où la sensibilité de la technique RBS aux éléments lourds. La validité de la formule est acceptable pour une certaine gamme d'énergie, dépendamment des nombres atomiques et des masses des paires projectile-cible. Aux basses énergies, l'effet des électrons entourant le noyau atomique ne peut plus être négligé et l'effet d'écrantage diminue la section efficace, dépendamment de l'énergie du projectile. Aux énergies élevées des projectiles, des interactions nucléaires se produisent et conduisent à des variations importantes dans la section efficace. Il faut noter que l'écart par rapport à la formulation de Rutherford est important pour les noyaux légers, sachant que la hauteur de la barrière Coulombienne dépend de la charge du noyau. Dans ce cas, la section efficace est dite non-Rutherford.

2.2.3.2 Diffusion Élastique Non-Rutherford (Résonante)

D'après la formule (2-6), la section efficace varie en $1/E^2$. Chadwick* [79] a cependant, observé - et pour la première fois - une déviation importante de la section efficace de la diffusion élastique (par rapport à la section efficace de Rutherford) qu'il a mesurée en bombardant une cible d'hydrogène par un faisceau de particules alpha énergétique. Des mesures réalisées par la suite ont révélé des variations soudaines à des énergies bien précises. Un exemple de courbe d'excitation (variation de la section efficace en fonction de l'énergie) obtenue [80]) au centre de recherche de GANIL (Grand Accélérateur National d'Ions Lourds), est reporté sur la figure 1.6.

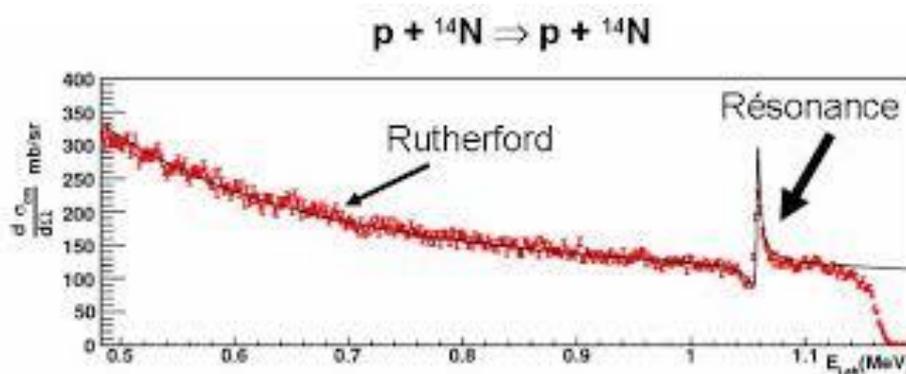


Figure 1.6. Fonction d'excitation de la diffusion élastique ${}^{14}\text{N}(p,p){}^{14}\text{N}$, mesurée au GANIL [80].

La fonction d'excitation suit un comportement en $1/E^2$ conformément à la formulation de Rutherford, jusqu'à l'énergie de 1.06 MeV où une variation brutale est observée. Cette variation est interprétée par une contribution à la section efficace due à la formation du noyau composé (dans cet exemple ${}^{15}\text{O}$), en plus de celle due à la diffusion par le potentiel Coulombienne. Juste après la résonance, les deux contributions interfèrent négativement et conduisent à une diminution de la section efficace.

Concernant ce dernier cas, des corrections à la section efficace et avec une bonne précision sont apportées par L'Ecuyer et Wenzel [81,82] pour des faisceaux d'ions légers d'énergie de l'ordre du MeV tel que :

$$\frac{\sigma}{\sigma_R} = 1 - \frac{0.049 Z_1 Z_2^{4/3}}{E_{CM}} \quad (2.7)$$

$$\frac{\sigma}{\sigma_R} = 1 - \frac{0.0326 - Z_1 Z_2^{7/2}}{E_{CM}} \quad (2.8)$$

E_{CM} étant l'énergie cinétique dans le centre de masse, exprimée en keV .

Dans le cas des hautes énergies, les écarts par rapport aux sections efficaces de Rutherford sont causés par la présence de forces nucléaires. Jusqu'à présent aucun calcul précis n'existe pour les sections efficaces non-Rutherford. Elles sont par conséquent, mesurées. Un exemple de cas s'écartant du comportement Rutherford et mesuré dans notre laboratoire est illustré sur la figure 1.7. Il s'agit de la détermination expérimentale de la courbe de rendement de la diffusion élastique $^{16}O(\alpha, \alpha)^{16}O$ à la résonance de $3,05 MeV$ [83].

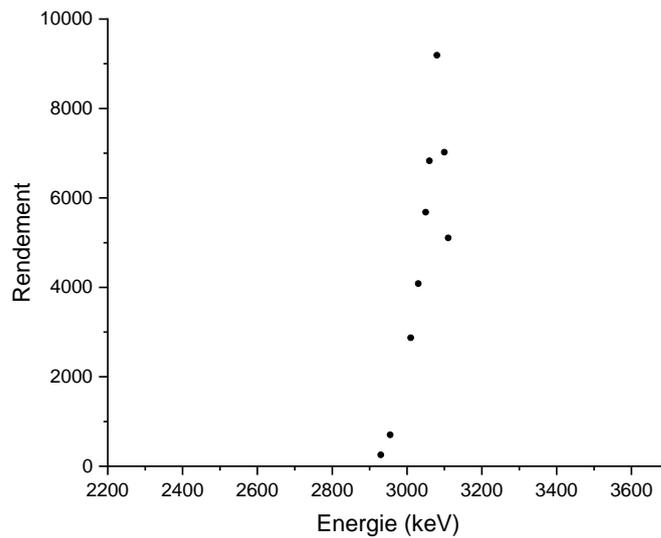


Figure 1.7. Rendement de la diffusion élastique des particules α sur l'oxygène, mesuré à $3,05 MeV$ et 165° [83].

2.3 Technique d'analyse par détection du noyau de recul (ERDA)

Pour des raisons de cinématique, la technique RBS ne peut pas s'appliquer pour l'analyse de l'hydrogène. Un faisceau d'hélium (généralement utilisé en RBS) ne pouvant être diffusé par des noyaux d'hydrogène (plus légers). Pour pallier à cette incommodité, il a été convenu d'inverser la géométrie de la RBS, mettant au point une nouvelle technique basée sur la détection du noyau de recul, nommée ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis). Dans cette géométrie, l'angle d'incidence doit être rasant par rapport à la surface de la cible et le détecteur placé à un angle avant (autour de 30°) par rapport au faisceau incident. Une feuille mince (généralement du mylar) est placée devant le détecteur pour éviter la détection du signal provenant des ions projectiles, diffusés en même temps que les ions de recul. La connaissance parfaite des sections efficaces [84,85] et des pouvoirs d'arrêt [86] de la quasi-totalité des matériaux font de la technique ERDA une méthode quantitative [87,88] avec une résolution de l'ordre de quelques nm à la surface de l'échantillon.

2.3.1 Principe de base de l'ERDA

La mécanique de collision dans le cas de la technique ERDA est la même que pour la RBS, sauf qu'on s'intéresse aux particules de recul au lieu des particules incidentes rétrodiffusées. Un faisceau de particules est envoyé sur une cible que l'on désire analyser, et les ions de recul après collision sont détectés à un angle adapté. Tout comme dans le cas de la RBS, l'énergie des ions de recul est déterminée à partir de la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, avant et après collision. La section efficace est également donnée par une formule analytique si l'on considère l'interaction purement Coulombienne. Cependant, des écarts par rapport à la formule analytique sont observés en raison d'une éventuelle contribution d'une résonance [87].

2.3.2 Cinématique

La collision élastique entre les ions incidents et les atomes d'une cible peut être décrite comme une collision entre deux corps isolés (voir fig. 1.8); le projectile de masse M et le noyau cible de masse m .

Après collision, l'énergie des atomes de recul, qui étaient au repos, prendra une valeur non-nulle E_R , calculée à partir du principe de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement.

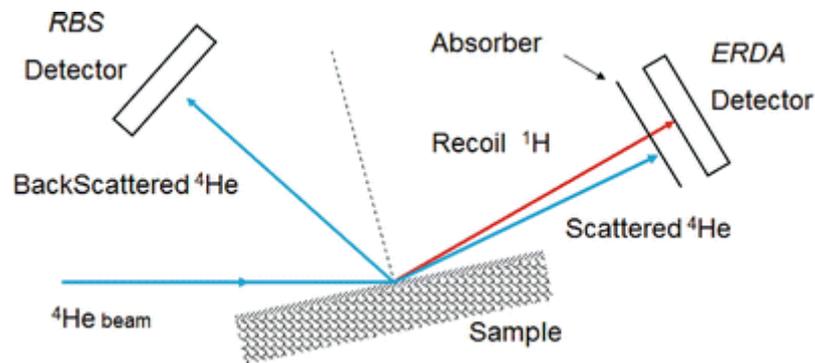


Figure 1.8. Géométrie de la technique ERDA

L'énergie E_R est liée à l'énergie incidente du projectile par la relation :

$$E_R = K_R E_0 \quad (2.9)$$

où K_R est le facteur cinématique de recul donné par :

$$K_R = 4 \frac{Mm}{(M+m)^2} \cos^2 \vartheta \quad (2.10)$$

ϑ est l'angle de recul défini par rapport à la direction du faisceau incident dans le système de laboratoire.

Un spectre typique en énergie des atomes de recul de l'hydrogène est montré dans la figure 1.9.

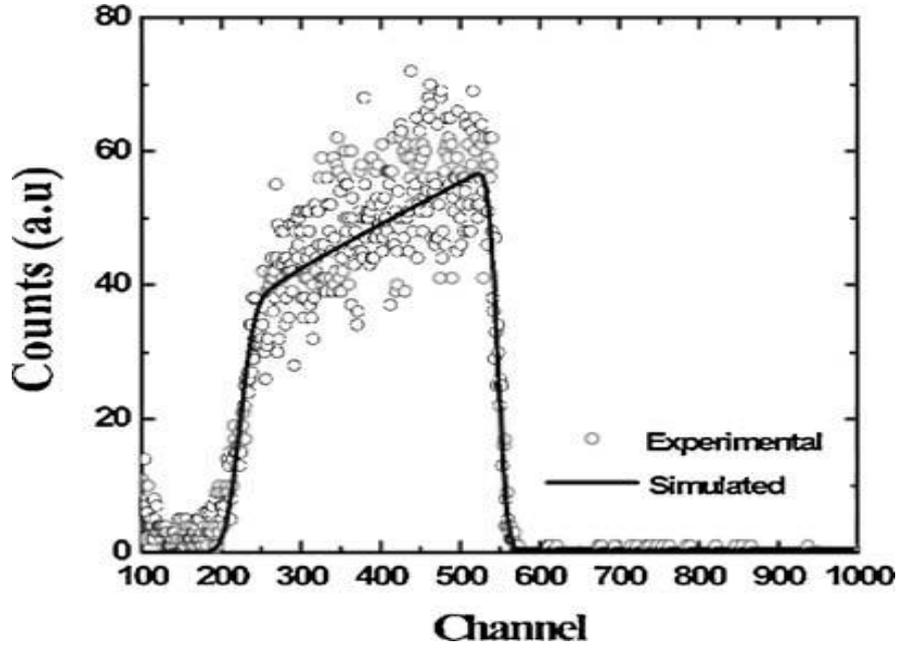


Figure 1.9. Spectre en énergie de l'hydrogène enregistré à partir de mesures ERDA [89] sur une cible a-C:H. La simulation est effectuée par le code SIMNRA [90].

2.3.3 Section efficace de recul élastique

Aux énergies de la particule incidente de l'ordre de quelques centaines de keV, l'interaction entre le projectile et l'atome cible est purement Coulombienne. Le potentiel Coulombien est donné par :

$$V(r) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_i Z_a e^2}{r} \quad (2.11)$$

Z_i et Z_a sont les charges respectives de l'ion et de l'atome-cible, et r est la distance les séparant. Dans ce cas, la section efficace différentielle est donnée par la formule classique de Rutherford :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left[\frac{Z_i Z_a e^2 (M+m)}{2mE_1} \right]^2 \frac{1}{\cos^3 \vartheta} \quad (2.12)$$

Dans la gamme d'énergie généralement utilisée (l'ordre du MeV) dans les analyses par faisceaux d'ions, les sections efficaces mesurées sont souvent différentes des valeurs calculées par la théorie de Rutherford (équation (2.12)). Par conséquent, la collision hélium-hydrogène ne peut pas être considérée comme une interaction purement Coulombienne. Afin d'obtenir des résultats fiables dans l'analyse quantitative de l'hydrogène, il est souvent nécessaire d'utiliser des sections efficaces différentielles mesurées.

2.4 Techniques d'analyse par Réactions Nucléaires (NRA et PIGE)

La NRA (Nuclear Reaction Analysis) et la PIGE (Particle Induced Gamma rays Emission) utilisent les réactions nucléaires pour analyser les matériaux [91-94]. Particulièrement, si ceux-ci sont composés d'éléments légers. Elles fournissent des informations proches de celles de la technique RBS. Mais, étant plus précises pour déterminer la concentration et le profil en profondeur des éléments légers (de l'hydrogène au soufre), elles sont utilisées comme méthodes complémentaires pour apporter plus de précision quand cela est possible. Elles permettent de distinguer les isotopes du même élément.

2.4.1 Principe de la méthode

Le principe de cette méthode repose sur la détection d'une particule chargée (cas de la NRA) et/ou d'un photon γ (cas de la PIGE) émis par un noyau composé formé dans une réaction nucléaire induite par des ions accélérés, comme il est schématisé dans la figure 1.9. La réaction nucléaire ne peut se produire que si l'énergie des ions est suffisamment grande pour surmonter la barrière Coulombienne. La mesure de l'énergie et du rendement des produits émis permet de déterminer la nature de l'élément ainsi que sa concentration dans le matériau. Les réactions nucléaires $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$, $^{15}\text{N}(p,\alpha\gamma)^{12}\text{C}$, $^{18}\text{O}(p,\alpha)^{15}\text{N}$, $^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$, $^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$ sont les plus couramment utilisées dans les analyses élémentaires.

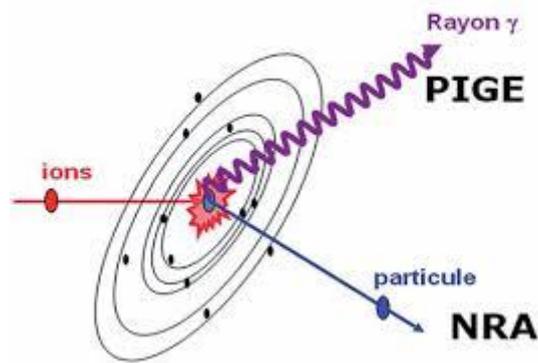


Figure 1.10. Géométrie de la technique NRA-PIGE.

2.4.2 Cinématique

Généralement, une réaction nucléaire entre une particule incidente a et un noyau cible X s'écrit (par convention) sous la forme $X(a,b)Y$, où b et Y sont respectivement la particule émise et le noyau résiduel. Elle peut également être représentée par l'équation :



C^* est le noyau composé qui contient temporairement toute la masse et la charge impliquées dans la réaction. Cependant, ce noyau composé est très instable et dure environ 10^{-14} secondes avant de se désintégrer vers la voie de sortie. L'identification du noyau résiduel est déterminée arithmétiquement en considérant inchangés la charge et le nombre de masse, avant et après réaction. La loi de conservation de l'énergie totale de la réaction conduit à la définition de la quantité Q , appelée Q de la réaction, comme la différence de la somme des masses avant (état initial) et après (état final) la réaction, soit :

$$E_a + M_a c^2 + E_X + M_X c^2 = E_b + M_b c^2 + E_Y + M_Y c^2 \quad (2.14)$$

$$Q = [(M_a + M_X) - (M_b + M_Y)]c^2 \quad (2.15)$$

Pour Q positif, la réaction est dite exo-énergétique. Si Q est négatif, la réaction est endo-énergétique. Elle n'est possible que si l'énergie cinétique de la particule incidente est supérieure à une énergie seuil, donnée par l'expression suivante :

$$E_{seuil} = \frac{-Q(M_b + M_Y)}{(M_b - M_a + M_Y)} \quad (2.16)$$

La cinématique de la réaction nucléaire (conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement) permet également le calcul de l'énergie de la particule émise E_b à partir de l'équation suivante :

$$E_b^{1/2} = A \pm (A^2 + B)^{1/2} \quad (2-17)$$

où

$$A = \frac{(M_a M_b E_a)^{1/2}}{M_b + M_Y} \cos \theta \quad (2-18)$$

et

$$B = \frac{M_Y Q + E_a (M_Y - M_a)}{M_b + M_Y} \quad (2-19)$$

θ étant l'angle de détection des particules émises dans la réaction. Les autres variables sont définies plus haut.

2.4.3 Section efficace de réactions nucléaires

L'analyse quantitative d'un spectre en énergie NRA requiert une connaissance précise de certaines données comme la section efficace de la réaction nucléaire. Contrairement aux interactions de diffusion dont les sections efficaces obéissent souvent à des lois simples, chaque réaction nucléaire possède une fonction d'excitation propre qui peut varier d'une région d'énergie à une autre. Cette fonction présente parfois un maximum (résonance) plus ou moins important à des énergies précises.

Il existe plusieurs bases de données qui regroupent un bon nombre de sections efficaces relatives à différents noyaux et processus. Ces bibliothèques sont issues d'un ensemble d'évaluations effectuées avec des données expérimentales traitées à l'aide de modèles théoriques connus. Cependant, certaines sections efficaces sont connues avec peu de précision, d'où la nécessité parfois, de procéder à des mesures expérimentales.

Comme définie précédemment, la section efficace est la probabilité d'occurrence d'une réaction nucléaire. Elle est imagée par la surface du noyau cible "vue" par la particule incidente. Elle est généralement exprimée en barn ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$) qui est de l'ordre de grandeur de la surface d'un noyau. Les sections efficaces dépendent de la nature et de l'énergie du projectile. La modélisation des réactions nucléaires reste complexe, et ne cesse de progresser par l'amélioration régulière des théories. Les réactions nucléaires font intervenir différents processus d'interactions. On peut néanmoins, distinguer deux grandes classes de réactions ; les réactions du noyau composé et les réactions directes. Le premier passe par la formation d'un système nucléaire caractérisé par une structure de niveaux d'énergie, à partir de la voie d'entrée (projectile et noyau cible), et finit par se désexciter dans la voie de sortie en émettant des particules et/ou des rayonnements. Des résonances (souvent très fines) sont observées dans les sections efficaces. A chaque résonance correspondent des états excités du noyau composé, d'une durée de vie τ finie de l'ordre de la femtoseconde. La largeur en énergie Γ caractéristique du niveau de l'état excité (également largeur de la résonance) est liée à τ par la relation d'incertitude d'Heisenberg :

$$\tau \cdot \Gamma \approx \hbar \quad (2-20)$$

Dans le cas où les résonances sont bien séparées, la section efficace est donnée par la relation dite de Breit et Wigner :

$$\sigma(E) = \sigma_R \frac{\frac{\Gamma^2}{4}}{(E-E_R)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (2-21)$$

E étant l'énergie de la particule incidente, σ_R est la section efficace à l'énergie de résonance E_R et Γ , la largeur totale de l'état excité du noyau composé.

Dans le cas des réactions directes, le projectile en heurtant le noyau cible lui cède une particule et poursuit une trajectoire peu perturbée. Ce type de réactions est nommé réactions de "stripping". L'autre type de réactions dite "pick-up" est l'inverse de la première. Le passage d'une particule près du noyau cible lui arrache une particule et continue sa course sans qu'il y est formation de noyau composé.

Dans le cas de l'interaction directe, on utilise le plus souvent le modèle optique, qui traduit l'interaction d'un nucléon avec l'ensemble des nucléons qui constituent le noyau cible, représentée par un potentiel complexe de la forme :

$$U = V + iW \quad (2-22)$$

Ce potentiel est composé d'une partie réelle qui caractérise la réflexion de la particule incidente, et d'une partie imaginaire qui représente l'absorption de cette particule si $W < 0$ ou sa transmission si $W > 0$.

L'approche dite phénoménologique est la plus utilisée pour la construction du potentiel optique, introduit dans la partie énergie potentielle de l'équation de Schrödinger. Cette approche est basée sur la détermination des paramètres du potentiel $U(r)$ en ajustant le plus fidèlement possible les données expérimentales des sections efficaces les plus connues aux calculs théoriques obtenus dans le cadre du modèle optique.

2.5 Techniques d'analyse PIXE (Particle Induced X-ray Emission).

Il a été démontré que l'émission caractéristique du rayonnement X, produit lors du bombardement d'un matériau par des protons de quelques MeV, peut être à la base d'une analyse élémentaire quantitative très sensible.

Le principe de la PIXE est basé sur l'ionisation des couches internes (K, L ou M) de l'atome cible par la particule chargée et sur la détection du rayonnement X produit lors du réarrangement électronique. L'électron éjecté laisse une lacune dans les couches électroniques profondes, le cortège électronique étant alors dans un état instable. Un électron d'une couche plus externe vient alors combler la case quantique laissée vacante par l'électron éjecté. Deux phénomènes peuvent se produire : (i) soit l'émission d'un photon, dans le domaine du rayonnement X : on parle alors de fluorescence X ; (ii) soit l'énergie excédentaire est communiquée à un électron périphérique qui est éjecté : on parle alors d'émission Auger.

L'énergie du photon X émis étant caractéristique de l'atome ionisé, il est alors possible d'en déduire l'élément concerné. Selon ce processus, on peut donc facilement remonter à la composition chimique d'un échantillon étudié à partir de l'analyse du spectre d'émission X.

L'analyse par la méthode PIXE [95,96] présente les avantages suivants :

C'est une technique qui est par essence non destructive dans la mesure où l'atome émetteur revient dans son état d'origine après l'émission X. Par ailleurs, le rendement de production de rayonnement X (ou section efficace) est relativement élevé et l'intensité du courant de faisceau nécessaire peut rester faible (de l'ordre de 100 pA), limitant ainsi l'énergie déposée dans l'échantillon. Une statistique suffisante peut alors être obtenue après une heure d'analyse pour faire une cartographie chimique sur une zone d'échantillon sélectionnée.

La technique PIXE permet une analyse multi-élémentaire : dans le mode de détection en dispersion, une vingtaine d'éléments peuvent être dosés au cours de la même analyse.

La méthode PIXE est d'une très bonne sensibilité (limite de détection pouvant atteindre le ppm, ou partie par million). Elle est par conséquent, bien adaptée au dosage des éléments présents à l'état de traces.

Cette technique peut être mise en œuvre avec un faisceau focalisé présentant une résolution spatiale de l'ordre du micromètre, ce qui permet d'obtenir des cartographies chimiques en balayant l'échantillon avec le faisceau de particules chargées à la manière d'un microscope électronique.

Cette technique n'a pas été utilisée dans ce travail de thèse. Nous n'allons donc, pas la développer davantage dans ce manuscrit.

2.6 Méthodes du tracé des profils de concentration

2.6.1 Profil déterminé à partir du spectre en énergie des particules émises

La distribution en profondeur d'un élément dans une matrice peut être extraite à partir de l'analyse du spectre énergétique, effectuée à une énergie donnée des particules incidentes et autour de laquelle la section efficace de la réaction nucléaire est quasi constante. Cette énergie diminue à mesure que les particules (chargées) pénètrent dans le matériau. Les produits issus de la réaction nucléaire entre les particules incidentes et les noyaux cibles sont alors détectés à des énergies différentes, selon la profondeur de leur apparition dans l'échantillon. L'analyse par cette méthode dite "Non resonant NRA profiling"

de la distribution en énergie de ces produits de réaction permet de déduire le profil en profondeur. Ce travail peut être réalisé avec une simulation des données expérimentales au moyen de logiciels adéquats comme IBA DataFurnace ou SIMNRA.

2.6.2 Profil déterminé par balayage autour d'une résonance

Dans le cas de la présence d'une résonance fine, assez loin des autres résonances (éventuelles), dans la courbe d'excitation d'une réaction nucléaire, la mesure de la courbe de rendement au voisinage de l'énergie de cette résonance permet de déterminer le profil de concentration de l'élément considéré par la réaction nucléaire.

La méthode consiste à irradier l'échantillon à des énergies croissantes pas à pas à partir de l'énergie de la résonance pour la déplacer vers l'intérieur et intéresser de la sorte des tranches minces de plus en plus profondes de la cible.

2.7 Calcul du profil de concentration

La détermination du profil de concentration d'un élément consiste en la transformation du spectre en énergie $Y(E)$ de cet élément en sa distribution spatiale. Un des principes utilisés consiste à diviser la couche irradiée en une succession de sous-couches d'égales épaisseurs. La concentration moyenne à une profondeur x est donnée par:

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

N représentant la densité du substrat,

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

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

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

Δx est l'épaisseur d'une sous-couche,

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

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

$$dn = I \varepsilon \sigma(\theta, E) \Omega C(x) dx \quad (2.25)$$

I est le nombre de particules incidentes par seconde,

ε , l'efficacité du détecteur,

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

Ω , l'angle solide de détection, et

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

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

$$dn = I \varepsilon \sigma(\theta, E) \Omega C(x) g(E_0, E_i) f(E_i, E_j, x) dE_i dE_j dx \quad (2.26)$$

où,

$g(E_0, E_i)$ représente la probabilité pour qu'une particule du faisceau incident d'énergie moyenne E_0 ait une énergie comprise entre E_i et $E_i + dE_i$.

$f(E_i, E_j, x) dE_j$ est la probabilité pour qu'une particule d'énergie E_i ait une énergie comprise entre E_j et $E_j + dE_j$ à la profondeur x .

CHAPITRE 3

Le Code IBA DataFurnace

3.1 Introduction

3.2 Description générale du code

3.3 Algorithme du code DataFurnace

3.3.1 La méthode du "recuit simulé" (simulated annealing)

3.3.2 Estimation des incertitudes par MCMC (Markov Chain Monte Carlo)

3.3.3 Inférence Bayésienne

3.3.4 Programme des itérations (Cooling schedule)

3.3.5 Algorithme SA dans le code NDF : Exemple

3.4 Exécuter NDF DataFurnace

3.4.1 Fichier géométrie

3.4.2 Fichier structure

3.4.3 Fichier batch

3.4.4 Unité utilisée pour la profondeur

3.5 Comparaison avec les autres codes d'analyse IBA

3.1 Introduction

Les techniques IBA sont des techniques standards pour l'analyse des matériaux. Elles sont utilisées pour déterminer quelles sont les éléments présents dans un échantillon donné, leur stœchiométrie, et leur distribution en profondeur. Ces techniques sont quantitatives, non destructives et très précises (incertitude < 1%) quand les conditions expérimentales sont adéquates et le traitement des données approfondi. Des programmes informatiques ont été développés à cet effet, et pour aider l'analyste à interpréter les résultats obtenus. Ces programmes sont conçus pour extraire l'information désirée à partir des spectres en énergie, mesurés. Il est possible de convertir un spectre en profil de concentration de tous les éléments de l'échantillon. Cependant, il est souvent nécessaire de procéder à d'autres expériences pour assurer une analyse complète de l'échantillon; (i) en variant l'énergie des ions incidents, (ii) en modifiant la géométrie de mesure, (iii) en utilisant d'autres techniques d'analyse IBA, ou encore (iv) en incluant des informations obtenues à partir de techniques complémentaires.

Parmi les programmes de la première génération, RUMP est le plus utilisé. Il a été développé au milieu des années quatre-vingt [97]. De manière générale, il permet un traitement de données en trois phases:

1. proposer une structure pour la cible,
2. calculer le spectre correspondant à cette structure,
3. comparer avec le spectre expérimental.

Cette procédure est répétée jusqu'à parvenir à un fit raisonnable. Cette approche est souvent fastidieuse et peu commode pour le traitement des données. Il faut souligner qu'un logiciel de simulation peut aider à l'analyse des données, mais ne peut en aucun cas remplacer le jugement de l'analyste. Un logiciel qui n'est pas utilisé correctement peut conduire à des interprétations erronées dans l'analyse des données.

De nouveaux programmes de simulation, plus performants (deuxième génération), ont été développés. Parmi ces programmes, le programme NDF DataFurnace [98]. Il est capable d'extraire des profils en profondeur d'éléments dans des échantillons par des itérations automatiques, sans aucune intervention de l'utilisateur. L'analyste doit fournir uniquement les données expérimentales à analyser, les conditions expérimentales et les

éléments présents dans l'échantillon. Ce code qui est basé sur l'algorithme du recuit simulé s'est distingué de façon significative par rapport aux autres programmes de simulation.

Nous présentons dans la première partie de ce chapitre une description générale du code IBA DataFurnace que nous avons utilisé pour le traitement de nos données expérimentales. Il sera suivi de la description de l'algorithme du recuit simulé utilisé par le code DataFurnace. Un bref aperçu des fichiers input, et des exemples d'utilisation de ce code pour l'interprétation des spectres IBA seront donnés à la fin de ce chapitre. Il importe de souligner que dans ce travail de thèse, ce programme est appliqué à l'étude des effets de voisinage et de l'explosion Coulombienne, pour la première fois.

3.2 Description générale

DataFurnace est un code de simulation utilisé dans les analyses par faisceaux d'ions. Il a été développé principalement et initialement, pour extraire les profils de concentration à partir des spectres RBS, NRA et la PIXE, par la suite [99,100]. Cet outil d'analyse possède un noyau (un sous-programme central) pour tout ce qui est concept et formulation physique nommé NDF, et une interface Windows nommée WINDF. Ce code est conçu pour permettre une analyse précise des données, pour de grandes séries d'échantillons complexes [101]. NDF ajuste automatiquement les données expérimentales; l'utilisateur doit juste introduire les conditions analytiques ainsi que les éléments présents dans l'échantillon. Quatre-vingt-dix-neuf (99) séries de dix (10) spectres peuvent être ajustées simultanément. Chaque spectre est associé à un fichier "géométrie" qui contient les détails du dispositif expérimental, et possède un fichier structure qui contient les éléments permettant de prévoir la structure de la cible.

NDF n'est pas seulement un code de simulation comme la plupart des codes qui traitent les spectres IBA, mais surtout un programme d'ajustement. Dans le processus d'ajustement beaucoup de profils en profondeur sont générés, et un calcul du chi-deux est effectué. Pour un seul ajustement plusieurs milliers de spectres sont simulés. L'algorithme peut augmenter ou diminuer le nombre, la stœchiométrie et l'épaisseur de chacune des couches constituant l'échantillon, et la solution optimale est obtenue pour un chi- deux minimum.

L'analyste peut collecter plusieurs spectres d'un seul échantillon avec différentes énergies du faisceau de particules, ou différentes géométries. L'analyse à la fois de plusieurs spectres permet de réduire les ambiguïtés [102]. Il est souvent relevé qu'une analyse complète d'un échantillon ne peut se baser sur une seule expérience. Des expériences complémentaires sont nécessaires pour une interprétation rigoureuse des données, en faisant varier les paramètres expérimentaux comme l'énergie des ions [103], la géométrie de mesure, ou encore l'utilisation d'autres techniques d'analyse [104-106].

Le code DataFurnace peut être utilisé pour concevoir certaines expériences. L'optimisation des paramètres d'analyse peut être effectuée; les ions, les énergies, la géométrie etc. peuvent être examinés avant d'entamer les expériences, souvent compliquées et onéreuses. La cohésion entre les énergies, les sections efficaces, les pouvoirs d'arrêt etc. peuvent être étudiés. De nouvelles sections efficaces et pouvoirs d'arrêt (mesurées par exemple au niveau du laboratoire) peuvent être insérés dans le programme pour une meilleure cohérence entre les données expérimentales et la simulation.

Le code DataFurnace est basé sur des simulations par itérations successives. La modélisation de la simulation suppose que la physique de base, les mathématiques, et les données nucléaires et atomiques sont valides, et décrivent correctement les processus physiques impliqués. A partir d'une structure connue d'un échantillon, le spectre en énergie peut être obtenu par simulation.

La simulation par DataFurnace passe par plusieurs étapes:

1. Calcul d'un spectre théorique correspondant aux paramètres expérimentaux et à la composition de l'échantillon,
2. Comparaison du spectre simulé avec le spectre expérimental,
3. Identification des différences et modification de la composition initiale de l'échantillon.

Ces itérations sont répétées jusqu'à l'obtention d'un ajustement adéquat entre le spectre expérimental et le spectre théorique. Les paramètres de l'échantillon correspondant à la meilleure simulation sont considérés comme étant la structure de l'échantillon.

3.3 Algorithme du code DataFurnace

3.3.1 La méthode du "recuit simulé" (simulated annealing)

L'algorithme mathématique de base du code IBA DataFurnace utilise la méthode du recuit simulé (Simulated Annealing (SA)). Cette méthode s'inspire du processus de recuit thermique en métallurgie qui consiste à refroidir très lentement et de façon contrôlée, un métal à des paliers de températures d'équilibre thermique, après l'avoir porté à une température élevée. Cette opération permet de modifier les caractéristiques du métal et conduire à des réseaux métalliques plus stables, présentant moins d'irrégularités. Pendant le refroidissement, les atomes qui composent le métal se redistribuent de façon plus régulière par rapport à leur disposition initiale, et leurs états atteignent globalement un minimum d'énergie. Lorsque l'équilibre thermodynamique est atteint à une température donnée, la probabilité pour un système physique d'avoir une énergie E donnée, est proportionnelle au facteur de Boltzmann :

$$p(E) \propto e^{\left(\frac{-E}{k_B T}\right)} \quad (3.1)$$

k_B désigne la constante de Boltzmann.

Le SA s'appuie sur l'algorithme de Metropolis qui permet de décrire l'évolution d'un système physique vers son équilibre thermodynamique à une température donnée. Le système est soumis à une configuration qui doit entraîner une diminution de sa fonction objective, qui représente l'objet à optimiser pour qu'elle soit admise.

Dans le cas des techniques IBA, le spectre expérimental $Y(E)$ est converti en profil de profondeur à travers la fonction $F(x)$ représentant le pouvoir d'arrêt. La fonction objective $O(Y, x)$ est l'objet à optimiser. Elle est construite à partir de l'écart entre le spectre expérimental à ajuster et celui calculé en utilisant un code de simulation standard, et considérant un profil en profondeur de départ. Les solutions obtenues sont organisées par une chaîne de Markov, qui permet d'accepter ou d'exclure une solution potentielle.

Une chaîne de Markov S est une séquence de variables aléatoires $(s_1, s_2, \dots, s_i, \dots, s_n)$ qui permet de modéliser l'évolution dynamique d'un système

aléatoire. L'état du processus à un instant futur dépend de l'état présent, mais pas des états antérieurs :

$$P(s_{i+1}|s_1, s_2, \dots, s_i) = P(s_{i+1}|s_i) \quad (3.2)$$

P est la probabilité s_{i+1} sachant s_i .

La chaîne de Markov est appliquée en utilisant le critère de Metropolis. Ce critère permet de déterminer à chaque itération la probabilité de transition d'un état $O(Y, x_j)$ à un état $O(Y, x_i)$ qu'il définit par :

$$P_{j \rightarrow i} = \begin{cases} 1 & \Delta O \leq 0 \\ \exp -(\Delta O/T) & \Delta O > 0 \end{cases} \quad (3.3)$$

où $\Delta O = O(Y, x_j) - O(Y, x_i)$ est la différence entre deux fonctions objectives consécutives. T est un paramètre de transition caractéristique de la chaîne de Markov, avec $T(s_i) = s_{i+1}$.

Cette probabilité est similaire à celle de la distribution de Boltzmann où le paramètre de transition représente la température, d'où la dénomination du processus de « recuit simulé ». Finalement, le schéma de refroidissement ou "cooling schedule" est la réduction de la température par paliers qui doit être assez longue pour atteindre l'équilibre thermodynamique. Nous pouvons ainsi redéfinir la fonction objective, afin d'établir le lien entre le SA et les spectres IBA, par :

$$\chi_{min}^2(Y, x) = \sum (Y_{data} - Y_{fit})^2 \quad (3.4)$$

La figure 1.11 montre un diagramme simplifié pour décrire le processus SA.

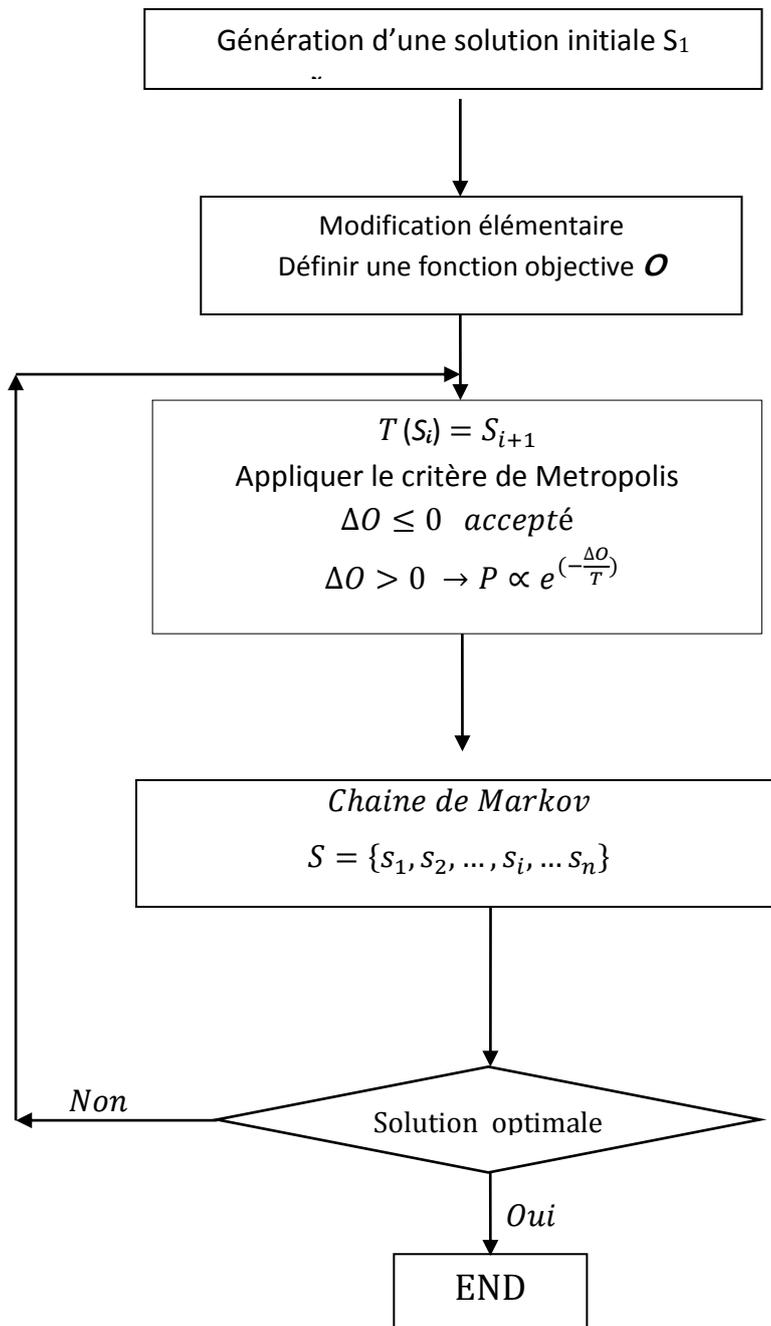


Figure 1.11 : Diagramme du recuit simulé.

3.3.2 Estimation des incertitudes par MCMC (Mark Chain Monte Carlo)

L'algorithme du recuit simulé est basé sur les mathématiques des chaînes de Markov. Une chaîne de Markov S est une séquence $\{s_1, s_2, \dots, s_i, \dots, s_n\}$ où chaque élément s_i dépend uniquement de l'élément précédent s_{i-1} . L'approche Monte Carlo intervient lorsque chaque état s_i est généré à partir du précédent s_{i-1} . La chaîne de Markov peut explorer les états au voisinage de la solution optimale trouvée, et par conséquent une estimation de l'incertitude peut être déterminée.

Le SA est implémenté dans le programme NDF pour l'obtention du minimum global de la fonction objective $O(Y, x)$ qui permet de trouver le meilleur profil en profondeur.

Généralement, les techniques IBA sont totalement quantitatives et les incertitudes associées sont quantifiables. Pour le calcul de l'intervalle de confiance, un algorithme basé sur l'inférence Bayésienne (BI) associée à la méthode de Monte Carlo par Chaînes de Markov (MCMC) a été développé. Une séquence de profils en profondeur qui conduisent tous à un bon ajustage des données expérimentales, dans la limite d'erreurs, est générée. Cette méthode qui peut consommer beaucoup de temps, permet néanmoins la détermination d'une solution moyenne avec une estimation de l'écart type.

3.3.3 Inférence Bayésienne

L'inférence Bayésienne (BI) est une alternative pour calculer les résultats pour un spectre donné. La BI est capable de quantifier la précision des profils en profondeur, grâce à un ensemble de solutions optimales. Ces solutions sont moyennées et il est possible de calculer l'écart type. La combinaison entre le SA et la BI pour obtenir respectivement le profil et l'incertitude est une méthode puissante pour décrire un échantillon par les techniques IBA.

L'idée principale en BI est de construire une fonction de densités d'états à travers les résultats possibles, obtenus par l'algorithme MCMC (Markov Chain Monte Carlo) où la distribution des états de probabilité $\rho(x|Y)$ est créée en utilisant le modèle FM (Forward model), les statistiques de Poisson et la distribution a priori des données par le résultat SA (informations sur le nombre de couches). La distribution de la probabilité des états donne un

moyen (statistique) de calculer le profil moyen $\langle x \rangle$, et l'écart type associé $\sigma(x)$, qui est la représentation associée à l'incertitude de mesure; c'est donc l'intervalle de confiance pour la distribution d'équilibre. La BI est une approche purement statistique qui donne la valeur de la qualité de l'information dans un spectre. Il est donc, nécessaire d'interpréter les résultats de SI et BI pour avoir une évaluation plus réaliste de l'incertitude.

3.3.4 Programme des itérations (Cooling schedule)

Les détails de l'algorithme du recuit simulé englobent un grand nombre de paramètres qui contrôlent la construction des chaînes de Markov et le programme des itérations qui est une méthode de contrôle de la température dans l'algorithme du recuit simulé. Il doit générer la température de départ T_0 , la fonction de décroissance de la température et le nombre de transitions d'états.

3.3.5 Algorithme SA dans le code NDF : Exemple

La figure 1.12 montre l'environnement d'exécution du code NDF, avec des exemples de spectres simulés. NDF fait des commentaires durant son exécution, afin de permettre à l'analyste de suivre l'évolution des paramètres du fit. La température de la chaîne de Markov est donnée avec les valeurs du chi-deux (χ^2), de sorte qu'un fit (ajustement) parfait donnerait une valeur proche de l'unité. Cette valeur ne peut cependant jamais être atteinte à cause du comptage dû au bruit, et en pratique les valeurs inférieures à 10 sont généralement excellentes.

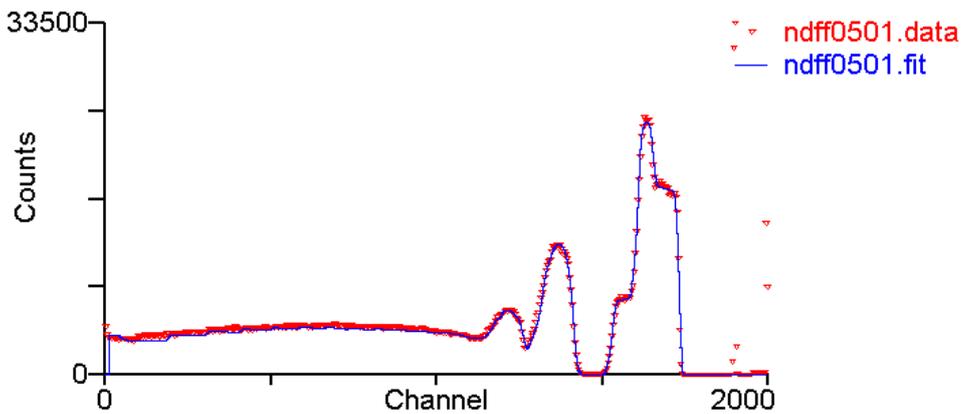
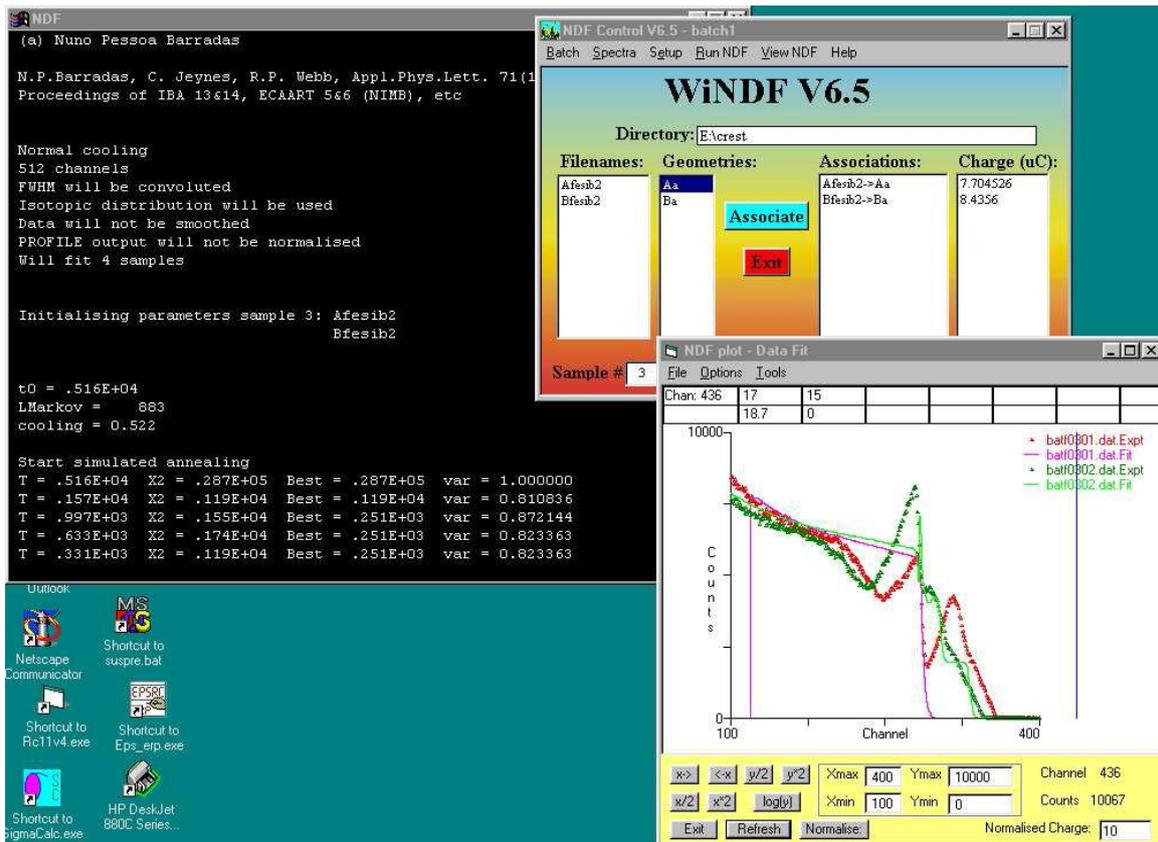


Figure 1.12 Environnement d'exécution du code NDF, avec des exemples de spectres simulés.

$T = .316E+04$ $X2 = .437E+04$ $Best = .869E+02$ $var = 0.92$
 $T = .228E+04$ $X2 = .147E+04$ $Best = .869E+02$ $var = 0.95$
 $T = .145E+04$ $X2 = .462E+03$ $Best = .869E+02$ $var = 0.88$
 $T = .105E+04$ $X2 = .122E+04$ $Best = .869E+02$ $var = 0.92$

$T = .755E+03$ $X2 = .127E+04$ $Best = .869E+02$ $var = 0.80$
 $T = .546E+03$ $X2 = .151E+04$ $Best = .869E+02$ $var = 0.97$

T = .394E+03 X2 = .110E+04 Best = .128E+02 var = 0.79
 T = .285E+03 X2 = .444E+03 Best = .128E+02 var = 0.80
 T = .149E+03 X2 = .556E+02 Best = .128E+02 var = 0.37
 T = .943E+02 X2 = .110E+03 Best = .128E+02 var = 0.57
 T = .598E+02 X2 = .882E+02 Best = .128E+02 var = 0.37
 T = .380E+02 X2 = .919E+02 Best = .128E+02 var = 0.42
 T = .198E+02 X2 = .439E+02 Best = .128E+02 var = 0.41
 T = .126E+02 X2 = .937E+02 Best = .128E+02 var = 0.28
 T = .656E+01 X2 = .358E+02 Best = .128E+02 var = 0.24
 T = .342E+01 X2 = .213E+02 Best = .935E+01 var = 0.27
 T = .179E+01 X2 = .136E+02 Best = .825E+01 var = 0.12
 T = .933E+00 X2 = .141E+02 Best = .769E+01 var = 0.12
 T = .487E+00 X2 = .141E+02 Best = .769E+01 var = 0.17
 T = .254E+00 X2 = .969E+01 Best = .735E+01 var = 0.17
 T = .133E+00 X2 = .830E+01 Best = .694E+01 var = 0.03
 T = .569E-01 X2 = .731E+01 Best = .694E+01 var = 0.01
 T = .245E-01 X2 = .690E+01 Best = .673E+01 var = 0.00
 T = .245E-01 X2 = .676E+01 Best = .673E+01 var = 0.00
 X2 = .570E+01
 X2 = .542E+01
 X2 = .526E+01
 X2 = .514E+01
 X2 = .506E+01
 X2 = .500E+01
 X2 = .495E+01

3.4. Exécuter NDF DataFurnace

3.4.1 Fichier géométrie

A chaque spectre correspondent des paramètres qui lui sont associés. En plus des caractéristiques du faisceau incident, de la géométrie de diffusion et de la résolution du détecteur, la calibration de la chaîne électronique et du produit charge-angle solide sont deux paramètres critiques qui doivent être assez précis pour obtenir un profil en profondeur correct.

Différents fichiers "géométries" peuvent être associés à différents spectres obtenus sous différentes conditions (énergie du faisceau incident, angle de diffusion, etc.). L'association peut être "altérée" si des changements sont apportés.

3.4.2 Fichier structure

Le fichier structure spécifie tout simplement les éléments présents. Il est à souligner que chaque spectre est associé à une seule géométrie et chaque échantillon qui peut avoir plusieurs spectres possède un seul fichier structure.

3.4.3 Fichier batch

Le fichier batch englobe tous les fichiers input ainsi que la charge collectée. Il est donné sous la forme :

datafile N geofile structurefile

où,

datafile est le nom du fichier de données

N est la charge collectée

geofile est le nom du fichier géométrie

structurefile est le nom du fichier contenant les éléments présents dans l'échantillon.

3.4.4 Unité utilisée pour la profondeur

L'unité utilisée dans les calculs de la profondeur par DataFurnace est le TFU (Thin Film Units); un TFU est égal à 10^{15} atomes/cm². La conversion en nm ou en Å est fournie à l'utilisateur qui peut spécifier la densité.

3.5 Comparaison avec les autres codes d'analyse IBA

L'utilisation des techniques d'analyse IBA dépend souvent de la disponibilité et de la précision des programmes d'analyse. Ces programmes sont dédiés principalement à déduire des spectres en énergie, les profils en profondeur des éléments constituant l'échantillon à analyser. Dans la "première génération" de ces programmes sont cités les codes GISA, RUMP et RBX. Initialement, ces programmes ont été conçus pour la simulation de spectres RBS. Certains paramètres comme les diffusions multiples ne sont cependant, pas considérés dans les analyses. DEPTH par contre, est un code qui permet le calcul du "straggling" (élargissement de la perte d'énergie) avec une grande précision. NDF et SIMNRA sont classés comme les programmes les plus utilisés de la nouvelle génération. Ces programmes sont conçus pour traiter tous les cas, expérimentalement possibles, avec une grande précision.

MCERD est également, largement utilisé mais, spécialement dédié pour l'analyse ERDA. Dans le tableau 1.1 sont résumées les principales caractéristiques de ces codes d'analyse utilisant les techniques IBA.

Table 1.1. Résumé des principales caractéristiques des codes d'analyse IBA

Programme d'analyse	Ions incidents	Techniques analytiques	Correction/ Empilements	Calibration en énergie	Rugosité	Porosité
DEPTH	Tous	RBS,ERDA, NRA	Non	Linéaire	Non	Non
GISA	Tous	RBS	Non	Quadratique	Non	Non
NDF	Tous	RBS, EBS, ERDA PIXE, NRA (résonante et Non résonante)	Oui	Quadratique	Oui	Oui
RBX	Tous	RBS,ERDA,NRA non-résonant	Oui	Linéaire	Non	Non
RUMP	Tous	RBS,ERDA	Oui	Linéaire	Oui	Non
SIMNRA	Tous	RBS,ERDA,NRA non-résonant	Oui	Quadratique	Oui	Non

DEUXIEME PARTIE

Le Dispositif Expérimental

Chapitre 1. Généralités sur les accélérateurs.

Chapitre 2. Instrumentation.

CHAPITRE 1

Généralités sur les accélérateurs

1.1 Introduction

1.2 Les différents types d'accélérateurs

1.2.1. Accélérateurs électrostatiques

1.2.1.1. Accélérateur Van de Graaff

1.2.1.2. Accélérateur Tandem

1.2.2. Accélérateurs linéaires à radiofréquences ou Linac

1.2.3. Accélérateurs circulaires

1.3 Principe d'accélération

1.4 Source d'ions

1.4.1 Source d'ions à filament (source de type Freeman)

1.4.2 Source ECR

1.5 Transport de faisceaux.

1.5.1 La lentille électrostatique

1.5.2 Le Secteur magnétique

1.5.3 La Lentille magnétique (et lentille quadripolaire pour les champs forts)

1.1 Introduction

Un accélérateur permet d'accélérer des particules de différentes masses et charges à différentes énergies, constituant ainsi un outil important pour l'étude de l'interaction projectile-matière sous différentes conditions et fournissant des données pouvant servir de nombreuses disciplines ; physique nucléaire fondamentale, astrophysique, physique atomique, matière condensée et sciences des matériaux, biologie et médecine.

Les différents types d'accélérateurs qui existent sont :

1. Electrostatique ; comme le Van de Graaff et le tandem.
2. Linac ou linéaire;
3. Cyclotron (et synchrocyclotron pour $E > 20$ MeV);
4. Bêtatron ; utilisé pour accélérer les électrons énergétiques ($E > 1$ MeV).
5. Synchrotron ; nouvelle machine cyclique pour accélérer les électrons et les protons à hautes énergies.
6. Collisionneurs (collider accelerators) ; ce sont des machines dédiées à l'étude des interactions projectile-cible en mouvement.

Fondamentalement, les accélérateurs sont utilisés pour étudier les noyaux et les réactions nucléaires. Ces études fournissent les données nucléaires qui nous renseignent sur la structure nucléaire, la décroissance du noyau et les interactions des radiations (particules, photons, etc.) avec le noyau. Ces données sont utilisées dans plusieurs domaines des applications nucléaires.

Près de la moitié du parc mondial des accélérateurs est dédié aux applications médicales telles que la radiothérapie et la production des radio-isotopes. Les radio-isotopes peuvent être produits par réacteurs nucléaires ou accélérateurs, selon les besoins. Au sein d'un accélérateur, bien que plusieurs particules ou ions puissent être utilisés pour la production de radio-isotopes, les faisceaux de protons d'énergie allant de 10 MeV à quelques centaines de MeV sont plus utilisés. Un cyclotron de 15 MeV peut produire un nombre considérable de radio-isotopes de faibles durées de vie, comme le ^{18}F (110 mn). Les cyclotrons de 30 à 40 MeV sont surtout utilisés pour la production de radio-isotopes de longue durée de vie comme ^{201}Tl , ^{123}I , ^{67}Ga , ^{103}Pd .

Un accélérateur peut également servir pour la production de neutrons énergétiques, lesquels sont utilisés pour la production de radio-isotopes ou pour les données nucléaires, la dosimétrie, réflectométrie, l'analyse par activation (PGNAA), la BNCT (Boron Neutron Capture Therapy), etc.

Les accélérateurs sont aussi couplés aux réacteurs (ADS : Accelerator Driven System). Les réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur constituent l'une des voies envisagées pour l'incinération des actinides mineurs. Ils font appel à un accélérateur de protons de haute intensité, bombardant une cible de spallation, généralement faite dans un matériau de numéro atomique élevé (W, Pb ou Pb-Bi). Les neutrons générés lors des réactions de spallation sont ensuite multipliés dans le réacteur sous-critique où ont lieu les réactions de transmutation.

Les synchrotrons sont actuellement utilisés pour produire un faisceau primaire énergétique pour fragmenter des noyaux cibles dans le but de produire des faisceaux d'ions secondaires ou des faisceaux radioactifs. Les faisceaux d'ions lourds de hautes énergies sont les plus utilisés pour produire des faisceaux radioactifs. Ils peuvent produire des faisceaux radioactifs d'intensité plus élevée en utilisant les réactions de fragmentation. Cependant, avec des réactions de transfert telles que ${}^3\text{He}({}^6\text{Li}, {}^7\text{Be})$ et ${}^9\text{Be}({}^7\text{Li}, {}^6\text{He})$, des faisceaux radioactifs peuvent être obtenus à faibles énergies (<10 MeV/u). Les faisceaux radioactifs légers les plus utilisés sont : ${}^6\text{He}$, ${}^9\text{He}$, ${}^8\text{Li}$, ${}^{14}\text{O}$, ${}^{15}\text{O}$, et ${}^{15}\text{C}$, ${}^8\text{Li}$, ${}^{10}\text{Li}$.

1.2 Les différents types d'accélérateurs

1.2.1. Accélérateurs électrostatiques

1.2.1.1. Accélérateur Van de Graaff

Un accélérateur électrostatique élémentaire est constitué de deux plaques conductrices, séparées par une différence de potentielle V_0 . Une particule de charge q , soumise à un tel potentiel gagne une énergie qV_0 . Donc, pour les accélérateurs électrostatiques, pour augmenter l'énergie de la particule, il faut pouvoir générer de fortes tensions d'alimentation.

L'inconvénient majeur de l'utilisation des hautes tensions est le risque d'induire des décharges électriques. Pour cela, il faut employer des isolants. En général, pour les accélérateurs électrostatiques les isolants utilisés sont des gaz, particulièrement parce qu'ils peuvent être produits avec une grande pureté. Le plus utilisé est le SF₆. L'utilisation de gaz sous des pressions élevées nécessite des enceintes spéciales.

Un exemple d'accélérateurs électrostatique est le Van de Graaff. Un accélérateur Van de Graaff fournit des faisceaux de particules avec une grande précision en énergie. Il est parfois, utilisé comme un injecteur dans les accélérateurs linéaires.

Un Van de Graaff (VDG) est composé, principalement, de :

1. Une sphère creuse,
2. Une courroie isolante,
3. Deux poulies ; une à l'extrémité HT et l'autre à la base de la machine,
4. Une alimentation en tension pour alimenter la courroie en charges,
5. Deux peignes métalliques.

Le principe de fonctionnement du générateur VDG est basé sur le fait que toute la charge d'un conducteur chargé placé à l'intérieur d'une sphère creuse (ou autre géométrie) conductrice se répartit sur la surface de la sphère. Il en résulte une différence de potentiel $V=Q/C$ sur la surface (Q étant la charge et C la capacité).

- Le terminal est placé au bout d'une colonne isolante qui permet d'atteindre des tensions électrostatiques élevées. Il est connecté à un diviseur résistif dont l'extrémité est reliée au potentiel zéro de la pointe émettrice, afin d'établir un champ électrique accélérateur uniforme le long du tube à vide du faisceau.
- Le peigne polarisé à 20 ou 30 kV dépose des charges électriques sur une courroie qui tourne à grande vitesse (10 à 20 m/s).
- Ces charges sont transportées mécaniquement par la courroie et sont collectées à l'autre extrémité (dite terminal haute tension) par un peigne similaire qui charge ce terminal (isolé) à haute tension.
- La tension terminale est répartie sur un empilement de disques métalliques séparés par des isolants.

Pour monter en tension en évitant les décharges électriques, tout le système est mis dans un gaz isolant tel que le SF₆, N₂ ou les deux combinés (ou autre comme le CO₂).

Les tensions électrostatiques atteintes par ce type de générateurs sont de l'ordre de 10 MV dans des conditions stables.

Ce type de machine délivre des courants continus qui peuvent atteindre environ 10 μA. Cependant, à cause des décharges électriques qui se produisent dans les gaz pour des tensions de l'ordre de quelques millions de volts, ces accélérateurs ne sont pas utilisables au-delà de quelques dizaines de MeV.

1.2.1.2. Accélérateur Tandem

Un accélérateur Van de Graaff possède un tube accélérateur, c'est un accélérateur à un étage. Un tandem par contre, est un accélérateur à deux étages dont l'un peut être un van de Graaff.

Le principe d'accélération dans les tandems se fait en deux étapes :

1. des ions négatifs, simplement chargés, produits par une des deux sources disponibles entrent dans le tube accélérateur de faible énergie avec une énergie initiale minimale (V_m), ajustée par un système optique. Ces ions négatifs sont attirés et accélérés par un potentiel V_T (terminal HT) supérieur d'un ou deux ordres de grandeur à V_m . L'ion gagne alors une énergie $E_m=eV_T$.
2. les ions passent ensuite dans un gaz, contenu dans un canal au sein du terminal HT et deviennent positivement multichargés (ne). Les ions positifs sont accélérés une seconde fois à travers un deuxième tube accélérateur et acquièrent une énergie $E_{HE}=neV_T$. En absence de pertes d'énergie, les ions sortent avec une énergie totale de $E_T=(1+n)eV_T$.

1.2.2 Accélérateurs linéaires à radiofréquences ou Linac.

Avec le développement des accélérateurs linéaires s'est développée la technologie des quadripôles radiofréquence. Ces quadripôles permettent à la fois l'accélération et la focalisation des particules de forts courants.

Dans ce type d'accélérateurs, la trajectoire des particules est toujours rectiligne, mais le champ électrique est de haute fréquence. Les particules sont accélérées par impulsions successives convenablement synchronisées sans avoir à isoler des différences de potentiel équivalentes à l'énergie finale. Le faisceau en passant dans une suite de cavités où règne un champ électrique alternatif va pouvoir atteindre une énergie de quelques centaines de MeV. Les accélérateurs linéaires ne permettaient pas, initialement, de produire des faisceaux d'aussi grande énergie que les accélérateurs circulaires. En revanche ils ont de nombreux avantages. En effet, la géométrie est ouverte, c'est-à-dire que l'on peut envoyer ou extraire le faisceau facilement et un faisceau de flux élevé peut être transporté avec les technologies actuelles. Ils sont souvent utilisés comme injecteurs de faisceaux dans les grandes structures (collisionneurs circulaires), et maintenant développés comme éléments de grands collisionneurs linéaires.

1.2.3. Accélérateurs circulaires

Ce sont les accélérateurs circulaires qui détiennent le record d'énergie. Parmi ces accélérateurs, on distingue (i) ceux qui emploient un champ magnétique fixe, (et un aimant massif) : ce sont le cyclotron et le synchrocyclotron, (ii) ceux utilisant un champ magnétique variable pendant l'accélération, de telle sorte que celle-ci a lieu sur un cercle invariable et que l'électroaimant (annulaire) est, à énergie égale, considérablement réduit.

Les cyclotrons : dans lesquels les trajectoires des particules sont des spirales, sont constitués d'un seul aimant de courbure dont le diamètre peut atteindre plusieurs mètres. Historiquement, le cyclotron a permis la découverte de plusieurs particules fondamentales.

Les synchrotrons : Dans ce type d'accélérateur, les particules circulent sur la même trajectoire presque circulaire à l'intérieur d'une série d'aimants de courbure. L'accélération est réalisée par un champ électrique résonnant. Le rayonnement synchrotron est un rayonnement électromagnétique émis pendant l'accélération d'une particule chargée de haute énergie.

Les synchrotrons produisent des rayonnements sur une large gamme de longueurs d'onde, utilisés par un nombre important de méthodes d'analyse de la lumière. Le rayonnement des synchrotrons de 3ème génération est 10^{12} fois plus brillant que les rayons

émis par des équipements de laboratoire comme les tubes à rayons X. Le spectre du rayonnement synchrotron couvre la gamme d'énergie allant de la lumière visible, UV, R-X au R- γ .

1.3. Principe d'accélération

Le rôle d'un accélérateur est de communiquer aux particules des énergies cinétiques T élevées. On s'intéresse ici, uniquement, à l'accélérateur Van de Graaff, étant notre outil principal de travail.

T change par l'application d'une force selon l'équation :

$$\Delta T = \int F \cdot dx$$

La première loi de Newton stipule qu'une particule en mouvement suit une trajectoire rectiligne jusqu'à ce qu'elle soit soumise à une force. L'accélération se fait, en général, sur une direction, sur l'axe z , on a :

$$\Delta T = \int F_z dz = \int F_z (dz/dt) dt \quad (1.1)$$

La force est définie par la deuxième loi de Newton $F = dP/dt$.

La quantité de mouvement P ($P = m_0 v = (P_x, P_y, P_z)$) de la particule exprime une résistance au changement dans la trajectoire. m_0 étant la masse de la particule.

La loi de Newton est appliquée pour déterminer la trajectoire de la particule à basses énergies. A haute énergie, il faut considérer les lois relativistes.

Pour accélérer la particule, dans le cas des accélérateurs électrostatiques, on utilise une différence de potentiel. L'énergie potentielle U de la particule est transformée en une énergie cinétique dans une colonne accélératrice. Pour communiquer une énergie à une particule, il suffit de l'ioniser puis, de la soumettre à un champ électrique. L'énergie cinétique acquise par un ion de charge électrique q , soumis à une différence de potentiel U est de $T = qU$.

Un faisceau de particules est caractérisé par trois paramètres :

- 1- Une énergie, largement supérieure à l'énergie thermique de la particule,
- 2- Une faible dispersion en énergie,

3- Un mouvement unidirectionnel.

Pour obtenir un faisceau de particules ayant ces caractéristiques, il faut passer par plusieurs étapes : (i) la production des particules chargées, (ii) leur injection dans le tube où les particules seront accélérées, (iii) leur accélération en utilisant des procédés et techniques divers , (iv) leur guidage le long de la trajectoire à l'aide de déflecteurs électrostatiques ou magnétiques (transport du faisceau), (v) leur focalisation pour empêcher leur divergence (lentilles électrostatiques ou magnétiques) et (vi) la préparation du faisceau de particules à son utilisation.

1.4 Source d'ions

Le principe de fonctionnement d'une source d'ions est basé sur l'ionisation d'un gaz. L'ionisation s'effectue soit par impact d'électrons, soit par combinaison d'ondes et d'électrons.

Globalement, les processus intervenant dans la conception d'une source d'ions sont:

- Les mécanismes d'ionisation des gaz,
- La pulvérisation des cibles solides,
- L'émission thermique des filaments,
- Les propriétés des plasmas, et
- l'électromagnétisme.

La qualité d'une source d'ions est déterminée par :

- La quantité d'ions qu'elle peut émettre dans un angle solide donné par unité de temps,
- Le diamètre minimum du flot d'ions, et
- Le rapport nombre d'ions/nombre de neutres créés.

Il existe plusieurs types de sources d'ions. Celles qui nous intéressent ici sont les sources d'ions à filament (source de type Freeman) et les sources à résonance cyclotron (ECR), en raison de leurs utilisation respectivement, dans l'implanteur d'ions et l'accélérateur du CRNA.

1.4.1 Source d'ions à filament (source de type Freeman)

Les ions positifs sont créés par bombardement d'un gaz injecté dans une chambre d'ionisation par des électrons. Ces électrons sont émis par un filament porté à haute température (1200 °C). Dans l'enceinte, initialement sous vide, est créé un plasma suite à l'ionisation du gaz par les électrons ainsi créés et accélérés par une différence de potentiel.

Un champ magnétique de l'ordre de 100 G est appliqué parallèlement au filament pour confiner ces électrons entre l'anode (parois de la chambre) et la cathode afin d'augmenter le rendement d'ionisation.

Les ions positifs sont extraits de la chambre d'ionisation par l'intermédiaire d'un champ électrique, juste à la sortie de la chambre. Ce champ permet également de pré -accélérer le faisceau d'ions à quelques dizaines de keV.

La durée de vie de la source dépend de la nature du filament et du courant d'arc utilisé. Pour protéger le filament de la pulvérisation induite par les ions positifs et augmenter ainsi sa durée de vie, celui-ci est caché derrière une cathode qui, elle, est placée dans la chambre d'ionisation. Cette version améliorée de la source Freeman est connue sous le nom de IHC (Indirectly Heated Cathode).

1.4.2 Source ECR

Ces sources permettent d'avoir des rendements d'ionisation très élevés (jusqu'à 100%) et produisent des faisceaux mono-chargés ou multichargés.

Le principe de fonctionnement de la source ECR repose sur la création d'un plasma dans une chambre de confinement (contenant un gaz, en présence d'un champ magnétique B) en injectant une onde électromagnétique à la fréquence cyclotron donnée par la relation :

$$\omega_{HF} = \frac{qB}{m} \quad (1.2)$$

q et m étant resp. la charge et la masse de l'électron.

Les sources de types « Duoplasmatron » et « Sputter Source » (ionisation par pulvérisation) sont également utilisées dans les accélérateurs comme les tandems. Ces sources sont utilisées principalement pour la production des faisceaux ^1H , ^2H , ^3He et ^4He .

1.5 Transport de faisceaux

Le transport du faisceau depuis l'accélérateur à la chambre à réactions est assuré par des aimants d'analyse et de déviation qui permettent la sélection et l'orientation de l'ion, et les lentilles lesquelles permettent de focaliser et confiner le faisceau de particules et réduire sa divergence. La divergence du faisceau est due à la dispersion de la vitesse des particules et à la charge d'espace qui augmente avec l'intensité du faisceau. Plus la distance à parcourir est grande (comme pour le cas des grandes énergies), plus le nombre de lentilles à utiliser est élevé. Pour les accélérateurs linéaires et circulaires, les systèmes de transport de faisceaux sont composés de plusieurs cellules de focalisation. Les « beamsteerer » et les collimateurs délimitent les dimensions du faisceau.

Un faisceau de particules est caractérisé par un ensemble de paramètres tels que :

- Masse et charge de la particule,
- Energie cinétique (moyenne) de la particule,
- Courant,
- Longueur de l'impulsion (pour un faisceau pulsé),
- Puissance,
- Dimension transversale,
- Parallélisme (émittance),
- Dispersion en énergie.

Pour réduire au minimum la déviation du faisceau de la trajectoire principale, il est nécessaire de focaliser et confiner le faisceau avec des champs électromagnétiques. Ces champs confinent les particules chargées de manière analogue au confinement de la lumière par des lentilles de verre.

Les calculs sont assurés par les équations de Maxwell. Celles-ci décrivent la création et l'évolution des champs électromagnétiques à partir des charges ou de la densité de charges et des courants ou densité de courants.

Les composantes optiques utilisées sont :

- Les lentilles électrostatiques,
- Les secteurs magnétiques, et
- Les lentilles et les quadrupoles magnétiques.

1.5.1.1 La lentille électrostatique

La lentille électrostatique est la région axiale du champ électrique qui accélère ou dévie les particules. A l'extérieur de la lentille électrostatique, les particules suivent des trajectoires rectilignes. Une lentille électrostatique permet de :

- Confiner le faisceau au centre de la trajectoire,
- Focaliser le faisceau vers un point (réduction du rayon),
- Former une image (intensification d'images).

La trajectoire d'une particule sous l'action d'un champ symétrique (en coordonnées cylindriques) est déterminée par l'expression :

$$E_r(r, z) \cong -\frac{r}{2} \left(\frac{\partial E_z(0, z)}{\partial z} \right) \quad (1.3)$$

On définit la puissance d'une lentille par son pouvoir (P) à confiner le faisceau. Cette puissance est d'autant plus élevée que la longueur focale (f) est faible ;

$$P=(f)^{-1} \quad (1.4)$$

P est donné en unités de m^{-1} ou dioptries.

Le rapport [longueur focale]/[diamètre de la lentille] =f/D définit le nombre-f de la lentille.

Le nombre-f renseigne sur la taille minimale du spot de focal et le flux maximal atteignable par le système optique.

1.5.1.2 Le Secteur magnétique

Un secteur magnétique est un gap où règne un champ magnétique constant ($B(x, y, z)=B_0$). La focalisation unidimensionnelle résulte de la forme du champ local aux extrémités du gap. A l'extérieur, le champ est nul.

Les particules entrent dans le champ à travers un orifice en suivant une trajectoire circulaire. Le secteur permet de focaliser les particules de même moment (mv) entrant sous un certain angle au centre.

La particule de charge q se déplace sur une orbite centrale avec une impulsion donnée par :

$$P_0 = mv_0 = qB_0r_0 \quad (1.5)$$

et une vitesse angulaire ;

$$\omega = \frac{v_0}{r_0} = q \frac{B_0}{m} \quad (1.6)$$

B_0 étant la valeur du champ au niveau de l'orbite centrale (rayon r_0). B varie en fonction du rayon selon la relation ;

$$B = B_0 \left(\frac{r}{r_0} \right)^{-n} \quad (1.7)$$

n est une constante (nulle pour un champ homogène). Pour $n \neq 0$, dans le plan médian, il existe une composante radiale du champ exprimée, dans le cas des faibles variations du champ et avec l'hypothèse de la symétrie du champ par rapport au plan médian, par:

$$B_r = z \frac{\partial B_r}{\partial z} = z \frac{\partial B_z}{\partial r} = -znB_0 \left(\frac{r}{r_0} \right)^{-n-1} \quad (1.8)$$

Les secteurs magnétiques sont utilisés pour confiner les faisceaux de particules dans les installations d'accélérateurs électrostatiques et circulaires et dans les spectromètres.

1.5.1.3 La Lentille magnétique (et lentille quadripolaire pour les champs forts)

Une lentille magnétique est constituée d'un enroulement de spires conductrices parcourues par un courant électrique, engendrant un champ magnétique axial.

L'ensemble des enroulements est enfermé dans une armature ferromagnétique qui piège le champ magnétique. Les lignes de champ sont confinées au voisinage de l'axe de la bobine grâce à des pièces polaires. La forme et l'intensité du champ magnétique dépendent de la forme de ces pièces polaires.

Les propriétés électro-optiques de la lentille magnétique sont calculées à partir de la distribution ($B(z)$) du champ d'induction B le long de l'axe de la bobine.

Dans une lentille magnétique quadripolaire le champ est produit par des pièces polaires ayant des surfaces hyperboliques. Le champ est donné par :

$$B_x = B_0 \frac{y}{a} \quad (1.9)$$

$$B_y = B_0 \frac{x}{a} \quad (1.10)$$

a étant la distance minimale entre la surface des pièces polaires et l'axe.

Les équations des trajectoires sont données par :

$$\frac{d^2y}{dz^2} = \frac{qB_0}{m_0av_z} y \quad (1.11)$$

$$\frac{d^2x}{dz^2} = -\frac{qB_0}{m_0av_z} x \quad (1.12)$$

Avec les solutions :

$$x(z) = x_1 \cos \sqrt{C_m} z + \frac{x'_1 \sin \sqrt{C_m} z}{\sqrt{C_m}} \quad (1.13)$$

$$x'(z) = -x_1 \sqrt{C_m} \sin \sqrt{C_m} z + x'_1 \cos \sqrt{C_m} z \quad (1.14)$$

$$y(z) = y_1 \cosh \sqrt{C_m} z + \frac{y'_1 \sinh \sqrt{C_m} z}{\sqrt{C_m}} \quad (1.15)$$

$$y'(z) = -y_1 \sqrt{C_m} \sinh \sqrt{C_m} z + y'_1 \cosh \sqrt{C_m} z \quad (1.16)$$

$$C_m = \frac{qB_0}{m_0av_z} \quad (m^{-2}) \quad (1.17)$$

x_1, y_1, x'_1 et y'_1 sont les positions et angles initiaux.

La longueur focale est donnée par :

i) Dans la direction x :

$$f_1 = \frac{1}{\sqrt{x}} \sin \sqrt{x} l \quad (1.18)$$

ii) Dans la direction y :

$$f_1 = -\frac{1}{\sqrt{x}} \sinh \sqrt{x} l \quad (1.19)$$

l étant la longueur axiale des pièces polaires.

Un autre paramètre important pour définir un quadripôle est l'indice de champ $n = R^2 k$ avec $0 < n < 1$, et $k = \frac{1}{BR} \frac{\partial B_y}{\partial x}$ [m^{-2}].

k est appelé constante de raideur du quadripôle.

CHAPITRE 2

Instrumentation

- 2.1 Introduction
- 2.2 Chambre d'analyse et électronique d'acquisition
 - 2.2.1 La chambre d'analyse
 - 2.2.2 Les détecteurs
 - 2.2.2.1 Détecteurs de particules chargées
 - 2.2.2.2 Détecteurs de photons
 - 2.2.3 Le préamplificateur
 - 2.2.4 L'amplificateur
 - 2.2.5 Le générateur d'impulsion
 - 2.2.6 La carte d'acquisition
- 2.3 Elaboration des cibles
 - 2.3.1 Préparation des substrats
 - 2.3.2 Dépôt des couches minces
- 2.4 Etalonnage de l'accélérateur
- 2.5 Sources d'erreurs
 - 2.5.1 Mesure de la charge
 - 2.5.2 Identification des particules
 - 2.5.3 Empilements
 - 2.5.4 Bruit Electronique

2.1 Introduction

L'exploitation du faisceau se fait dans une chambre d'analyse (ou Endstation). Chaque chambre d'analyse est spécifique à l'expérience en cours. Outre les portes échantillons et portes détecteurs, une chambre peut contenir, en particulier, une cage de Faraday, un goniomètre et/ou un système de chauffage ou de refroidissement.

Des groupes de pompage (primaire et secondaire et parfois ultravide) accompagnent les lignes de faisceaux et les chambres à réactions pour assurer un vide minimum de 10^{-5} mb. La chambre à réactions est reliée à la chaîne d'acquisition par des passages étanches à travers lesquels on alimente aussi les détecteurs (ou autre appareil). Ci-après, on décrit les différents modules électroniques utilisés dans une expérience typique utilisant un faisceau d'ions, ainsi que les erreurs pouvant s'y produire.

2.2 Chambre d'analyse et électronique d'acquisition

2.2.1. La chambre d'analyse

Un schéma simplifié de la chambre à réactions (d'analyse) utilisée est donné à la figure 2.1, avec l'électronique associée. C'est une chambre dédiée à la microanalyse avec les réactions nucléaires et la RBS. Le porte-échantillon, situé au centre de la chambre, est doté de deux mouvements; de rotation, assurant une inclinaison par rapport à la direction du faisceau incident, et de translation verticale, permettant une analyse successive de plusieurs échantillons sans faire d'entrée d'air.

Dans la chambre sont incorporés deux plateaux dont le mouvement de rotation, centré sur l'axe de la chambre, est commandé de l'extérieur. Chaque plateau peut supporter trois détecteurs placés à 30° l'un de l'autre. Cette option permet de changer l'angle de détection de l'extérieur sans ouvrir et casser le vide dans la chambre.

Un repousseur d'électrons est placé autour de l'échantillon pour éliminer les charges indésirables. L'intensité du faisceau, collectée au niveau de l'échantillon, est donnée par un intégrateur de courant.

Le vide qui règne dans la chambre à réactions est généralement meilleur que 10^{-5} mb, assuré par une pompe primaire et une pompe secondaire à diffusion d'huile.

2.2.2 Les détecteurs

Plusieurs types de détecteurs ont été utilisés ; (i) détecteurs à barrière de surface et les jonctions implantées pour la détection des particules chargées, et (ii) détecteurs NaI et Germanium hyperpur (HPGe)) pour la détection des photons (Rayons X et gamma).

2.2.2.1 Détecteurs de particules chargées

Ces détecteurs sont caractérisés, principalement, par leur surface active, leur profondeur de détection et leur résolution en énergie. Les faibles surfaces actives sont utilisées lors des expériences ne nécessitant pas un rendement élevé ou lorsque la section efficace des réactions utilisées sont importantes telle que la diffusion élastique. Une faible surface de détection permet une meilleure résolution. Ces conditions correspondent à celles de notre travail où le détecteur utilisé est une jonction pn au silicium ayant une surface active de 25 mm^2 et une résolution de 10 keV.

La résolution est définie par la largeur à mi-hauteur du pic des particules alpha émises par l' ^{241}Am . Elle peut être affectée par le bruit de la chaîne électronique et la fenêtre d'entrée du détecteur. En effet, si l'épaisseur de la fenêtre d'entrée n'est pas suffisamment faible, elle engendrera une perte d'énergie et une dispersion supplémentaires pour les particules à détecter. En général, les jonctions pn sont dédiées aux expériences de spectroscopie alpha et beta et la fenêtre d'entrée du détecteur peut varier de quelques dizaines à quelques centaines d'Angströms, selon le type de détecteur et le fournisseur.

La profondeur de détection varie aussi selon le détecteur (et donc l'application) et globalement, varie entre 100 et 2000 μm . Elle augmente en fonction de la tension de polarisation. Le détecteur le plus utilisé dans ce travail a une profondeur de détection minimale de 500 μm .

Les détecteurs à barrière de surface sont préférés aux jonctions pn dans le cas où l'expérience est réalisée dans un environnement de haute température bien que le courant de fuite des pn soit faible même aux températures élevées. Mais, à haute température, le

détecteur peut être refroidi jusqu'à -60°C pour réduire le courant de fuite et le détecteur à barrière de surface est le plus adapté.

2.2.2.2 Détecteurs de photons.

Un détecteur de photons (Si(Li) ou HPGe) est fourni avec son propre préamplificateur et sont montés sous vide. Pour nos besoins, nous avons utilisé une Gmx (HPGe). Celle-ci couvre la gamme d'énergie 3 keV – 10 MeV, détectant aussi bien les gammas que les rayons X, avec une bonne résolution. Le diamètre du cristal est de 50 mm et la fenêtre du détecteur, en Béryllium, est de 0.5 mm. Sa résolution est de 1.75 keV pour le gamma du ^{60}Co (1.33 MeV) et 512 eV pour le Fe^{55} (5.9 keV). L'efficacité de ce type de détecteurs n'est par contre, pas élevée. L'efficacité mesurée pour le gamma du ^{60}Co est de 15%. Ce type de détecteurs fonctionne sous la température de l'azote liquide.

Quand l'efficacité de détection exigée est élevée, on utilise un scintillateur NaI. Le détecteur est couplé à un tube photomultiplicateur qui convertit un flux de photons en un signal électrique. L'efficacité de ce type de détecteur est de 100% mais, sa résolution n'est pas adéquate pour les analyses multiélémentaires.

2.2.3 Le Préamplificateur

Le préamplificateur intègre la charge déposée dans le détecteur. Le préamplificateur utilisé est ORTEC142A. Ce module permet de travailler en temps (T) ou en énergie (E).

2.2.4 L'Amplificateur

La mise en forme et l'amplification des impulsions issues du préamplificateur sont assurées par l'amplificateur. Le signal résultant est une gaussienne dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie des particules détectées. Pour une bonne mise en forme, l'amplificateur employé est de type ORTEC572.

2.2.5 La carte d'acquisition (MCA/MBC)

La carte MCB (Multi-Channel Buffer) est dédiée à l'acquisition sous PC. Elle permet de transformer les différentes hauteurs des impulsions en un histogramme et de l'enregistrer sous forme de spectres en énergie en utilisant les fonctions MCA (Multi-Channel Analyser) et

ADC (Analog-to-Digital Converter) à travers un programme adéquat. Le software utilisé est « MAESTRO » conçu pour travailler sous windows.

2.3 Elaboration des cibles

2.3.1 Préparation des substrats

Les substrats en graphite ont été découpés à partir d'un barreau volumineux de graphite en lamelles de 2 à 3 mm d'épaisseur et de 1 cm² de surface. Cette étape est suivie par l'étape de polissage qui consiste à obtenir en premier lieu, des échantillons minces à faces parallèles et de surface miroir. Les différentes étapes suivies sont :

1. Pré-polissage : cette étape permet d'éliminer la déformation mécanique de la structure superficielle de l'échantillon suite à la découpe.
2. Polissage grossier : éliminer les rayures laissées par le pré-polissage par l'utilisation de papiers abrasifs à petits grains.
3. Polissage fin : Il est utilisé pour éliminer les rayures apparues après avoir effectué le polissage grossier. Les tailles des grains du papier abrasif utilisé sont très petites.
4. Polissage de finition : Il est utilisé afin d'obtenir un poli miroir. Avant d'entamer cette étape, les échantillons sont nettoyés aux ultrasons dans de l'eau distillée. Le poli-miroir est obtenu en versant sur l'abrasif, constitué d'une toile adéquate solidaire d'un plateau en rotation, de l'alumine.

2.3.2.1 Dépôt des couches minces

Après avoir soigneusement rincé les échantillons afin d'éliminer toute trace d'alumine à la surface, ils sont introduits dans une enceinte où des couches minces d'aluminium et d'or sur la surface miroir sont déposées sous un vide de 2.10^{-6} mb. La qualité des dépôts est contrôlée par une observation au microscope électronique à balayage. L'épaisseur des films est donnée directement par une balance à quartz (cristal piézoélectrique) positionnée au voisinage du substrat dans l'évaporateur.

2.4 Etalonnage de l'accélérateur

Les mesures expérimentales sont effectuées en utilisant les faisceaux d'ions ${}^4\text{He}^+$, H^+ , D^+ , H_2^+ , D_2^+ et H_3^+ . Ces particules sont fournies par l'accélérateur Van de Graaff de 3.75 MV du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA). Arrivant dans la partie accélération, elles sont soumises à une différence de potentiel qui leur communique un mouvement uniformément accéléré.

L'énergie des particules accélérées est donnée par une sonde de lecture du champ magnétique, au niveau de l'aimant d'analyse. Elle est proportionnelle au carré de l'induction magnétique régnant dans l'entrefer suivant la relation :

$$E = [(q \cdot r)^2 / 2m] \cdot B^2 \quad (2.1)$$

$$= K \cdot B^2 \quad (2.2)$$

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

$$f = G \cdot B \quad (2.3)$$

ce qui donne:

$$E = M \cdot f^2 \quad (2.4)$$

La relation décrivant l'énergie du faisceau en fonction de la fréquence de précession du noyau de la particule accélérée n'est pas aussi simple. Il faut tenir compte des autres paramètres physiques et techniques tels que l'existence d'un champ rémanent et les incertitudes sur la détermination du rayon de courbure et la mesure du champ magnétique. Des termes correctifs prenant en considération ces paramètres sont alors, introduits pour mesurer l'énergie. On a:

$$E = A \cdot f^2 + B \cdot f + C \quad (2.5)$$

Les constantes sont déterminées à partir des résonances fines de réactions nucléaires dont les énergies sont connues avec une grande précision. Les réactions les plus utilisées sont données dans le tableau 2.1. Nous avons sélectionné quelques résonances parmi les plus utilisées pour la calibration des accélérateurs. Pour l'accélérateur du CRNA, on utilise généralement les réactions ${}^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma){}^{16}\text{O}$ et ${}^{27}\text{Al}(p,\gamma){}^{28}\text{Si}$. La figure 2.2 montre la courbe de rendement obtenue avec la réaction ${}^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma){}^{16}\text{O}$.

Table 2.1. Résonances utilisées pour la calibration de l'accélérateur.

Réaction	E_R (keV)	Γ (keV)	Référence
$^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$	872	4.7	107
$^{15}\text{N}(p,\alpha\gamma)^{12}\text{C}$	897	3.25	108
$^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$	992	0.1	109
$^9\text{Be}(p,\gamma)^{10}\text{B}$	1083	1.5	110
$^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$	1348	4.5	111
$^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$	1373	12	112
$^{23}\text{Na}(p,\gamma)^{24}\text{Mg}$	1417	0.3	113
$^{13}\text{C}(p,\gamma)^{14}\text{N}$	1747	0.077	114
$^{58}\text{Ni}(p,\gamma)^{59}\text{Co}$	1843	0.1	115

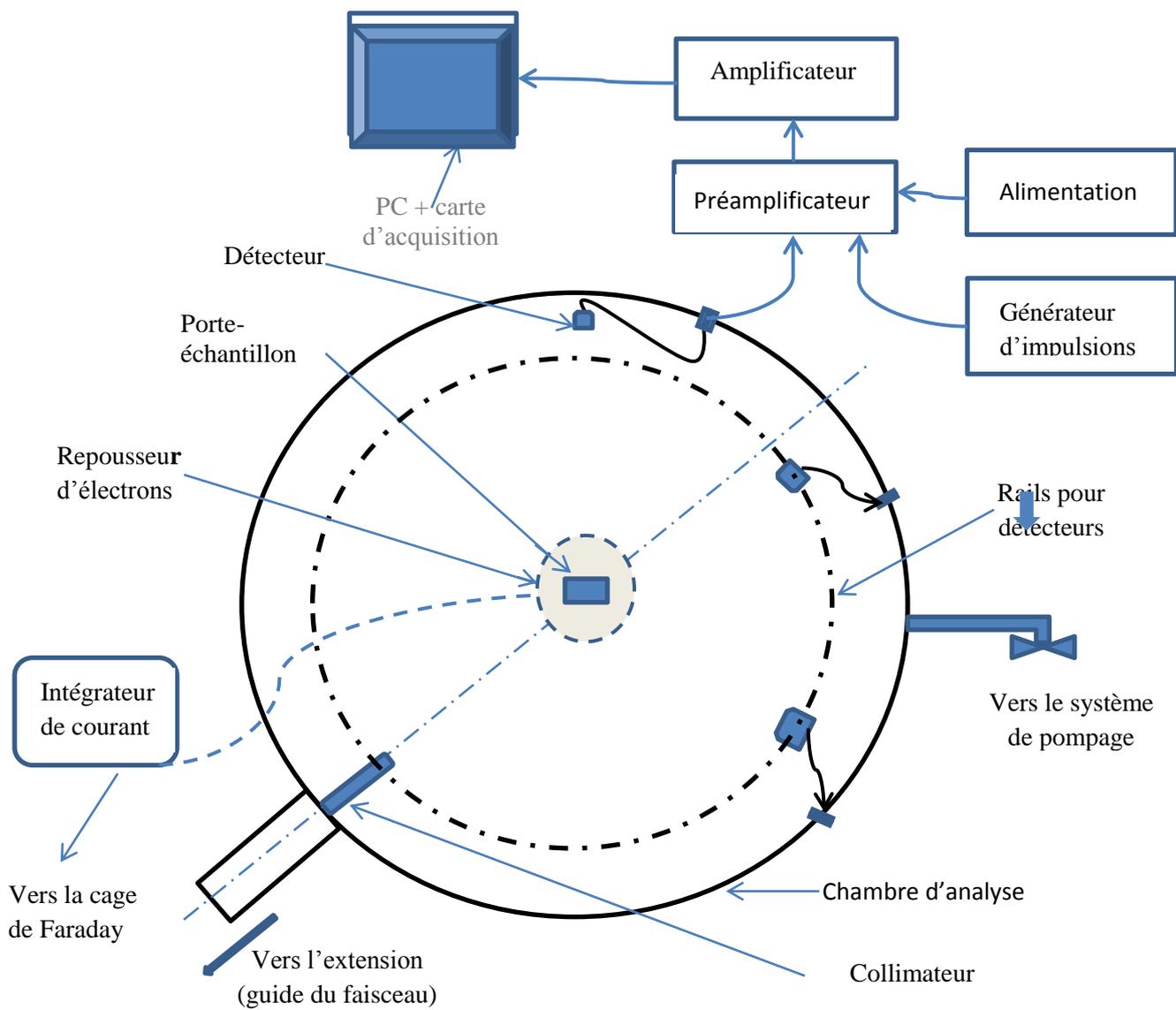


Figure 2.1. Schéma de la chambre d'analyse utilisée avec la chaîne électronique associée.

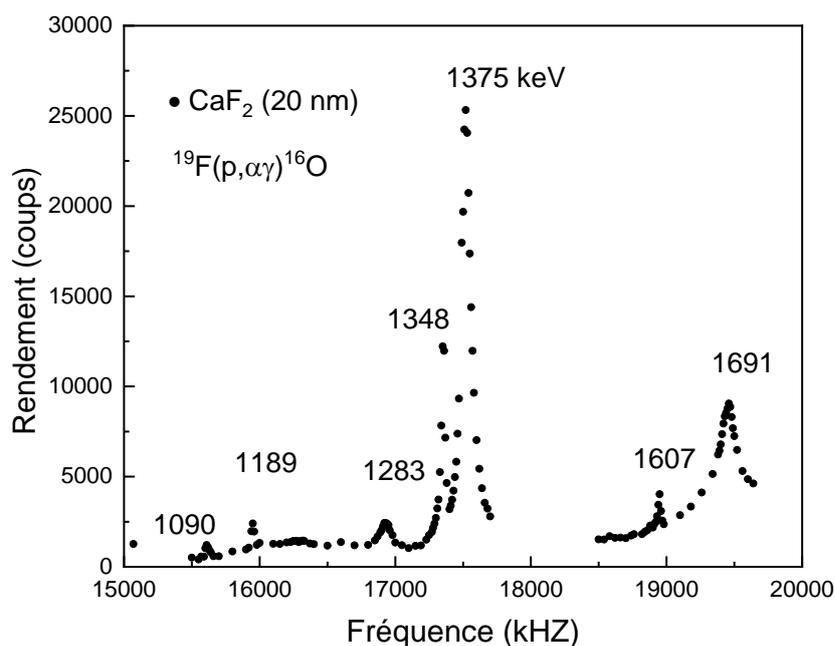


Figure 2.2. Variation du rendement de la réaction $^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$ en fonction de la fréquence.

2.5 Sources d'erreurs

L'identification des sources d'erreurs dans les mesures est essentielle dans la démarche expérimentale. La qualité de la mesure, la pertinence des résultats obtenus ou leur compatibilité avec la théorie sont jugées par l'évaluation des erreurs rencontrées dans la réalisation d'un travail expérimental. Il s'agit d'examiner dans cette partie du chapitre les différentes sources d'erreurs qui peuvent influencer la qualité des résultats expérimentaux obtenus dans les expériences utilisant les techniques IBA.

2.5.1 Mesure de la charge

La charge collectée Q est une quantité très importante pour les analyses quantitatives utilisant les techniques IBA. Le courant dû au faisceau incident est généralement mesuré à l'aide d'une cage de Faraday située à l'arrière de la chambre à réactions. Afin d'assurer une bonne mesure du courant, des précautions doivent être prises. En effet, l'impact des ions sur une surface peut conduire à l'émission d'électrons secondaires

pouvant entraîner une surestimation de la mesure de l'intensité du faisceau. Ce processus peut être corrigé en plaçant autour de l'échantillon une électrode polarisée négativement, dont le rôle est de repousser les électrons secondaires.

2.5.2 Identification des particules

Lors des expériences d'analyse par faisceaux d'ions, il arrive qu'on détecte des événements qui sont produits par des ions autres que ceux désirés. Ce qui est causé essentiellement par une contamination du faisceau incident par des impuretés moléculaires possédant une masse égale à la masse des ions sélectionnés. Ce phénomène est imputé aux effets mémoires de la source d'ions.

2.5.3 Empilements

Dans les applications en mode impulsion, des empilements peuvent se produire lors des mesures à fort taux de comptage. Les impulsions arrivant au système spectroscopique ne sont pas reconnues séparément. Ce qui engendre une perte d'information, dépendamment du temps mort qui peut être défini comme le plus petit intervalle de temps séparant deux événements. Le deuxième événement ne pouvant être détecté si le premier n'est pas totalement traité. Ce qui se traduit par un taux de comptage apparent plus petit que le taux de comptage réel. Le temps mort correspond à une limitation technologique liée au temps de traitement des impulsions par les différents modules composant la chaîne de détection. Pour limiter les erreurs de comptage dus aux empilements, on utilise généralement des amplificateurs dotés d'un circuit de rejet d'empilements. L'arrivée d'une impulsion pendant le traitement de la précédente est signalée.

2.5.4 Bruit électronique

Le bruit électronique peut être défini comme une fluctuation imprévisible se superposant au signal utile. Il est très difficile d'extraire des informations si ces variations aléatoires signal-bruit ne sont pas négligeables devant le signal utile.

Les sources de bruit sont multiples mais restent différentes quant à leur contribution au bruit total. Il est fastidieux de localiser les bruits périodiques provenant de la chaîne électronique de détection. Il n'existe pas de protocoles particuliers pour supprimer ces

bruits. Cependant, des tests peuvent être effectués notamment au niveau des connexions entre les modules constituant la chaîne spectroscopique. Une mauvaise qualité du blindage des câbles utilisés, leurs longueurs et une mauvaise mise à la terre peuvent également causer des perturbations sur le signal utile. La contribution des vibrations mécaniques causées par les pompes se trouvant à proximité du dispositif expérimental par exemple, et les signaux parasites induits par les émetteurs de hautes fréquences peut s'avérer très gênante pour les mesures. On utilise dans ces cas, des supports isolants et des filtres adéquats aux conditions de l'expérience.

TROISIEME PARTIE

RESULTATS

Introduction

Chapitre 1. Application du formalisme diélectrique de Lindhard au calcul de la perte d'énergie des ions H_2^+ dans l'aluminium.

Chapitre 2. Application du code DataFurnace au traitement des spectres IBA.

Chapitre 3. Détermination du rapport des pouvoirs d'arrêts moléculaire et atomique de l'hydrogène avec la méthode de retrodiffusion Rutherford.

Chapitre 4. Utilisation de la diffusion élastique non-Rutherford $^{12}C(p,p)^{12}C$ pour la mesure de la perte d'énergie des ions H_2^+ dans l'aluminium.

Chapitre 5. Etude de l'effet de voisinage en utilisant les résonances à 1121 keV de la diffusion élastique $^{27}Al(p,p)^{27}Al$ et 1440 keV de la diffusion élastique $^{12}C(d,d)^{12}C$.

Introduction

Les molécules tendent à se dissocier au moment de leur pénétration dans un solide, et à se séparer par explosion Coulombienne [3,4]. La proximité dans l'espace et dans le temps des fragments affecte le processus de pénétration à travers un changement dans la valeur du pouvoir d'arrêt et la dispersion en énergie (straggling). Dû aux forces de répulsion Coulombiennes, les noyaux de l'ion moléculaire suivent des directions opposées dans le matériau. Pour suivre leurs mouvements, plusieurs paramètres sont pris en compte ; (i) les conditions initiales, (ii) le mouvement interne de la molécule et son énergie de dissociation, (iii) la distance d'équilibre entre les noyaux dans le plus bas état vibrationnel et (iv) la fréquence d'oscillation du milieu. Le ralentissement calculé en tenant compte des corrélations entre les ions de la molécule (ou de l'agrégat d'atomes) est trouvé supérieur à la somme des ralentissements de chacun des constituants. La proximité et la simultanéité des interactions des ions conduisent à une augmentation de la densité d'énergie déposée. Ainsi, lorsqu'un ion moléculaire ayant une énergie de quelques centaines de keV à quelques MeV pénètre dans une cible solide, il subit la perte de ses électrons de liaison dès les premières couches atomiques ; les fragments positifs qui en résultent se repoussent mutuellement et engendrent de forts effets de voisinage qui modifient les paramètres physiques observables.

Des efforts considérables ont été déployés pour mettre en évidence l'effet de voisinage (moléculaire) sur le ralentissement des ions dans les solides. Plusieurs résultats sont rapportés, en particulier ces deux dernières décennies [5-14].

Le but de ce travail est l'étude de l'effet de voisinage et l'explosion Coulombienne rencontrés au cours du ralentissement des ions issus de la dissociation des molécules H_2 et D_2 sous l'effet du potentiel répulsif écranté. Il s'agit de:

- (i) la détermination de la variation de la distance internucléaire en fonction de l'énergie incidente,
- (ii) l'évaluation du terme d'interférence,
- (iii) l'évaluation du rapport du pouvoir d'arrêt moléculaire/atomique, pour une cible de silicium,

- (iv) l'application de la diffusion élastique et les résonances fines pour l'observation des effets de voisinage et de l'explosion Coulombienne.

Pour l'étude expérimentale de l'effet de voisinage, les méthodes utilisées sont basées sur la diffusion élastique [7] ou une réaction résonante [28]. Il s'agit dans ce cas, de scanner l'énergie/nucléon des ions moléculaires incidents autour de l'énergie correspondant à une résonance étroite dans la section efficace de la réaction utilisée. Le rendement correspondant, inversement proportionnel au ralentissement des fragments moléculaires, donne une image directe de l'évolution de l'effet de voisinage et de l'explosion Coulombienne en fonction de la profondeur (parcours de l'ion incident). L'intensité (coups/eV) des particules rétrodiffusées sur une surface solide est inversement proportionnelle à la valeur moyenne du pouvoir d'arrêt mesuré dans le voisinage immédiat d'une collision. Pour un ion moléculaire, l'effet de voisinage a pour conséquence d'augmenter la perte d'énergie juste avant la collision et donc, l'intensité du signal résultant est diminuée. Ceci permet l'étude de cet effet par la rétrodiffusion élastique et l'utilisation d'une résonance permettrait d'améliorer la sensibilité de la méthode. Nous avons considéré les résonances des réactions, $^{12}\text{C}(p,p)^{12}\text{C}$, $^{12}\text{C}(d,d_0)^{12}\text{C}$ et $^{27}\text{Al}(p,p_0)^{27}\text{Al}$ aux énergies (résonances) 1.7 MeV, 1.4 MeV et 1.2 MeV, respectivement.

Pour le traitement des données expérimentales, nous avons utilisé le code DataFurnace. Il s'agit d'un programme de simulation de spectres d'analyse des techniques IBA entièrement manuel. Il a été développé à l'origine pour extraire les profils en profondeur à partir des spectres de l'analyse par faisceaux atomiques. Il calcule les profils en profondeur à partir des spectres et des données expérimentales. Il est utilisé dans cette étude, et pour la première fois, pour déterminer l'augmentation de la perte d'énergie des faisceaux moléculaires à partir de l'analyse des spectres EBS. Etant complexe, relativement aux autres programmes de traitements (IBA) comme SIMNRA, et pour sa maîtrise nous l'avons d'abord utilisé pour le traitement des spectres IBA, issus de l'irradiation du graphite avec un faisceau de deutons.

Cette partie est organisée en cinq chapitres. Le premier chapitre est dédié à l'application du formalisme diélectrique de Lindhard au calcul de la perte d'énergie des ions H_2^+ dans l'aluminium. Initialement, ce formalisme est élaboré pour traiter les ions atomiques. Il s'agit

d'évaluer le terme d'interférence, comptant pour la contribution des charges corrélées des ions de la molécule H_2 , en procédant à une extension du programme de calcul basé sur le formalisme diélectrique de Lindhard. Dans le deuxième chapitre, on présentera les résultats d'une étude menée pour suivre les effets des analyses par faisceaux d'ions sur des cibles fragiles comme les polymères. Nous avons utilisé le $(CH_2)_n$. Le traitement des données étant fait avec le programme DataFurnace. Ceci nous a permis d'optimiser l'utilisation de ce code.

Les résultats de ces deux applications nous ont permis de mener à bien l'étude du ralentissement des ions moléculaires dans les solides.

Le rapport des pouvoirs d'arrêt moléculaire et atomique de l'hydrogène déterminé avec la méthode de rétrodiffusion Rutherford est présenté dans le chapitre trois et les résultats de l'utilisation de la diffusion élastique non-Rutherford $^{12}C(p,p)^{12}C$ pour la mesure de la perte d'énergie des ions H_2^+ dans l'aluminium sont donnés dans le chapitre quatre. Le chapitre cinq est consacré à l'application respectivement des résonances 1121 keV de la diffusion élastique $Al^{27}(p,p)Al^{27}$ et 1440 keV de la diffusion élastique $C^{12}(d,d)C^{12}$, pour l'observation de l'effet de voisinage.

CHAPITRE 1

Application du formalisme diélectrique de Lindhard au calcul de la perte d'énergie des ions H_2^+ dans l'aluminium.

Dans ce chapitre nous exposons les résultats numériques de la perte d'énergie des ions moléculaires H_2^+ , obtenus par le traitement théorique basé sur le formalisme diélectrique de Lindhard. Nous avons pour cela introduit dans le programme conçu pour le calcul de la perte d'énergie des ions atomiques, les équations établies par N. R. Arista pour l'évaluation de l'effet d'interférence entre les ions d'un projectile moléculaire se déplaçant dans une cible solide. La figure 3.1 illustre la variation du rapport I/S_p de la fonction d'interférence I et du pouvoir d'arrêt S_p pour un proton isolé, en fonction de la distance r_{12} entre les deux protons constituant la molécule d'hydrogène, pour différentes valeurs de la vitesse v des ions moléculaires H_2^+ . Une cible solide d'aluminium a été utilisée dans ce travail. Les trois électrons de valence de l'aluminium ont été considérés, correspondant à un rayon de Wigner-Seitz $r_s = 2.07$ u.a., et qui donnent une fréquence plasmon $\omega_p = 0.58$ u.a. Les interférences positive et négative sont observées, dépendamment de la distance r_{12} et de la vitesse v .

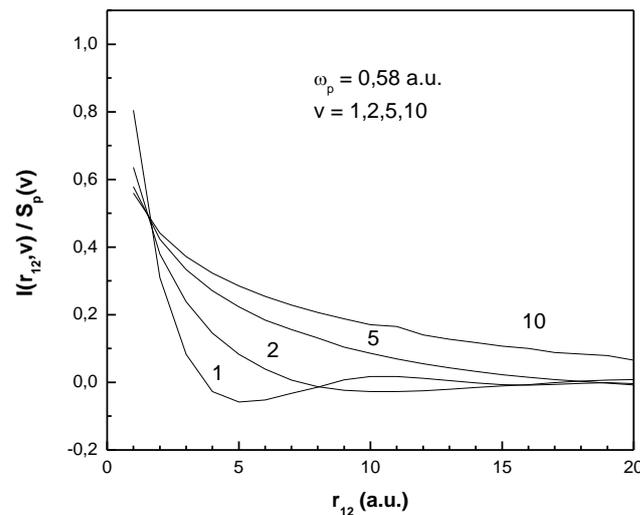


Figure 3.1. Rapport du pouvoir d'arrêt calculé, pour une cible d'aluminium, en fonction de la distance internucléaire r_{12} , pour les vitesses $v = 1, 2, 5, 10$ u.a. Les interférences positives sont observées sur cette figure, dépendamment de r_{12} et v .

Pour évaluer l'influence de la distribution de la densité électronique sur le pouvoir d'arrêt moléculaire, nous avons appliqué le formalisme diélectrique, utilisant les descriptions données par Gertner et al. (modèle GMR), et Latta and Scanlon (modèle L&S) de la

distribution de la densité électronique pour considérer l'état solide. Ces deux modèles donnent des résultats très proches des résultats expérimentaux dans le cas de l'utilisation des ions atomiques, spécialement autour de la région sensible du maximum du pouvoir d'arrêt, où le modèle de l'atome libre pour la densité électronique ne donne pas des résultats satisfaisants. Sur la figure 3.2 sont montrés les résultats des calculs de la fonction d'interférence pour des ions moléculaires sur une cible d'aluminium. Comme il été observé pour les protons sur des cibles solides, ces résultats montrent également l'influence de l'état solide pour les ions moléculaires, spécialement dans la région du maximum de la section efficace d'arrêt. Les sections efficaces d'arrêt dépendent fortement de l'état solide du milieu ralentisseur aux alentours de 1 Mev/uma.

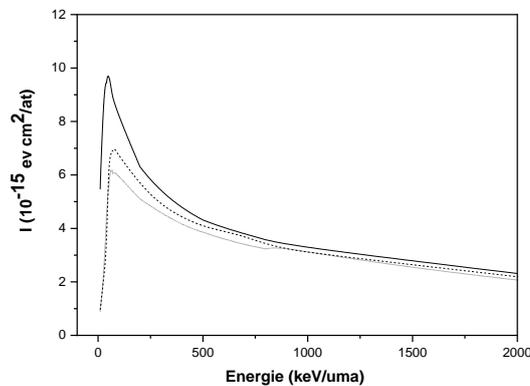


Figure 3.2. Fonction d'interférence I calculée pour Al en fonction de l'énergie incidente des ions H_2^+ . Modèle de l'atome libre de la distribution de la densité électronique : sans correction (ligne continue), avec correction GMR (ligne discontinue), avec correction L&S (en pointillé).

L'influence de la distribution de la densité électronique de la cible sur le rapport du pouvoir d'arrêt R est montrée sur la figure 3.3. R est défini comme la perte d'énergie de l'ion moléculaire fragmenté considérant les effets d'interférence, divisée par la perte d'énergie de chaque proton de cette molécule, pris individuellement. Des effets peu significatifs de l'état solide sont observés aux énergies élevées des ions H_2^+ , indiquant que l'effet de voisinage des électrons dans les solides est très faible. Cependant, une différence importante est relevée aux énergies inférieures à environ 100 keV/uma, où l'effet de l'état solide est significatif.

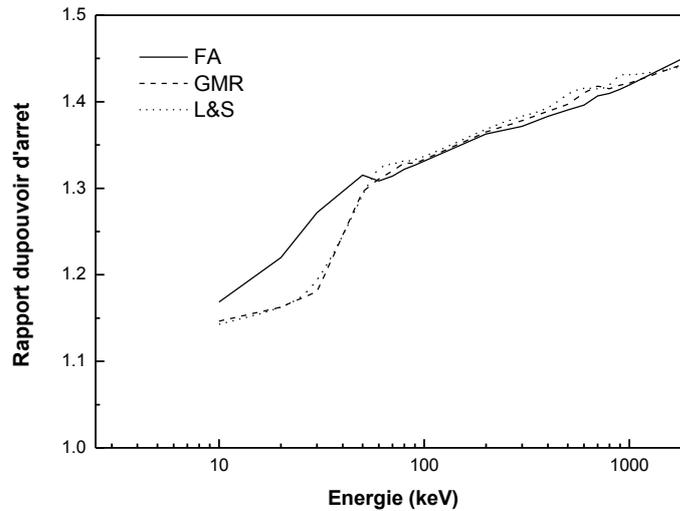


Figure 3.3. Rapport du pouvoir d'arrêt calculé pour Al en fonction de l'énergie des ions incidents H_2^+ . Utilisation du modèle de l'atome libre pour la distribution de la densité électronique sans correction de l'effet de l'état solide (ligne continue), avec correction GMR (courbe discontinue), correction L&S (courbe en pointillé).

Dans la figure 3.4 est donné le rapport du pouvoir d'arrêt R pour trois valeurs de la distance initiale séparant les deux protons dans la molécule H_2^+ . Les résultats sont obtenus en utilisant le modèle GMR pour la distribution de la densité électronique. L'orientation des molécules H_2^+ est considérée aléatoire avec des distances initiales spécifiques entre les fragments de la molécule H_2^+ de 1.06, 1.17 et 1.29 Å correspondant respectivement à la plus basse valeur, à la valeur la plus probable et à la valeur moyenne des états vibrationnels de la molécule H_2^+ . Les courbes de la figure 3.4 montrent un même comportement pour les trois distances internucléaires, montrant une augmentation significative du rapport du pouvoir d'arrêt pour les énergies supérieures à 40 keV/uma.

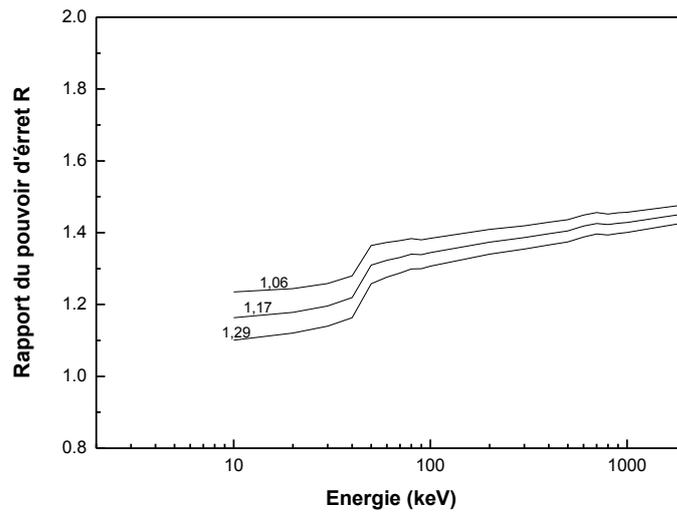


Figure 3.4. Rapport du pouvoir d'arrêt calculé pour Al en fonction de l'énergie incidente des ions H_2^+ , pour les distances internucléaires $r_{12} = 1.06, 1.17$ and 1.29 \AA .

CHAPITRE 2

Application du code DataFurnace au traitement de spectres IBA

- 2.1 Mode Expérimental
- 2.2 Résultats
- 2.3 Discussion des résultats

Les faisceaux d'ions sont souvent utilisés à la fois pour analyser les matériaux et contribuer à l'étude des processus dynamiques engendrés suite aux bombardements des matériaux analysés. En particulier, quand le matériau analysé est un polymère. Dans ce travail, on a utilisé deux techniques d'analyse (RBS et NRA) pour étudier la dynamique du polymère $(CH_2)_n$ soumis à une contrainte mécanique pour simuler son comportement comme matériau d'emballage soumis à une stérilisation. Le code IBA DataFurnace a été utilisé pour le traitement des données. Cette partie de travail nous a permis de maîtriser l'utilisation de ce programme avant de l'appliquer pour l'étude des effets moléculaires.

2.1 Mode Expérimental

Les échantillons utilisés dans ce travail sont des feuilles de polyéthylène $(CH_2)_n$ de 100 μm d'épaisseur. Pour les échantillons de référence, nous avons utilisé un échantillon de graphite et une feuille de $(CH_2)_n$ n'ayant pas subi de contraintes mécaniques. Les échantillons mécaniquement altérés sont préparés au moyen d'anneaux en cuivre imbriqués pour les étirer, ou soumis à une force mécanique de 2-10 N. Les échantillons étirés sont maintenus entre les anneaux durant l'irradiation. Les irradiations sont réalisées à la température ambiante dans une chambre à réactions sous une pression de 10^{-5} - 10^{-6} mb. Pour l'irradiation, un collimateur est placé à l'entrée de la chambre à réactions, permettant une surface irradiée de 113 mm^2 , et un courant n'excédant pas 20 nA sur l'échantillon de graphite. Le courant du faisceau bombardant l'échantillon est mesuré au moyen d'un intégrateur de courant. Il est maintenu bas durant toute l'expérience afin de minimiser les effets de l'échauffement local.

Un faisceau d'ions de deutérium de 1,2 MeV délivré par l'accélérateur Van de Graaff de 3.75 MV a été utilisé dans ce travail. Les protons de 3.27 MeV issus de la réaction $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$ sont simultanément détectés avec les deutons rétrodiffusés par une jonction de silicium implanté, à un angle de 120° par rapport à l'axe du faisceau incident. Durant l'acquisition des données, un générateur d'impulsion a été utilisé pour vérifier la stabilité de l'électronique.

Les investigations structurales ont été effectuées au moyen d'un microscope à balayage de type XL30 FEG, équipé d'un dispositif de diffraction à rayon-X.

2.2 Résultats

La figure 3.5 montre les spectres en énergie des réactions $^{12}\text{C}(d,d)^{12}\text{C}$ et $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$ enregistrés simultanément pour un polymère $(\text{CH}_2)_n$ non déformé (échantillon de référence), montrant une forme typique, caractéristique d'un échantillon épais analysé à 1,2 MeV. Le pic observé au canal 540 est généré par un générateur d'impulsion de précision, utilisé pour vérifier la stabilité de l'électronique employée. Les résultats expérimentaux sont simulés par le code IBA DataFurnace. Dans le fichier input de la structure, la cible est décrite en considérant plusieurs couches contenant de l'hydrogène et du carbone à des proportions données. La section efficace de la diffusion non-Rutherford a été utilisée pour la réaction $^{12}\text{C}(d,d)^{12}\text{C}$ et les groupes de protons (p_0 et p_1) ont été considérés pour la réaction nucléaire $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$. Pour simuler le spectre en énergie, nous lui avons au préalable soustrait le spectre correspondant à l'émission des beta issus de la désintégration des noyaux ^{13}N , produits à partir de la réaction $^{12}\text{C}(d,n)^{13}\text{N}$. La meilleure simulation du spectre expérimental a été obtenue avec une structure contenant 60% de carbone, 40% d'hydrogène et 75% de pores. En effet, la structure du polyéthylène commercial comporte des vides, pouvant être à l'origine de la queue observée sur le spectre en énergie et la dispersion autour de la résonance à 925 keV de la réaction $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$.

Les techniques d'analyse IBA sont considérées comme non destructives, et l'échantillon analysé peut être utilisé plusieurs fois sans affecter les résultats quantitatifs, même si le bombardement des molécules du solide produit une décomposition et un réarrangement des molécules de la cible. En effet, les ions $^4\text{He}^+$ (pour la RBS et l'ERDA) et les ions D^+ (pour la NRA) sont généralement les faisceaux d'ions les plus utilisés et par conséquent, seul l'hydrogène présent dans l'échantillon est affecté [116-118]. Dans cette étude, le comportement dynamique du polymère étiré est suivi sous irradiation par des deutons de 1,2 MeV, servant en même temps pour l'analyse du carbone. A cette énergie, la section efficace de la réaction présente une résonance et permet donc, de réduire l'intensité du faisceau des ions incidents et éviter des analyses prolongées. La figure 3.6 montre un exemple de spectres simulés, avec la structure la plus adéquate, par le code IBA DataFurnace. Le comportement évolutif du polymère est observé pour des doses supérieures à 1×10^{15} at.cm⁻². La figure 3.7 montre des changements rapides dans la distribution du carbone dans le polymère; on observe une chute dans la concentration du

carbone à la surface à une dose d'irradiation de $2,3 \times 10^{15}$ at.cm⁻² puis, une expansion du carbone de sorte à rétablir la concentration initiale au niveau de la surface et l'augmenter en profondeur pour une dose de $2,4 \times 10^{15}$ at.cm⁻². Les simulations faites avec DataFurnace avec les structures considérées et profils de concentration du carbone résultants sont donnés respectivement dans les figures 3.8 et 3.9. Une plus forte irradiation conduit à des modifications brutales, donnant lieu à de sévères modifications parmi lesquelles celles montrées à la figure 3.10. Le déplacement en énergie des protons et la chute brutale de leur intensité peut être expliqué par une apparition d'un champ électrique induit, suite à une accumulation de charges électriques. Les pics observés à basses énergies pourraient donc correspondre à une émission d'électrons énergétiques. Comme conséquence, les ions émis sont repoussés et déviés de leur trajectoire et échapperaient à la détection.

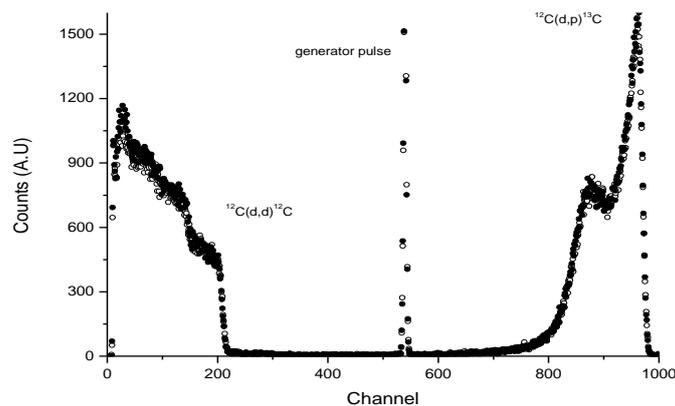


Figure 3.5. Spectres en énergie des réactions $^{12}\text{C}(d,d)^{12}\text{C}$ et $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$ obtenus pour une cible épaisse de $(\text{CH}_2)_n$ (échantillon de référence), non déformée. Les spectres correspondent au début et la fin d'une analyse réalisée à 1,2 MeV pendant une heure.

Pour confirmer le mouvement de charges induisant des champs électriques, des échantillons $(\text{CH}_2)_n$ ont été fixés sur un substrat en graphite lui-même vissé sur un porte échantillon avant irradiation. Ainsi, suite à l'accumulation des charges à la surface du polymère, une différence de potentiel peut se former entre la surface du polymère et le substrat en graphite. Le système se comporte alors comme un condensateur. A une certaine valeur du potentiel, une défaillance électrique peut survenir. L'observation au microscope

électronique du substrat de graphite supportant l'échantillon $(CH_2)_n$ a révélé l'existence d'une décharge électrique. Comme conséquence, un flux d'électrons irradie la surface du graphite donnant lieu à l'observation de spots chargés. Un exemple de micrographes obtenus par le microscope électronique à balayage (MEB) est montré à la figure 3.11.

Les figures 3.12a et 3.12b montrent d'autres cas de figures de type Lichtenberg et des formes géométriques caractéristiques de matériaux en fusion (en phase liquide).

2.3 Discussion des résultats

Comme il a été montré dans plusieurs études, le rendement en hydrogène chute brutalement sous l'impact d'ions plus lourds. La quantité de carbone est cependant, plus stable spécialement à faible intensité du faisceau. Dans la référence [118], le rendement normalisé $Y(t)/Y(t_0)$ mesuré dans le cas du polycarbonate a été trouvé quasi constant sur une large gamme de doses et pour une intensité inférieure à 25 nA. Le rendement des espèces éjectées sous bombardement des ions légers a été trouvé proportionnel à l'intensité du faisceau incident. Ainsi, dans les conditions de notre travail (D^+ , 15 nA), le carbone ne peut pas être affecté durant l'analyse. Nous avons confirmé cela en comparant les spectres en énergie enregistrés au début et à la fin de l'irradiation (1,2 MeV, ions D^+ de 15 nA) d'un échantillon de polyéthylène pendant une heure. Une parfaite similarité a été observée entre les spectres enregistrés.

En comparaison avec l'échantillon de référence, sous les mêmes conditions de faisceau, un mouvement dynamique est observé pour l'échantillon étiré; la quantité de carbone varie de façon continue durant l'irradiation, et les profils de concentration sont profondément modifiés. Les modifications observées sont d'autant plus importantes que le diamètre du faisceau est plus large (5-10 mm). Pour un diamètre de 1 mm, aucun changement n'est apparu. Nous avons alors tendance à croire que l'excès de carbone trouvé à environ $7 \mu\text{m}$ (D^+ à 925 keV) résulte des expansions entre les dommages de surface et les régions latérales entourant l'impact du faisceau. Les atomes impliqués se déplacent de l'intérieur vers la surface confirmant que les modifications induites ne sont pas dues au bombardement ionique auquel cas nous devrions observer une désorption du carbone à la surface. La forte décroissance de la quantité de carbone et l'amincissement de la couche analysée révélées à $2.4 \cdot 10^{15} \text{ at.cm}^{-2}$ caractérisent la perte de masse, pouvant être associée

à la présence de dislocations [119]. Le mouvement de dislocation induit durant la déformation du plastique peut conduire à un réarrangement des atomes ou des molécules, ou à une rupture des liaisons, résultant de la perte de carbone observée. L'ionisation et l'échauffement induits par l'irradiation ionique dans le matériau peut aider les unités moléculaires à se déplacer librement dans les zones sous contraintes. Le mouvement de charges impliqué et les champs électriques créés sont confirmés par l'observation de figures type Lichtenberg caractérisant une électrification.

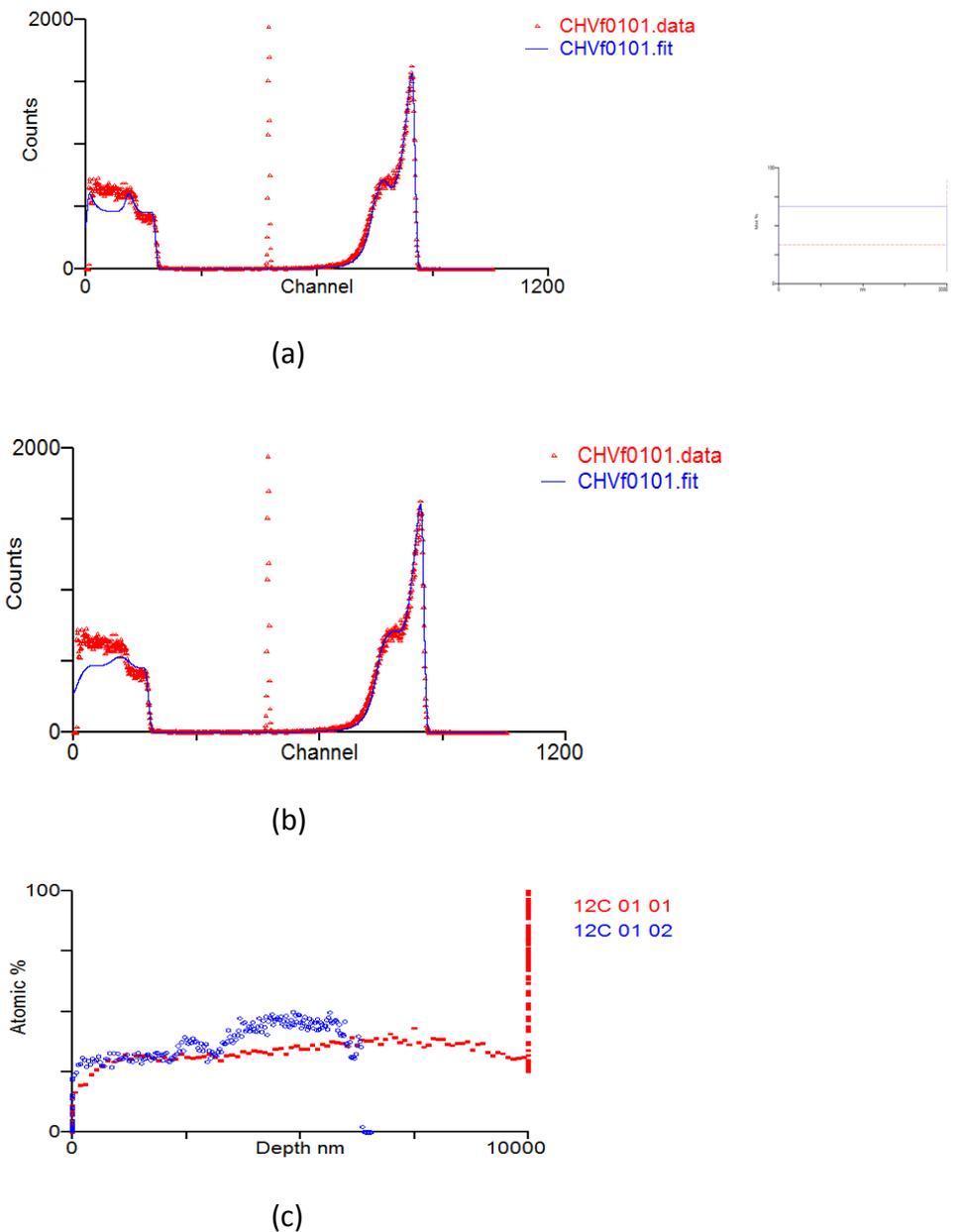


Figure 3.6. Spectres expérimental (symboles) et simulé (trait) correspondants à l'échantillon de référence; (a) simulation sans considérer la présence des pores, la structure est donnée à droite, (b) simulation en introduisant les pores à 55% dans la structure et (c) représente le profil en carbone.

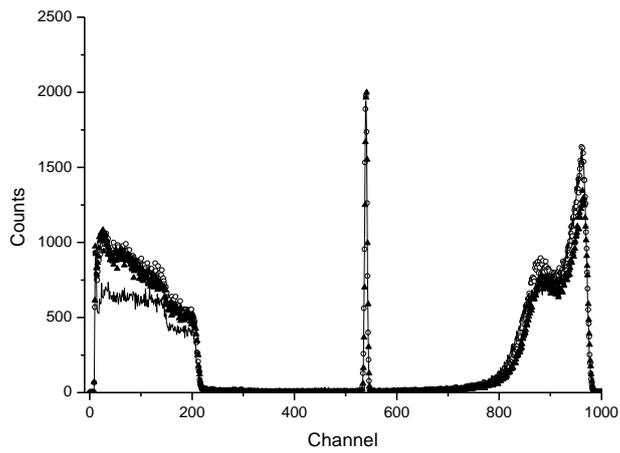


Figure 3.7. Spectres en énergie obtenus par l'analyse d'un échantillon de $(CH_2)_n$ étiré. (—) spectre de référence, (\blacktriangle) spectre irradié à $2.3 \times 10^{15} \text{ at.cm}^{-2}$, (o) spectre irradié à $2.4 \times 10^{15} \text{ at.cm}^{-2}$.

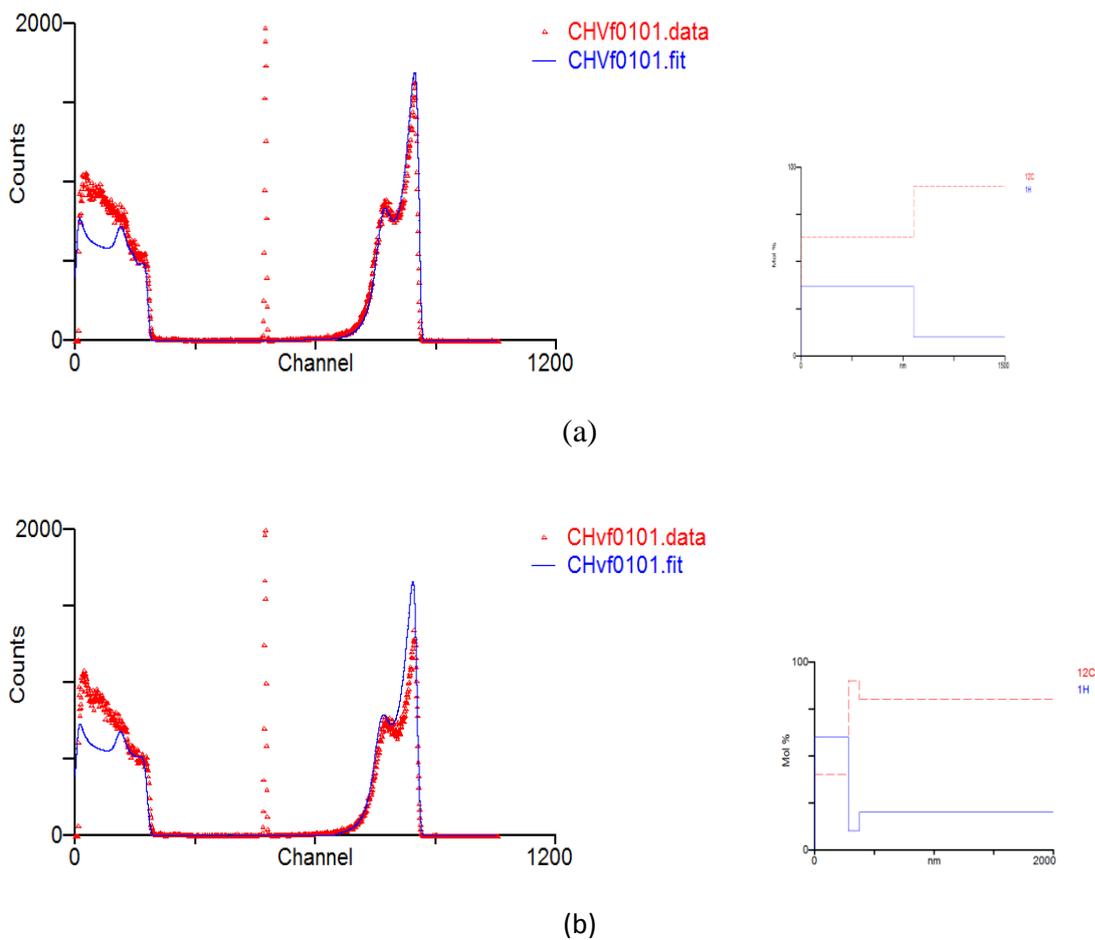


Figure 3.8. Spectres expérimentaux (symboles) et simulés) avec le programme Datafurnace (trait) pour une dose de (a) $2.4 \times 10^{15} \text{ at.cm}^{-2}$, (b) $2.3 \times 10^{15} \text{ at.cm}^{-2}$.

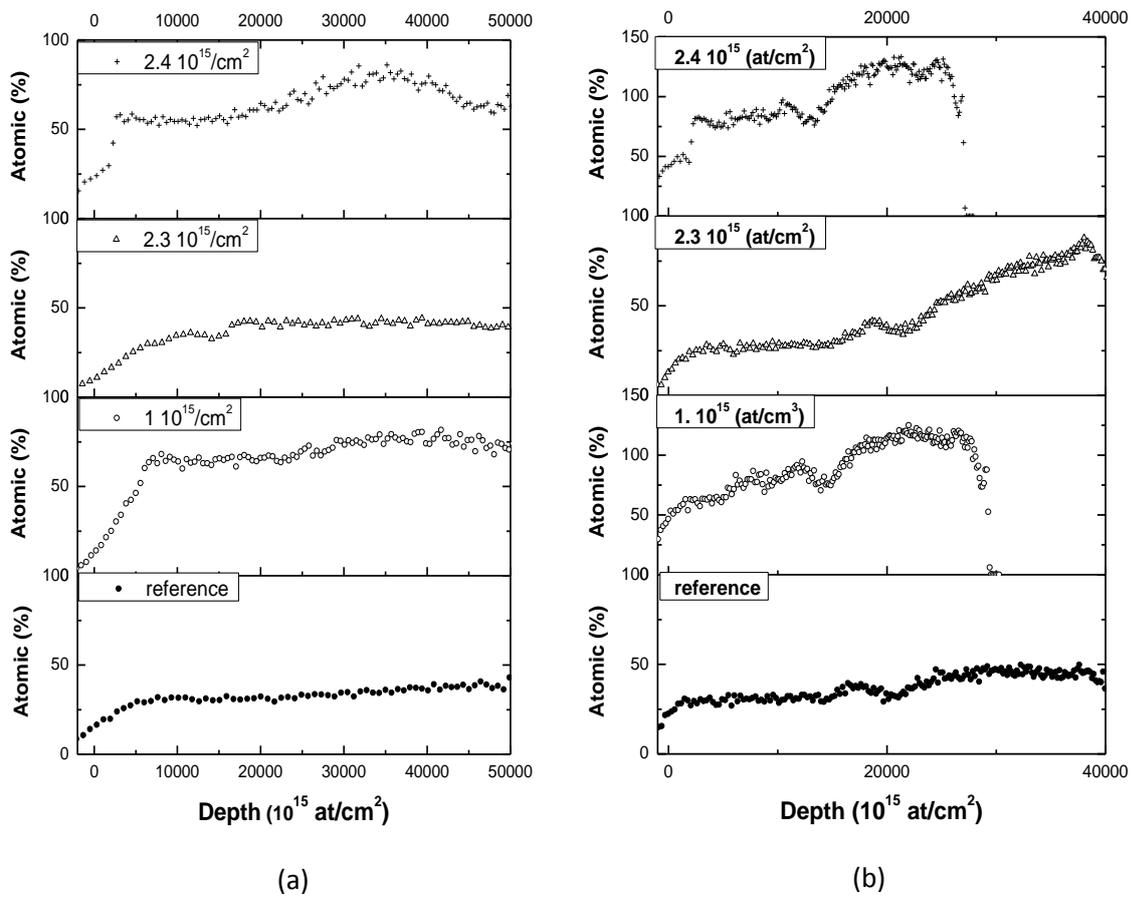


Figure 3.9. Profils de concentration obtenus par DataFurnace ; (a) à partir de la réaction nucléaire et (b) à partir de la RBS. Les doses sont indiquées sur les figures.

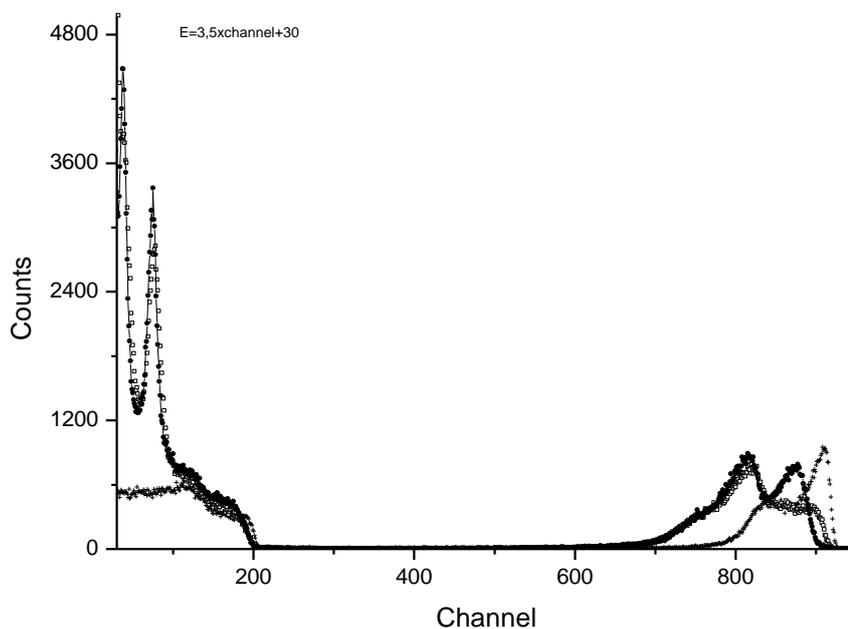


Figure 3.10. Spectres enregistrés en série lors d'une irradiation continue de deux heures aux deutons de 1.2 MeV avec une intensité de 15 nA.

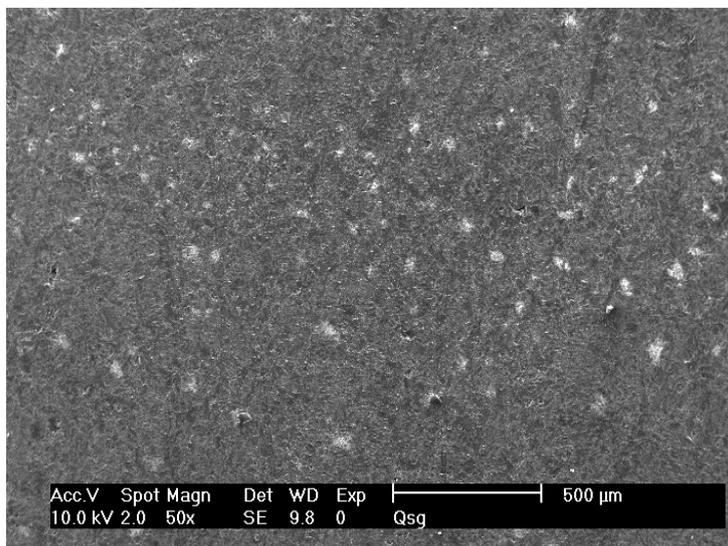
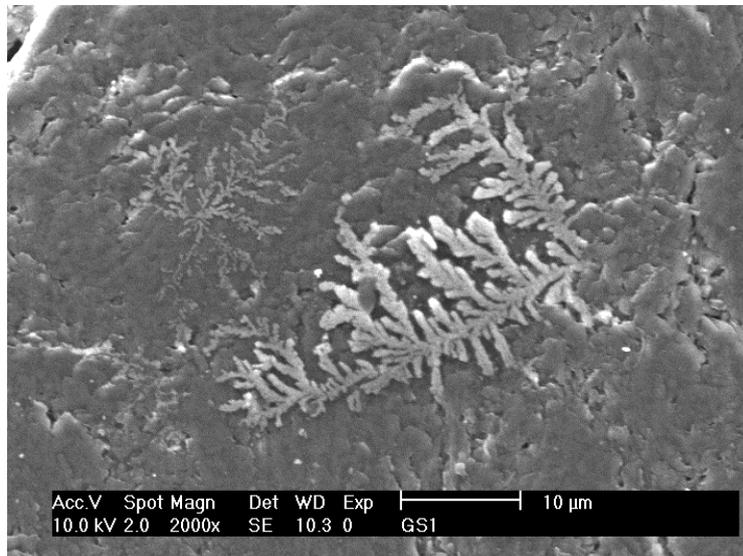
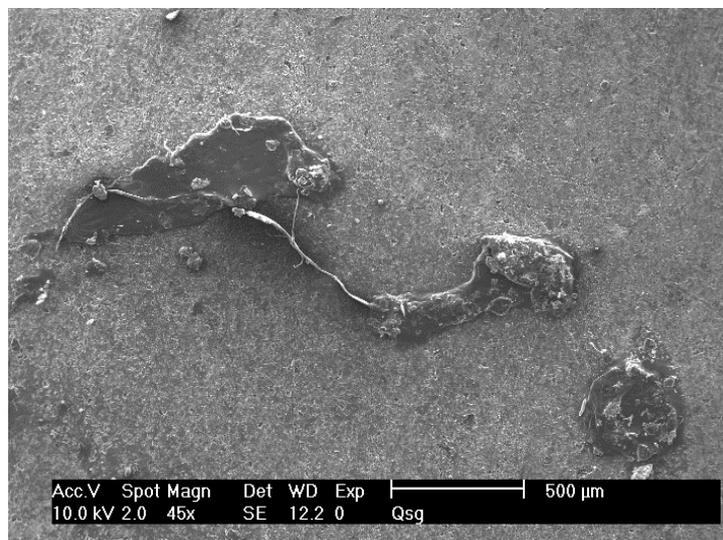


Figure 3.11. Spots observés à la surface du graphite utilisé comme support pour le polyéthylène, suite à une irradiation aux deutons de 1.2 MeV.



(a)



(b)

Figure 3.12. Figures géométriques créées à la surface du graphite supportant un échantillon de $(CH_2)_n$; (a) figure type Lichtenberg, (b) régions fondues sous l'effet d'impacts énergétiques. L'analyse de ces régions a montré qu'elles sont exclusivement formées de carbone.

CHAPITRE 3

Détermination du rapport des pouvoirs d'arrêt moléculaire et atomique de l'hydrogène avec la méthode de rétrodiffusion Rutherford.

3.1 Mode expérimental

3.2 Evaluation expérimentale du rapport des pouvoirs d'arrêt moléculaire et atomique.

3.3 Conclusion

Le présent chapitre présente les premiers résultats obtenus dans la série des travaux menés pour l'évaluation du rapport d'accroissement du pouvoir d'arrêt moléculaire par rapport au correspondant atomique en utilisant la rétrodiffusion de Rutherford. Nous présenterons notre contribution à l'étude expérimentale de la perte d'énergie des ions moléculaires d'hydrogène pénétrant, dans un mouvement corrélé, des cibles de Si pur et de SiO₂/Si. Le pouvoir d'arrêt pour les ions H⁺ et H₂⁺ a été évalué en utilisant la technique RBS (Rutherford Backscattering) aux énergies incidentes 1550 et 900keV/uma.

3.1 Mode expérimental

Les faisceaux d'ions H⁺ et H₂⁺ sont fournis au moyen de l'accélérateur Van de Graaff de 3,75 MV du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA). La calibration en énergie du faisceau est contrôlée avant chaque expérience, en prenant pour référence les énergies de résonance des réactions nucléaires ¹⁹F(p,αγ)¹⁶O et ²⁷Al(p,γ)²⁸Si respectivement, aux énergies incidentes 1348 keV (et 1375 keV) et 991.9 keV.

Les mesures ont été effectuées dans une chambre d'analyse sous un vide de 2x10⁻⁶ mbar, assuré par une pompe primaire et une pompe secondaire refroidie à l'azote liquide. Un collimateur de 1,2 mm de diamètre est placé à l'entrée de la chambre à réactions afin de réduire les dispersions angulaires du faisceau. Les spectres de rétrodiffusion utilisés pour l'évaluation du pouvoir d'arrêt moléculaire ont été obtenus via un système d'acquisition composé d'un détecteur à barrière de surface de 11 keV de résolution, positionné à 130° et 165° par rapport à la direction du faisceau, et d'une chaîne électronique ORTEC standard. Deux types de cibles ont été utilisées; Si pur et SiO₂, obtenue par oxydation de Si. Pendant les mesures, l'intensité du faisceau d'ions a été constamment ajustée et la calibration en énergie du dispositif électronique régulièrement vérifiée avec un générateur d'impulsions, afin d'éviter tout artefact expérimental.

3.2 Evaluation expérimentale du rapport des pouvoirs d'arrêt moléculaire et atomique.

Les spectres en énergie RBS obtenus pour les faisceaux d'ions incidents H^+ et H_2^+ de 1550 keV/u sur des échantillons de silicium pur et oxydé sont illustrés sur les figures 3.13 et 3.14. Les intensités des deux spectres RBS aux niveaux des surfaces sont nettement plus faibles pour les ions H_2^+ , relativement à celles correspondant aux spectres des ions H^+ . Cette décroissance en intensité est attribuée à l'effet d'interférence entre les ions constitutifs de la molécule d'hydrogène. En effet, les intensités $I^m(E)$ et $I^a(E)$, respectivement des ions moléculaires et atomiques diffusés, sont directement liées aux sections efficaces d'arrêt moyennes et sont données par les expressions [16]:

$$I^a(E) = I_0^a \Omega \sigma(E_1) / [KS_1^a(E_0) + S_2^a(E)/\cos\theta], \quad (3.1a)$$

$$I^m(E) = I_0^m \Omega \sigma(E_1) / [KS_1^m(E_0) + S_2^m(E)/\cos\theta], \quad (3.1b)$$

où I_0 est le nombre d'ions incidents, Ω est une constante sans dimension déterminée par les conditions expérimentales, $\sigma(E_1)$ est la section efficace de diffusion élastique à l'énergie E_1 , $S_1(E_0)$ et $S_2(E)$ sont les sections efficaces d'arrêt moyennes le long du parcours respectivement avant et après collision et K est le facteur cinématique. Les indices a et m font référence aux ions atomiques et moléculaires. Les sections efficaces d'arrêt utilisées sont celles de la référence [120].

On a :

$$Ia(E)/Im(E) \propto \frac{Cst + S_2^m(E)/\cos\theta}{Cst + S_2^a(E)/\cos\theta} \quad (3.2)$$

où $I_0^a \Omega \sigma(E_1) = I_0^m \Omega \sigma(E_1)$ avec $I_0^a = I_0^m$ et le terme $Cst = KS_1^{a,m}(E_0)$ est le même pour les deux ions à la surface. Le rapport des intensités permet donc, d'évaluer le rapport des pouvoirs d'arrêt moléculaire et atomique R .

La distance de cohérence d_{cal} est déterminée en supposant que le mouvement des ions atomiques composant la molécule d'hydrogène est gouverné par l'explosion Coulombienne. L'équation du mouvement pour les deux ions d'hydrogène, séparés par une distance r_{12} , est de forme:

$$F(r_{12}) = e^2/r_{12}, \quad (3.3)$$

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

Sous l'influence de la force électrostatique $F(r_{21})$, la distance relative entre les noyaux augmente pendant le temps de ralentissement t , à partir de la distance d'équilibre r_0 séparant les ions dans la molécule jusqu'à la distance $r(t)$. Ce temps est donné par l'expression suivante (Brandt et al [12]):

$$t = t_0 \{ \xi^{1/2} (\xi - 1)^{1/2} + \ln[\xi^{1/2} + (\xi - 1)^{1/2}] \}, \quad (3.4)$$

où $t_0 = (\mu r_0 / Z_1 Z_2 e^2)^{1/2}$ et $\xi = r / r_0$.

μ étant la masse réduite de la molécule.

Nous pouvons calculer, à partir de l'équation (3.4), la distance maximale de cohérence $d = vt$. ξ est évalué en considérant la distance de séparation internucléaire maximale sous l'effet de cohérence (r_{ad}). La distance adiabatique est donnée par $r_{ad} = v / \omega_0$, v et ω_0 étant la vitesse de l'ion incident et la fréquence plasma respectivement. Les résultats des calculs sont donnés dans le tableau 3.1 avec les valeurs des distances de cohérence mesurées (d_{mes}) et calculées (d_{cal})

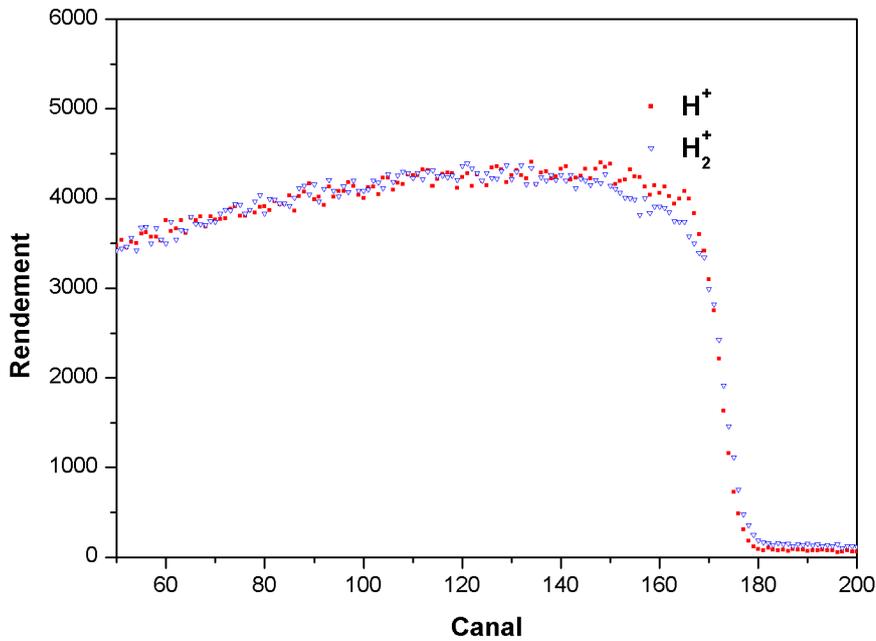


Figure 3.13. Spectres RBS des ions H^+ et H_2^+ obtenus pour une cible de silicium à 1550 keV/u et 130° .

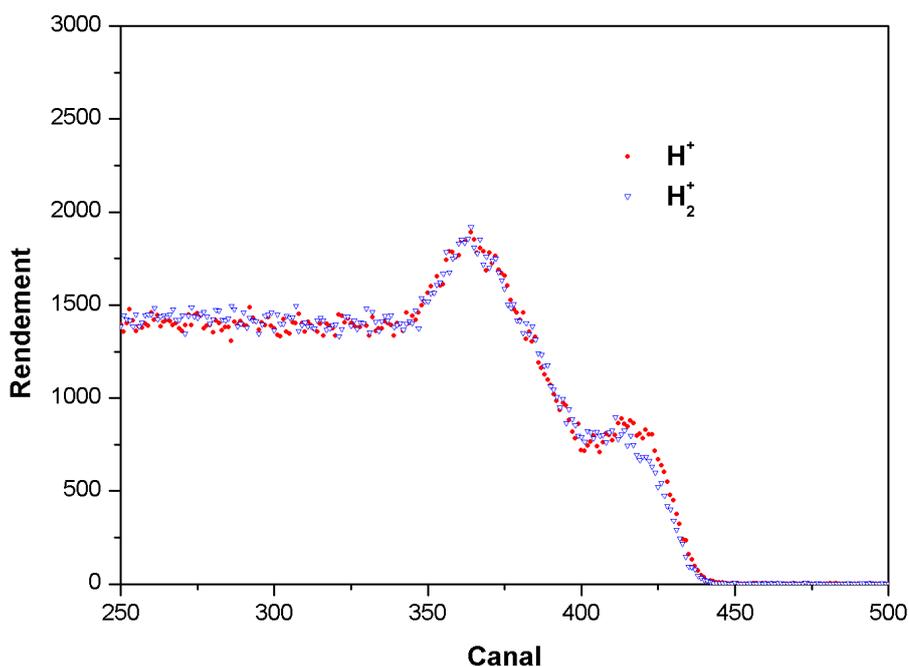


Figure 3.14. Spectres RBS des ions H^+ et H_2^+ obtenus pour une cible SIMOX à 990 keV/u et 165° .

Table 3.1. Résumé des résultats expérimentaux et théoriques obtenus dans ce travail.

Target	Energy(keV)	R	$d_{exp.}(nm)$	$d_{cal.}(nm)$
Si	1550	1.33	—	260
Si/SiO ₂	900	1.25	140	110

3.3 Conclusion

Les résultats obtenus dans ce travail ont permis d'observer d'une manière simple et efficace l'effet de voisinage des ions en mouvement corrélé dans la matière condensée, en utilisant la rétrodiffusion de Rutherford. À partir des spectres en énergie, nous avons évalué le rapport des pouvoirs d'arrêts des ions de l'hydrogène et la distance de cohérence maximale atteinte dans des cibles de silicium. Les résultats obtenus sont en bon accord avec ceux calculés à l'aide de l'expression de Brandt.

CHAPITRE 4

Utilisation de la diffusion élastique non-Rutherford $^{12}\text{C}(\text{p,p})^{12}\text{C}$ pour la mesure de la perte d'énergie des ions H_2^+ dans l'aluminium.

- 4.1 Mode expérimental
- 4.2 Mesure du rendement de la diffusion élastique $^{12}\text{C}(\text{p,p})^{12}\text{C}$ à 1735 keV
- 4.3 Mesure de la perte d'énergie des ions H_2^+ dans l'aluminium
- 4.4 Conclusion

Cette partie du travail vise l'objectif principal de cette thèse où nous proposons la résonance 1735 keV de la diffusion élastique $^{12}\text{C}(p,p)^{12}\text{C}$ comme une nouvelle approche pour démontrer la présence des effets de voisinage des ions H_2^+ traversant une cible d'aluminium.

4.1 Mode expérimental

Les mêmes conditions expérimentales que celles décrites dans le chapitre 3 sont utilisées dans ce travail à l'exception de la cible. Celle-ci consistait en des films minces d'aluminium pur à 99,99% déposé par évaporation sous vide sur un substrat de graphite. La surface du substrat étant vitreuse, polie juste avant la procédure de dépôt.

4.2 Mesure du rendement de la diffusion élastique $^{12}\text{C}(p,p)^{12}\text{C}$ à 1735 keV

Afin de mieux contrôler la qualité de nos résultats, nous avons mesuré la section efficace de la diffusion élastique $^{12}\text{C}(p,p)^{12}\text{C}$ autour de la résonance à 1735 keV, dans nos propres conditions. Pour cela, une feuille de mylar autoportée, suffisamment mince (0.9 μm) pour séparer les pics du carbone et d'oxygène, a été utilisée. Les résultats obtenus pour la gamme d'énergie 1.4-1.9 MeV sont présentés sur la Figure 3.15. Une bonne concordance est obtenue avec les résultats disponibles dans la littérature.

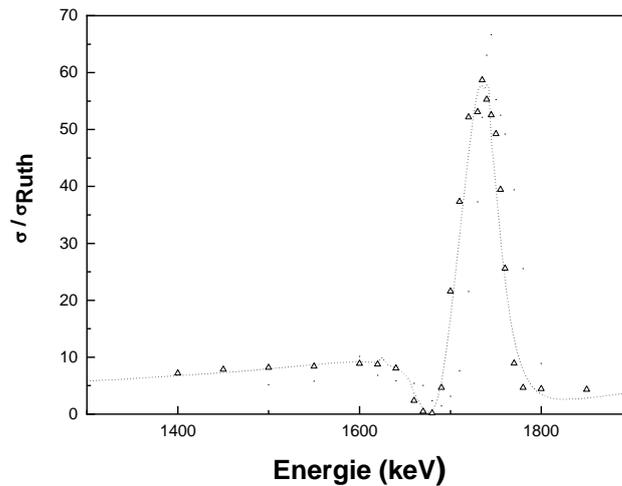


Figure 3.15. Section efficace de la diffusion élastique $^{12}\text{C}(p,p)^{12}\text{C}$ mesurée autour de la résonance à 1.735 MeV à un angle de diffusion de 165° . La courbe en pointillés représente les données prises de la référence [121].

4.3 Mesure de la perte d'énergie des ions H_2^+ dans l'aluminium

Dans ce qui suit, nous présentons et discutons quelques résultats démontrant l'augmentation du pouvoir d'arrêt des faisceaux d'ions moléculaires dans une couche d'aluminium en utilisant la spectrométrie de rétrodiffusion élastique (EBS) avec l'évaluation de la contribution de l'explosion Coulombienne de la molécule à l'élargissement de la distribution de la perte d'énergie (straggling). Les mesures ont été effectuées dans la gamme d'énergie comprise entre 1,68 et 1,70 MeV, où la section efficace de la réaction $^{12}\text{C}(p, p)^{12}\text{C}$ augmente rapidement (résonance) (figure 3.15). Ce qui permet de détecter la moindre variation dans le rendement des spectres énergétiques. Deux épaisseurs ont été considérées pour la cible; 20 et 100 nm.

La figure 3.16 montre les spectres en énergie obtenus à 1.69 MeV pour des projectiles H^+ et H_2^+ interagissant avec une couche d'aluminium de 20 nm, déposée sur un substrat de graphite. Le pic de plus haute énergie dans le spectre représente les particules rétrodiffusées sur l'aluminium. Le pic apparaissant à 1314 keV est attribué à l'oxygène de contamination, présent dans l'atmosphère lors du dépôt de l'aluminium. La comparaison des deux spectres révèle l'existence d'un pic à 1200 keV, correspondant au début de l'apparition de la résonance dans le cas du faisceau atomique alors qu'il est à peine perceptible dans le cas

du faisceau moléculaire. On observe également, une diminution de l'intensité au niveau de l'épaulement pour le faisceau moléculaire. Cette différence est attribuée à l'augmentation de la perte d'énergie de celui-ci.

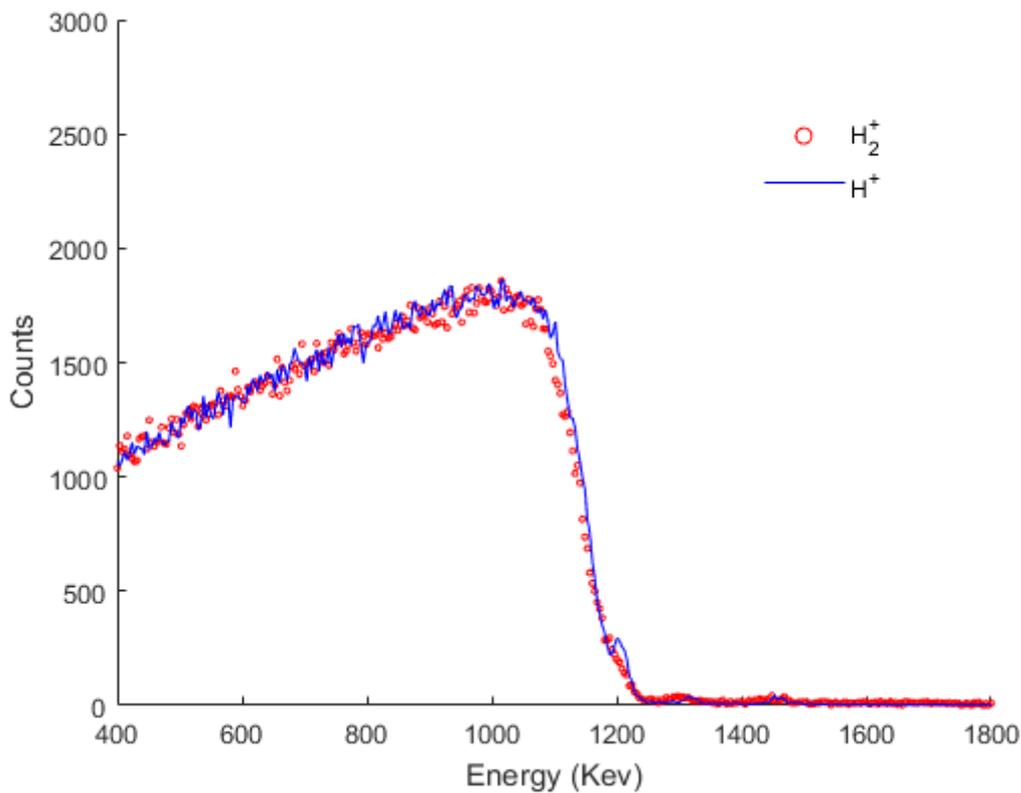


Figure 3.16. Spectres EBS des ions H⁺ et H₂⁺ obtenus à 1690 keV/uma et 165°, pour un film de Al (20 nm) déposé sur un substrat de graphite.

Pour l'analyse des spectres obtenus, nous avons utilisé le code IBA DataFurnace NDFv9.3.80 [122]. Le résultat est obtenu en simulant un profil en profondeur pour une structure cible arbitraire et en comparant les résultats simulés et expérimentaux. Pour la simulation, nous avons utilisé le calcul du pouvoir d'arrêt selon SRIM2003 avec la correction proposée par Chu (théorie de Bohr) sur la dispersion en énergie. Les sections efficaces EBS pour ¹²C(p, p)¹²C, ²⁷Al(p, p)²⁷Al et ¹⁶O(p, p)¹⁶O sont prises de la banque de données IBANDL. Les spectres atomiques ont été simulés d'une manière systématique. Les paramètres expérimentaux, la concentration des éléments et les densités surfaciques des couches, offrant le meilleur accord entre la simulation et les données expérimentales, ont été

conservés tout au long de l'analyse. Les paramètres libres pour la simulation sont la perte d'énergie moyenne et la dispersion de la perte d'énergie.

L'effet de voisinage et l'explosion Coulombienne sont inclus dans l'analyse en augmentant le pouvoir d'arrêt ainsi que la dispersion des pertes d'énergie (straggling). Ces deux paramètres ajustés manuellement, ont été affinés continuellement jusqu'à atteindre le meilleur accord possible entre la simulation et les données expérimentales.

La simulation permet de garder une trace des nombreux fichiers par le code IBA DataFurnace. Les informations sur l'effet de voisinage et l'explosion Coulombienne ont été tirées de la meilleure simulation des spectres en énergie enregistrés avec les faisceaux atomique et moléculaire. La composition de la cible a été corrigée en fonction des résultats expérimentaux. Nous avons alors, utilisé la stœchiométrie $\text{Al}_{0.8}\text{O}_{0.2}$ au lieu d'Al pur pour la cible.

Sur les figures 3.17a et 3.17b sont reportés les spectres en énergie obtenus avec les ions H^+ et H_2^+ pour une cible de $\text{Al}_{0.8}\text{O}_{0.2}$ de 20 nm d'épaisseur. L'augmentation de la perte d'énergie due à l'effet de voisinage est donnée directement par le facteur multiplicatif de la perte d'énergie, correspondant au meilleur fit des spectres expérimentaux. Un facteur de correction de 1,3 sur le pouvoir d'arrêt a donné le meilleur ajustement au spectre expérimental obtenu avec un faisceau d'ions H_2^+ . Ceci est attribué aux effets de voisinage conduisant à une augmentation du pouvoir d'arrêt des projectiles moléculaires, résultant du mouvement corrélé des atomes dans la molécule lors de leur parcours dans la cible. Cette valeur est compatible avec les résultats rapportés dans la littérature [6, 11].

La figure 3.18 décrit les résultats enregistrés pour un film d'aluminium de 100 nm. Nous observons clairement une différence entre les spectres obtenus avec les ions H^+ et H_2^+ à la même énergie incidente/atome. Les pics correspondant à Al et O sont élargis dans le cas du faisceau H_2^+ . La figure 3.17 montre également que le pic du carbone dû à la résonance située à 1,735 MeV est moins prononcé dans le cas des molécules H_2^+ que dans le cas des projectiles H^+ . Nous attribuons ce comportement à la contribution de l'explosion Coulombienne de la molécule H_2^+ à l'élargissement de perte d'énergie; la contribution de l'effet de voisinage étant considérée comme non significative pour les grandes épaisseurs du milieu ralentisseur. En fait, lorsque l'épaisseur de la cible augmente, la séparation

internucléaire augmente en raison de la répulsion Coulombienne et les diffusions multiples, auquel cas les noyaux des molécules se comportent comme des particules indépendantes. Le rapport des pouvoirs d'arrêt s'estompe alors et s'approche de l'unité [11].

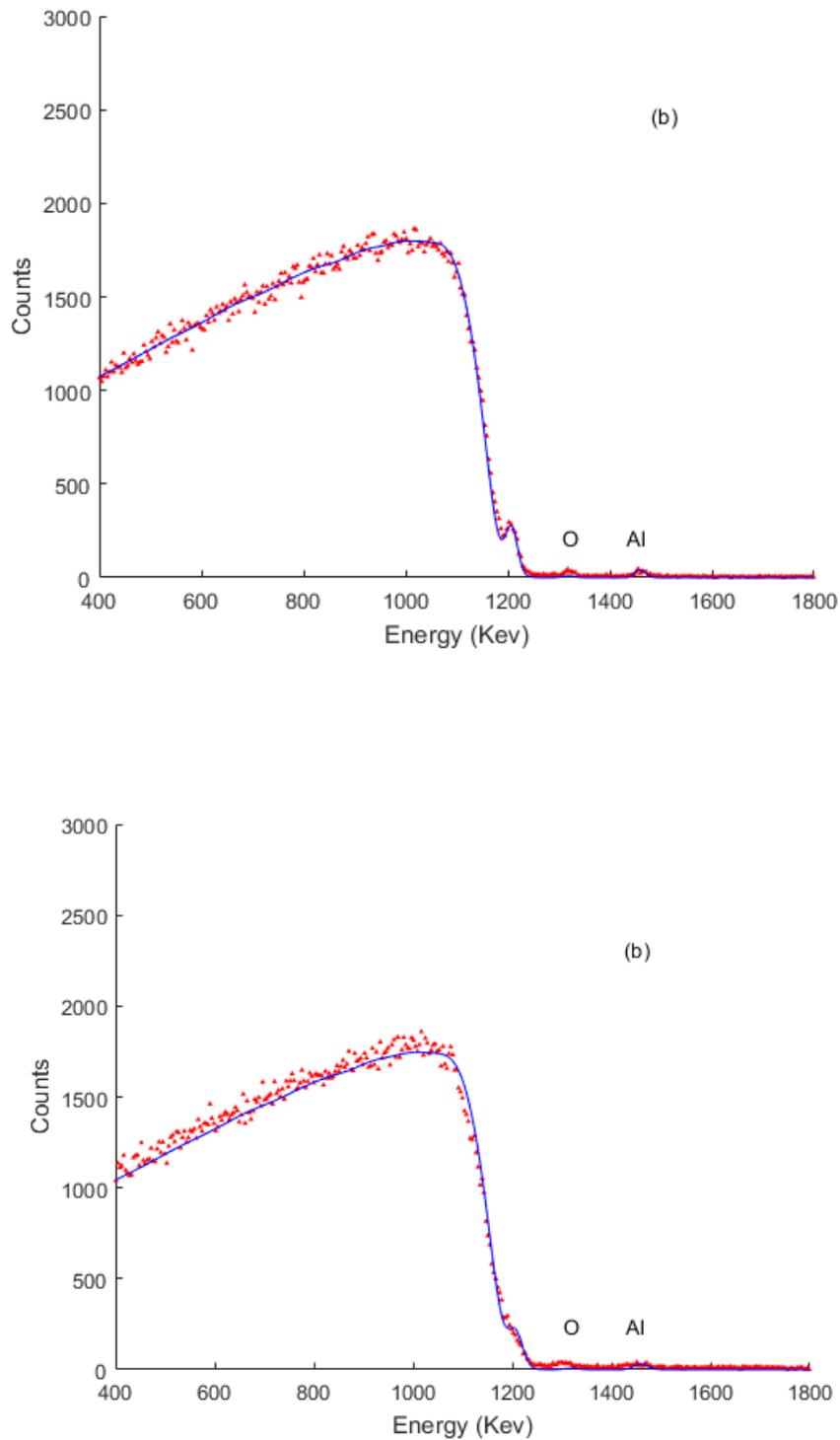


Figure 3.17. Spectres EBS expérimental (symbole) et simulé (trait continu), obtenus à 1690 keV et 165° pour une cible de 20 nm d'Al déposée sur du graphite avec (a) H⁺ et (b) H₂⁺.

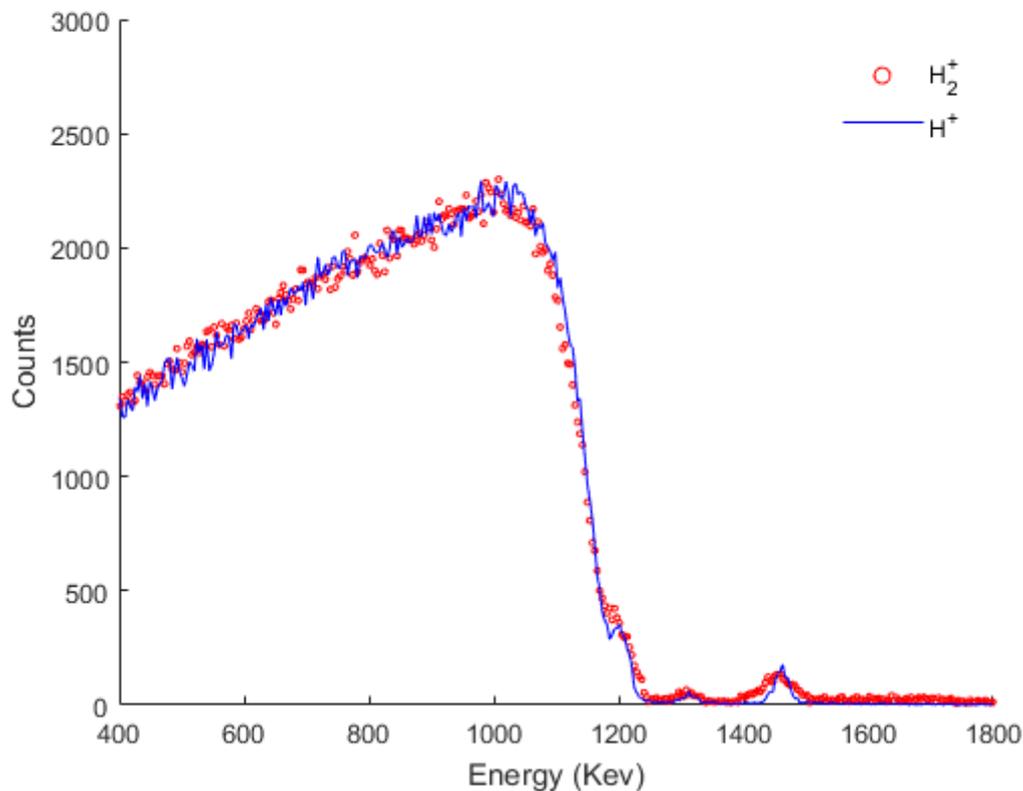


Figure 3.18. Spectres EBS obtenus à 1690 keV/uma et 165° pour une cible de 100 nm d'Al déposée sur du graphite avec un faisceau H⁺ (trait continu) et H₂⁺ (symbole).

Pour vérifier et quantifier le rôle de l'explosion Coulombienne dans l'effet observé, nous avons utilisé le code IBA DataFurnace pour traiter les spectres en énergie obtenus. Dans le cas des ions H⁺, les paramètres tels que l'énergie et la charge du faisceau incident, la résolution du détecteur, ainsi que l'épaisseur et la composition de la cible ont été méticuleusement contrôlés pour obtenir le meilleur ajustement possible avec les données expérimentales (voir figure 3.19).

La perte d'énergie et la dispersion en énergie ont été évaluées à l'aide des modèles ZBL et Chu, respectivement. Les paramètres d'ajustement extraits à partir de l'analyse des spectres H⁺ ont été utilisés pour le cas des H₂⁺; seules la perte d'énergie et la dispersion d'énergie variaient. L'augmentation de la dispersion de la perte d'énergie (straggling) due à l'effet de voisinage est donnée directement par le facteur multiplicatif de la dispersion de la perte d'énergie, correspondant au meilleur fit des spectres expérimentaux.

Le meilleur ajustement du spectre en énergie a été obtenu en augmentant la dispersion de la perte d'énergie d'un facteur 2, tandis que le facteur de perte d'énergie est resté égal à l'unité. Les résultats sont résumés dans le tableau 4.1.

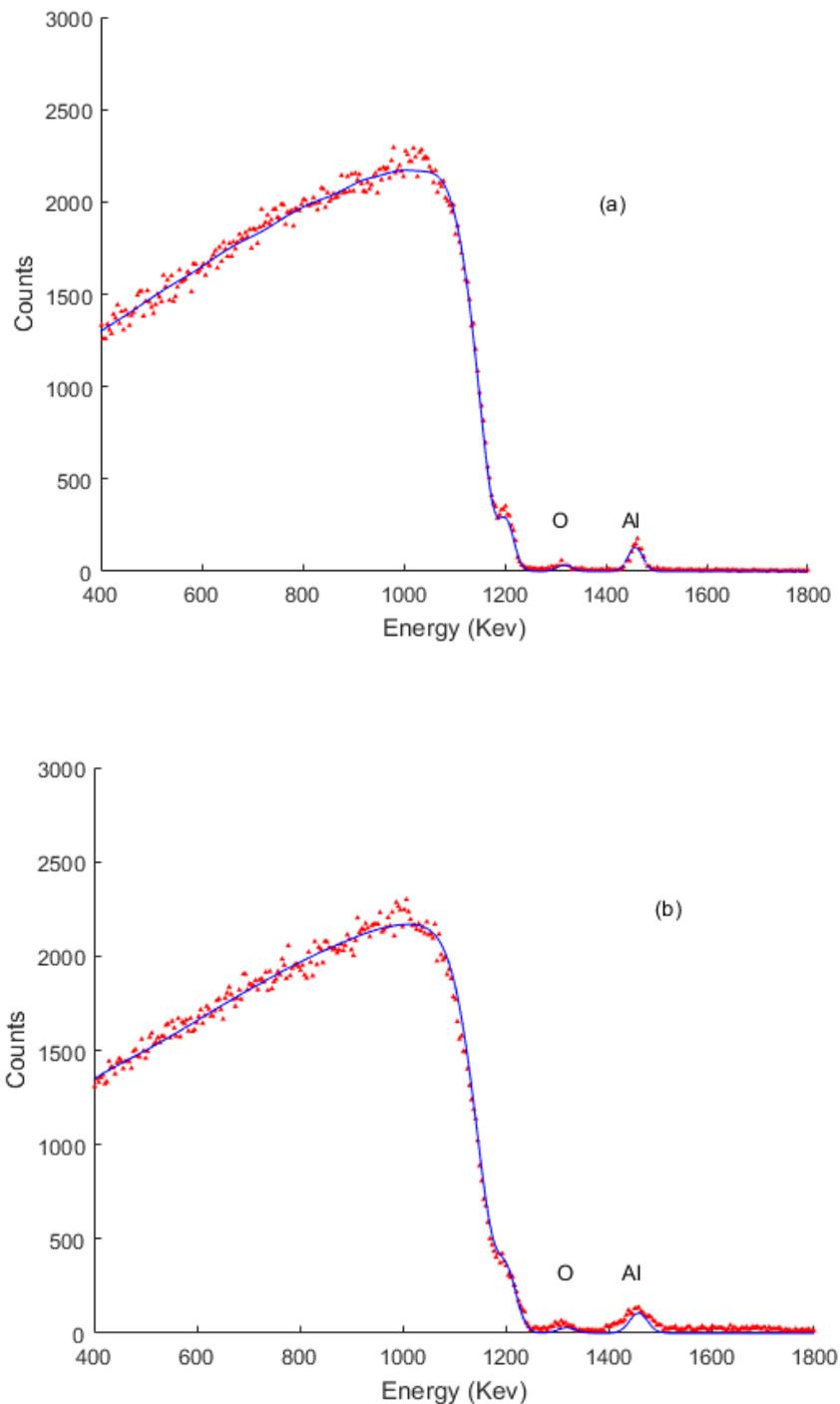


Figure 3.19. Spectres EBS expérimental (symbole) et simulé (trait continu), obtenus à 1690 keV/uma et 165° pour une cible de 100 nm d'Al déposée sur du graphite avec un faisceau (a) H^+ et (b) H_2^+ .

Table 3.2. Paramètres d'ajustement déterminés à partir du traitement par le code DataFurnace des spectres en énergie pour les ions H^+ et H_2^+ .

Energy (keV/atom)	Ion	Layer thickness (nm)	Energy loss factor	Straggling factor
1690	H_2^+	20	1.28	1.08
1690	H^+	100	1.0	2.0

3.4 Conclusion

Dans cette étude, une méthode simple et efficace, basée sur l'accroissement rapide de la section efficace de la diffusion élastique $^{12}C(p,p)^{12}C$ à la résonance 1,735 MeV est proposée et appliquée à l'évaluation (i) du rapport des pouvoirs d'arrêts atomique et moléculaire, et (ii) la contribution de l'explosion Coulombienne à l'élargissement de la perte d'énergie des ions H_2^+ dans une cible d'aluminium. Les spectres en énergie pour les ions H_2^+ et H^+ ont été mesurés et le code IBA DataFurnace a été utilisé pour traiter les données expérimentales. L'effet de voisinage est observé dans le cas de la faible épaisseur (20 nm) et la contribution à l'élargissement de la perte d'énergie due à l'explosion Coulombienne a été observée à 100 nm. Les valeurs obtenues pour l'augmentation de la perte d'énergie et le facteur de l'élargissement de la perte d'énergie sont respectivement de 1,3 et 2, ce qui est considéré comme étant en accord avec les résultats obtenus dans la littérature. La méthode utilisée nous a permis d'observer les effets de voisinage et de l'explosion Coulombienne sur la perte d'énergie moléculaire, en fonction de l'épaisseur de la cible.

CHAPITRE 5

Etude de l'effet de voisinage en utilisant les résonances à 1121 keV de la diffusion élastique $^{27}\text{Al}(p,p)^{27}\text{Al}$ et 1440 keV de la diffusion élastique $^{12}\text{C}(d,d)^{12}\text{C}$.

- 5.1 Introduction
- 5.2 Courbe d'excitation de la diffusion élastique $^{27}\text{Al}(p,p)^{27}\text{Al}$
- 5.3 Observation de l'effet de voisinage en utilisant la diffusion élastique $^{27}\text{Al}(p,p)^{27}\text{Al}$
- 5.4 Courbe de rendement de la diffusion élastique $^{12}\text{C}(d,d)^{12}\text{C}$
- 5.5 Observation de l'effet de voisinage en utilisant la diffusion élastique $^{12}\text{C}(d,d)^{12}\text{C}$
- 5.6 Conclusion

5.1 Introduction

Les sections efficaces de la diffusion élastique des protons sur les éléments légers sont assez élevées et présentent des résonances plus ou moins fines. Ceci rend la spectrométrie de la diffusion élastique EBS (Elastic Backscattering Spectrometry) par des protons un outil potentiel pour la microanalyse. Particulièrement, dans le cas des éléments légers à faibles concentrations contenus dans des matrices plus lourdes. Nous avons utilisé cet avantage pour étudier l'effet de voisinage (ou de proximité) entre les deux protons constituant une molécule d'hydrogène lors du ralentissement de celle-ci dans une cible solide. Nous avons considéré la diffusion élastique $^{27}\text{Al}(p,p)^{27}\text{Al}$ en raison de la forme particulière de sa courbe d'excitation qui change de comportement autour de 1120 keV. En effet, elle présente un puits à l'énergie de 1119 keV et juste après, un pic de résonance à 1121 keV. Ce qui augmente la probabilité d'observer l'effet de voisinage à travers la différence, bien que faible, entre les spectres des diffusions élastiques des ions atomiques H^+ et moléculaires H_2^+ . Nous avons également, utilisé la résonance à 1440 keV de la diffusion élastique des deutons sur carbone $^{12}\text{C}(d,d)^{12}\text{C}$ pour tenter d'observer l'effet de voisinage.

5.2 Courbe d'excitation de la diffusion élastique $^{27}\text{Al}(p,p)^{27}\text{Al}$

Les résultats de mesures des courbes d'excitation disponibles dans la littérature sont, le plus souvent, spécifiques aux besoins de leurs auteurs ou dépendants de la disponibilité des cibles et des systèmes de détection utilisés. Dans la gamme d'énergie qui nous intéresse, les courbes d'excitation sont données pour des angles de détection différents aux nôtres ou avec des pas en énergie large, ne pouvant localiser la résonance en question. Pour une meilleure analyse et exploitation des résultats expérimentaux, nous avons effectué nos propres mesures de courbes d'excitation. Pour cela, nous avons utilisé un film mince d'aluminium de 100Å d'épaisseur, évaporé sous un vide de $5.0 \cdot 10^{-6}$ mbar par la méthode PVD (Physical Vacuum Deposition) sur un substrat de graphite, préalablement poli jusqu'à l'obtention d'une surface miroir. Une fine couche d'or a été évaporée sur le film d'Al pour servir de marqueur pour les spectres et aussi pour la détermination de la section efficace de la diffusion élastique des protons sur l'or.

Les protons diffusés sur l'Al sont détectés à un angle de 165° au moyen d'un détecteur de particules chargées de 10 keV de résolution.

Un spectre typique des protons rétrodiffusés sur la cible C/Al/Au est montré à la figure 3.20. Les différents pics correspondants à Au, Al et C sont bien séparés. L'oxygène, apparaissant entre l'aluminium et le carbone est dû à la contamination de la cible lors de l'évaporation.

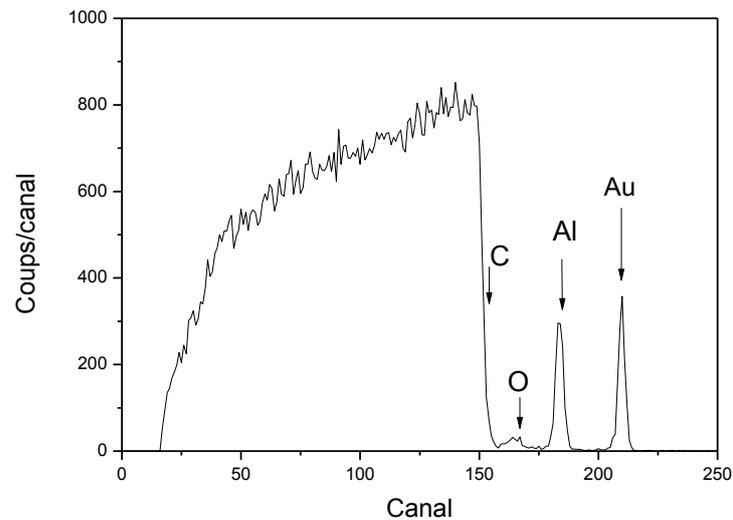


Figure 3.20. Spectre en énergie obtenu pour une cible de C/Al/Au analysée avec un faisceau de protons de 1121 MeV à 165°.

Durant les expériences, nous avons utilisé un courant de faible intensité (15 nA) afin d'éviter une contamination par un dépôt de carbone et une éventuelle détérioration de la cible. La section efficace a été mesurée pour une gamme d'énergie allant de 1.10 jusqu'à 1.14 MeV avec un pas minimum de 500 eV, près de la résonance. Le signal correspondant à l'aluminium a été intégré et normalisé par le rendement obtenu en intégrant le signal qui correspond à la couche d'or. La section efficace de la diffusion des protons par l'aluminium est déterminée à partir de l'équation suivante [123]:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{Al} = \frac{A_{Al}}{A_{Au}} \left(\frac{(Nt)_{Au}}{(Nt)_{Al}}\right) \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{Au} \quad (5.1)$$

A_{Al} est le rendement de la diffusion élastique sur l'aluminium,
 A_{Au} est le rendement de la diffusion élastique sur l'or,
 $(Nt)_{Al}$ est la densité surfacique de l'aluminium,
 $(Nt)_{Au}$ est la densité surfacique de l'or,
 $(d\sigma/d\Omega)_{Au}$ est la section efficace de Rutherford pour l'or.

Dans les figures 3.21 et 3.22 sont présentées les courbes d'excitation expérimentales obtenues avec des protons diffusés à 165°, respectivement sur l'aluminium et sur l'or. Techniquement, il est difficile d'obtenir des pas de 1 keV afin de réussir l'allure de la courbe donnée par R. Nelson [124]. Nous avons alors, utilisé des pas plus élevés avec un faisceau H^+ aux énergies $E_a(i)$ et ensuite, complété la gamme avec le faisceau H_2^+ aux énergies intermédiaires $E_m(j)=2x(E_a(i)+1keV)$, avec la précaution de patienter le temps nécessaire entre deux mesures successives pour assurer un bon refroidissement de l'aimant d'analyse et atteindre une certaine stabilité de l'énergie. Cette action a été rendue possible grâce à la lecture de l'énergie en fréquence avec un appareillage bien adapté.

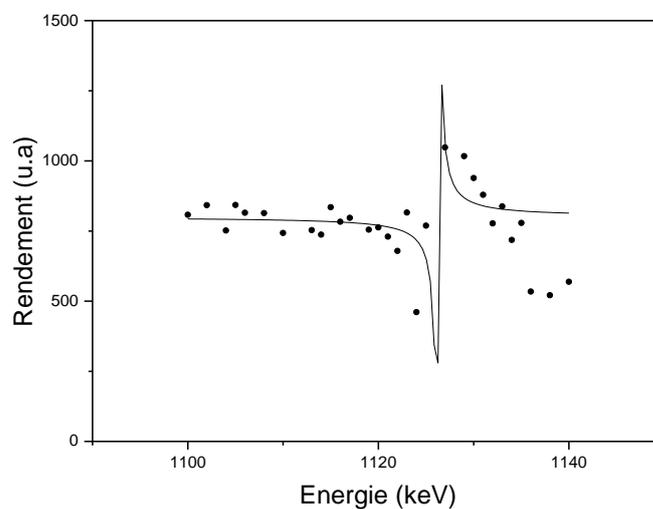


Figure 3.21. Courbe de rendement de la diffusion élastique des protons sur l'aluminium (symboles). La courbe en trait plein représente un fit mathématique des données expérimentales.

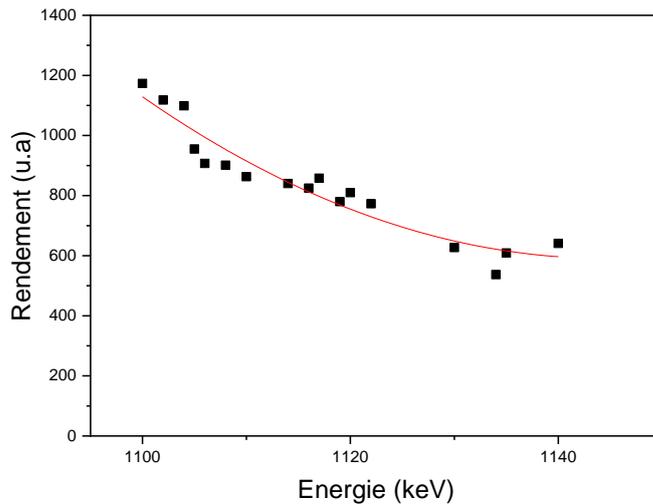


Figure 3.22. Courbe de rendement de la diffusion élastique des protons sur l'or (symboles). La courbe en trait plein représente un fit mathématique des données expérimentales.

5.3 Observation de l'effet de voisinage en utilisant la diffusion élastique $^{27}\text{Al}(p,p)^{27}\text{Al}$.

Les spectres présentés sur la figure 5.4 sont issus de la diffusion élastique des protons H^+ et des ions moléculaires H_2^+ sur une cible Au/Al/C à un angle de détection de 165° . L'énergie des ions du faisceau incident correspond à l'énergie de la résonance 1121 keV de la section efficace de la diffusion élastique $^{27}\text{Al}(p,p)^{27}\text{Al}$. La cible Au/Al/C a été élaborée de la même manière que celle utilisée pour la mesure de la section efficace. Une fine couche d'or est évaporée sur une couche d'Al de 500×10^{15} atome/cm², déposée par évaporation sur un substrat de graphite. La couche d'or jouant le rôle de marqueur. En comparant les spectres obtenus avec les ions H^+ et H_2^+ de la figure 3.23, une nette différence est observée dans l'intensité des pics d'aluminium. Les pics de Au étant identiques dans les deux cas.

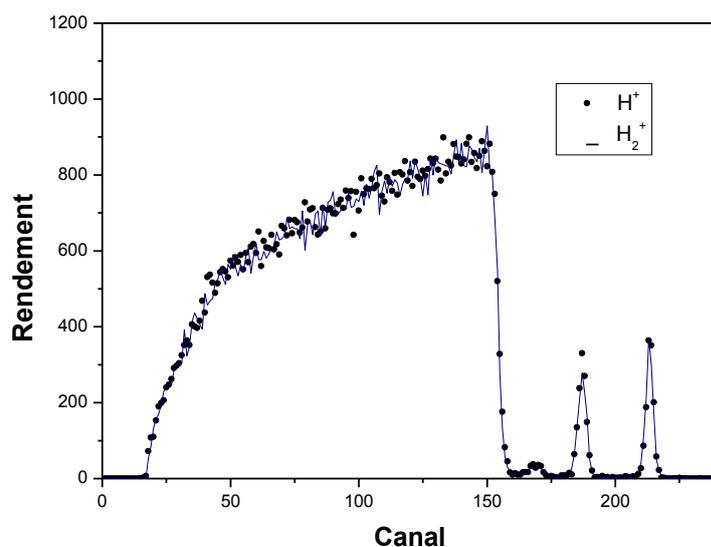


Figure 3.23. Spectres EBS obtenus à 165° avec les ions H⁺ et H₂⁺ d'énergie 1121 MeV/atome.

L'analyse quantitative des spectres est assurée au moyen du code IBA DataFurnace. La simulation du spectre obtenu avec les ions H⁺ est effectuée en ajustant de façon continue les paramètres expérimentaux tels que les fluctuations en intensité du faisceau d'ions et la calibration en énergie afin d'éviter tout artéfact expérimental. Le résultat de la simulation est donné à la figure 3.24. Les paramètres donnant la meilleure simulation du spectre sont ensuite utilisés pour simuler le spectre obtenu avec les ions H₂⁺. Le résultat est illustré sur la figure 3.25.

Les résultats de la simulation montrent bien que la différence en termes d'intensité entre les deux spectres obtenus avec les ions H⁺ et H₂⁺ est d'origine physique ce qui est attribué à l'effet de voisinage.

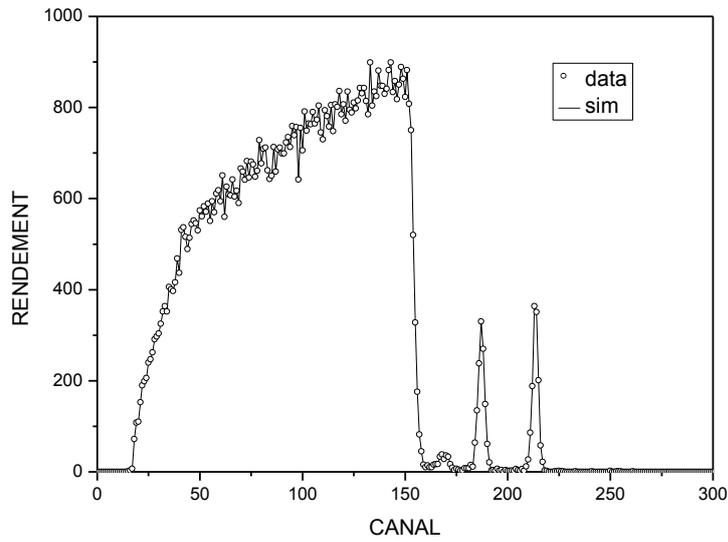


Figure 3.24. Spectres en énergie EBS obtenus à 165° utilisant des ions H^+ à 1121 keV/at. (o) données expérimentales et (trait continu) spectre simulé.

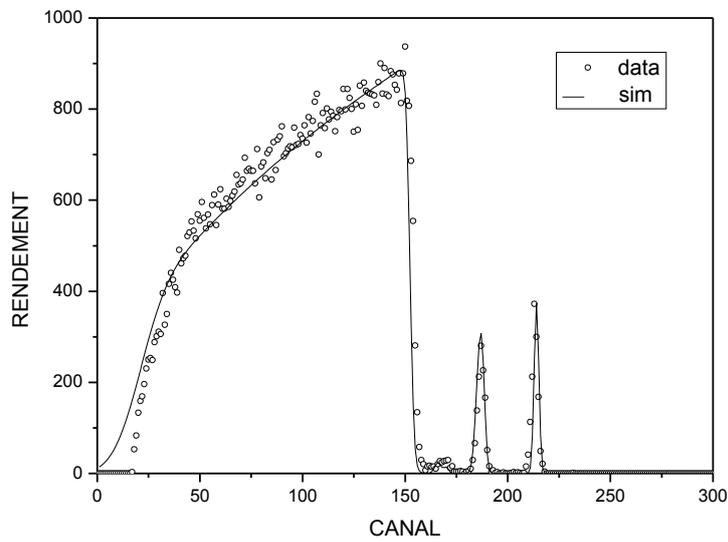


Figure 3.25. Spectres en énergie EBS obtenus à 165° utilisant des ions H_2^+ à 1121 keV/at. (o) données expérimentales et (trait continu) spectre simulé.

5.4 Courbe de rendement de la diffusion élastique $^{12}\text{C}(d, d)^{12}\text{C}$

Les résultats obtenus par notre étude du ralentissement des ions moléculaires H_2^+ dans l'aluminium nous ont encouragés à appliquer la méthode de la diffusion élastique résonante à l'étude de l'effet de proximité (ou voisinage) des ions moléculaires de deutérium.

Nous avons d'abord, déterminé la courbe d'excitation de la diffusion élastique $^{12}\text{C}(d, d)^{12}\text{C}$, présentant une résonance à 1440 keV. A la figure 3.26 sont donnés les résultats obtenus par la mesure du rendement de la réaction $\text{C}^{12}(d, d_0)\text{C}^{12}$ dans la gamme d'énergie 1000 – 1500 keV. Ces résultats sont en bon accord avec les résultats trouvés par M. Kokkoris et al. [125].

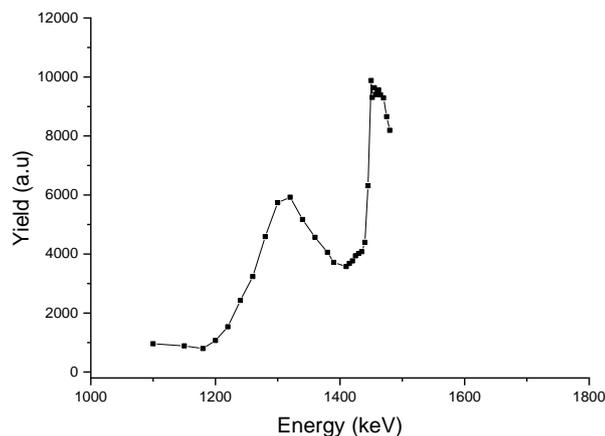


Figure 3.26. Courbe de rendement de la diffusion élastique $\text{C}^{12}(d, d_0)\text{C}^{12}$, mesurée autour de la résonance 1440 MeV à un angle de diffusion de 165° .

La courbe d'excitation de la diffusion $^{12}\text{C}(d, d)^{12}\text{C}$ calculée par [A. Gurbich] pour des deutons diffusés sur du carbone à un angle de 170° , dans la gamme d'énergie 600-1980 keV est donnée à la figure 3.27 pour servir de référence.

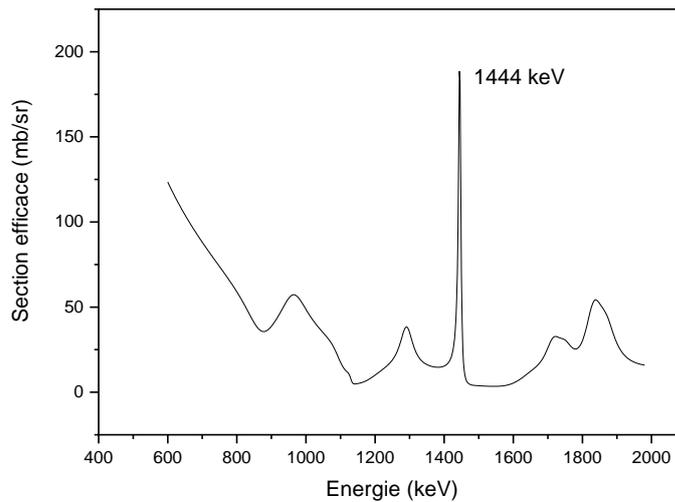


Figure 3.27. Section efficace différentielle pour des deutons diffusés sur du carbone à 170° dans la gamme d'énergie 600-1980 keV [111].

5.5 Observation de l'effet de voisinage en utilisant la diffusion élastique $^{12}\text{C}(d, d)^{12}\text{C}$.

Les cibles utilisées dans ce travail sont décrites dans les chapitres précédents. Dans les figures 3.28(a) et 3.28(b) sont montrés les spectres en énergie obtenus pour des ions D^+ et D_2^+ diffusés sur la cible Au/Al/C au voisinage de la résonance située à 1440 keV. Le pic apparaissant au canal 329 est attribué à l'oxygène de contamination présent dans l'atmosphère lors des dépôts. Les mesures ont été réalisées dans une chambre à réactions sous un vide meilleur que 5×10^{-6} mbar. Les spectres de rétrodiffusion élastique des ions D^+ et D_2^+ sont obtenus via un système de détection composé d'un détecteur à barrière de surface ORTEC de 11 keV de résolution, positionné à 165°, et d'une chaîne électronique standard.

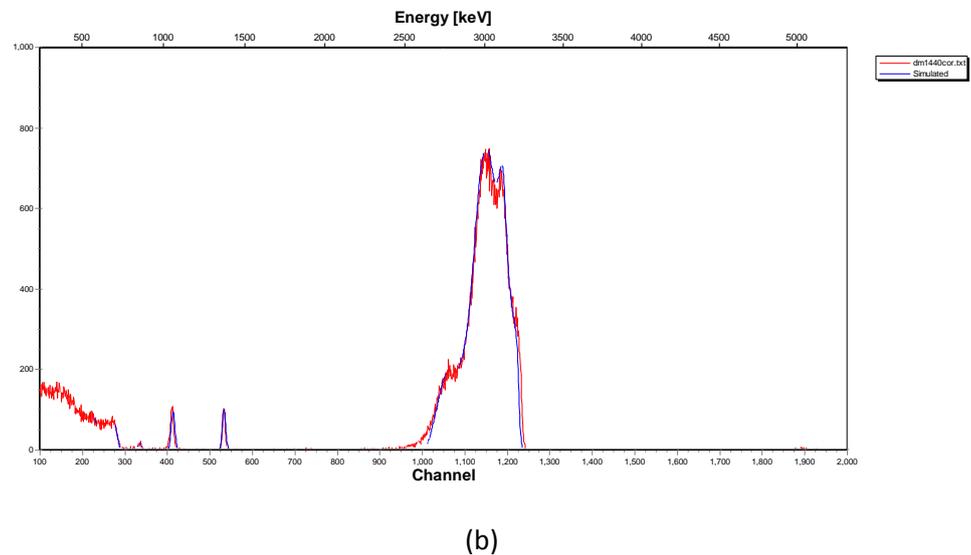
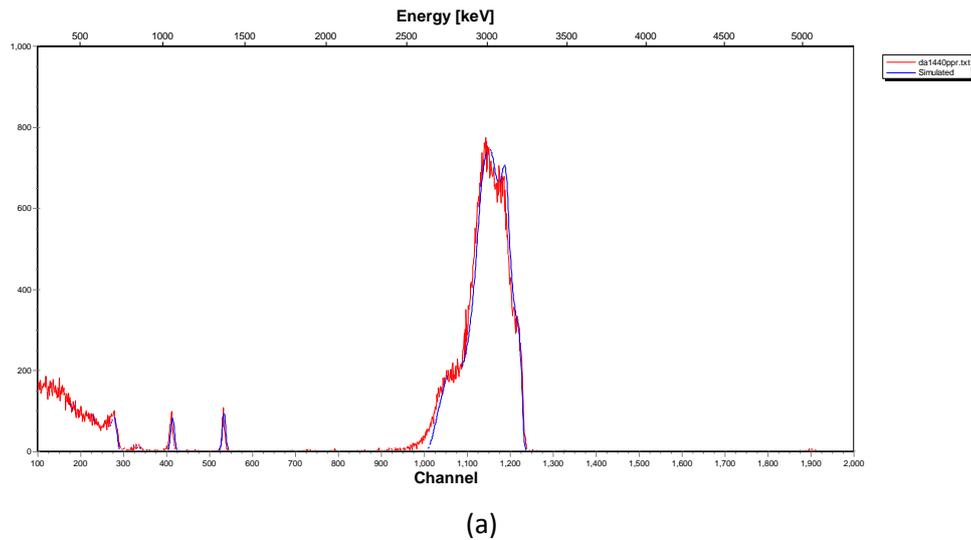


Figure 3.28. Spectres en énergie expérimental (en rouge) et théorique (en bleu) de rétrodiffusion à 165° obtenus ; (a) pour les ions D^+ , (b) pour les ions D_2^+ .

Sur la figure 3.29 sont comparés les spectres en énergie obtenus pour les faisceaux D^+ et D_2^+ de 1440 keV/at, interagissant avec une couche d'aluminium de 40 nm, déposée sur un substrat de graphite. L'analyse de ces spectres est effectuée au moyen du code IBA DataFurnace. Nous avons dans un premier temps optimisé les paramètres expérimentaux comme nous l'avons décrit précédemment, pour obtenir le meilleur fit du spectre en énergie pour les ions D^+ . Ces paramètres sont ensuite injectés dans le programme pour le traitement du spectre obtenu à partir de la diffusion des ions D_2^+ .

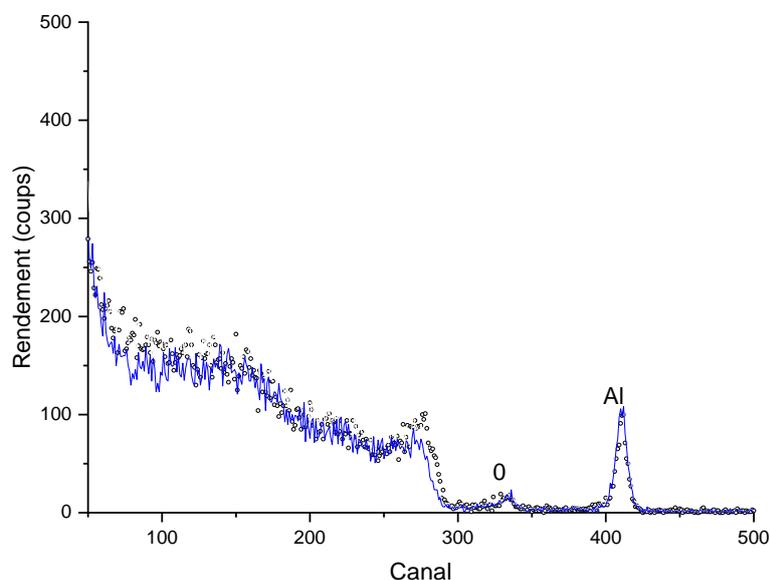


Figure 3.29. Comparaison des spectres de la diffusion élastique $^{12}\text{C}(d, d)^{12}\text{C}$, obtenus à 165° avec les ions incidents D^+ (o) et D_2^+ (trait plein) d'énergie 1440 keV/at.

5.6 Conclusion

Dans cette partie du travail, nous avons bien démontré la faisabilité d'utiliser les résonance 1121 keV et 1440 keV des diffusions élastiques respectivement, $\text{Al}(p,p)\text{Al}$ et $\text{C}(d,d)\text{C}$ pour l'étude de l'effet de voisinage et de l'explosion Coulombienne des ions moléculaires de l'hydrogène.

Plusieurs séries de mesures ont été conduites pour déterminer les rendements des deux réactions dans nos conditions de travail et les résultats de mesures ont été utilisés pour le traitement des données expérimentales.

Les résultats ont montré qu'il y'a possibilité d'utiliser l'effet de voisinage (moléculaire) pour détecter une résonance fine (quelques dizaines d'électronvolts), difficile à déterminer expérimentalement.

CONCLUSION GENERALE

Cette thèse a pour objet l'étude de l'évolution des processus dynamiques intervenant lors de l'interaction des molécules diatomiques avec des cibles solides. Nous avons, en particulier, discuté l'effet d'interférence se produisant entre les deux atomes constituant la molécule d'hydrogène et l'explosion Coulombienne, rencontrés au cours du ralentissement des ions issus de la dissociation de la molécule H_2 sous l'effet du potentiel répulsif écranté.

Notre investigation s'est portée tout d'abord sur l'exploitation des potentialités des techniques d'analyse par faisceaux d'ions IBA, utilisées habituellement dans les analyses multi-élémentaires, pour l'étude des effets moléculaires, à savoir ; la mesure du rapport des pouvoir d'arrêt moléculaire et atomique, et l'évaluation de la contribution de l'explosion Coulombienne au straggling. Nous nous sommes intéressés aux résonances des diffusions élastiques en utilisant la technique EBS, en raison des sections efficaces souvent élevées autour des résonances. En effet, à la résonance, les différences -même légères- entre les spectres issus de la diffusion des ions atomiques et moléculaires peuvent être observées. Nous avons proposé cette méthode comme une nouvelle approche et une alternative à la méthode de transmission de projectiles atomiques et moléculaires à travers des cibles ultrafines autoportées qui sont difficiles à préparer et peuvent présenter des irrégularités au sein de la surface, ce qui peut engendrer des erreurs significatives dans la mesure de l'épaisseur et donc, du pouvoir d'arrêt.

Notre contribution à l'évaluation de la perte d'énergie de projectiles moléculaires porte essentiellement sur le calcul numérique de la perte d'énergie des molécules H_2^+ dans l'aluminium en utilisant la théorie diélectrique de Lindhard. Nous avons appliqué les équations établies dans le cadre de cette théorie au calcul du ralentissement des ions atomiques dans les solides. Puis, nous avons étendu les calculs aux ions moléculaires H_2^+ en introduisant dans le programme initialement dédié aux ions atomiques, une sous-routine utilisant les équations développées par N. Arista pour considérer l'effet de voisinage. L'influence de la distribution des électrons dans les solides sur l'effet de voisinage a été

considérée en utilisant les modèles GMR et L&S tenant compte du confinement des électrons dans les solides.

Dans notre première étude expérimentale de l'interaction des ions moléculaires avec les solides, nous avons estimé la distance maximale de cohérence à partir des spectres en énergie RBS obtenus pour des ions H^+ et H_2^+ aux énergies respectives de 900 et 1550 keV, en comparant leurs intensités à la surface. Deux cibles différentes ont été utilisées; le silicium pur et une cible SIMOX. Les résultats obtenus ont été comparés aux valeurs déterminées à partir des expressions établies par Brandt et al., pour le calcul du temps de transmission de la molécule dans le milieu ralentisseur.

Dans la deuxième étude expérimentale, nous avons utilisé la résonance large à 1735 keV de la diffusion élastique $^{12}C(p,p)^{12}C$ pour observer les effets moléculaires dans des couches mince (20 nm) et semi-épaisse (100 nm) d'aluminium, déposées sur du graphite. L'énergie à 1706 keV/atome des projectiles atomique et moléculaire qui correspond au début de l'apparition de la résonance a été choisie pour l'étude tant qualitative (observation des spectres pour les ions H^+ et H_2^+), que quantitative en évaluant la différence entre l'énergie déposée par les deux projectiles. Cette méthode nous a permis d'observer les effets de voisinage et de l'explosion Coulombienne sur la perte d'énergie moléculaire, en fonction de l'épaisseur de la cible. L'effet de voisinage a été observé à faible épaisseur de la cible, et la contribution à l'élargissement de la perte d'énergie due à l'explosion Coulombienne a été observée à une épaisseur plus élevée. Les valeurs obtenues pour l'augmentation de la perte d'énergie et le facteur de l'élargissement de la perte d'énergie sont respectivement de 1,3 et 2, ce qui est en accord avec les résultats obtenus dans la littérature.

La troisième méthode expérimentale utilisée pour l'observation des effets moléculaires est basée sur les résonances des diffusions élastiques résonantes. Nous avons démontré la faisabilité d'utiliser les résonances à 1121 keV et 1440 keV des diffusions élastiques $^{27}Al(p,p)^{27}Al$ et $^{12}C(d,d)^{12}C$ pour l'étude de l'effet de voisinage et de l'explosion Coulombienne des ions moléculaires de l'hydrogène.

Plusieurs séries de mesures ont été conduites pour déterminer les rendements des deux réactions dans nos conditions de travail et les résultats de mesures ont été utilisés pour le

traitement des données expérimentales. Les résultats ont montré qu'il est possible d'utiliser l'effet de voisinage (moléculaire) pour détecter une résonance fine (quelques dizaines d'électronvolts), difficile à déterminer expérimentalement.

Pour les traitements de nos résultats expérimentaux, nous avons utilisé le code de simulation IBA DataFurnace. Ce programme a été développé à la base pour le traitement des spectres en énergie obtenus par des faisceaux atomiques. Il a été étendu dans ce travail au traitement des spectres obtenus avec des faisceaux moléculaires.

Le code IBA DataFurnace NDFv9.3.80 est présenté de façon détaillé dans le chapitre 3 de la première partie. C'est un programme de simulation de spectres pour les techniques IBA. Il a été développé pour extraire les profils en profondeur à partir de l'ajustement théorique des spectres expérimentaux. Les données sont interprétées par un algorithme de recuit simulé qui permet d'inclure les données obtenues par d'autres techniques IBA pour aboutir à un résultat optimisé.

Relativement aux programmes connus pour le traitement de spectres IBA, l'utilisation de ce programme n'est pas systématique. Pour l'exploiter convenablement, nous l'avons d'abord appliqué au traitement de spectres IBA obtenus par l'étude de l'effet des irradiations sur les polymères. Les résultats de cette étude sont présentés dans le chapitre 2 de la troisième partie de ce manuscrit.

REFERENCES

- [1] E. Rutherford, *Phil. Mag.*, 21 (1911) 669
- [2] N. Bohr, *Phil. Mag.*, 26 (1913) 1
- [3] P. Sigmund, A. Schinner, *Eur. Phys. J. D* 12 (2000) 425
- [4] K. J. Snowdon, R. A. Haring, *Nucl. Instr. and Meth. B* 18 (1986) 596
- [5] D. Pines, *Rev. Mod. Phys.* 28 (1956) 184
- [6] M. H. Nasim, Arshad, M. Mirza, G. Murtaza, P. K. Shukla²
Physica Scripta, 59,(1999) 379
- [7] N. R. Arista, J. L. Gervasoni, S. Segui, I. Villo-Perez, R. O. Barrachine, *Advances Quantum Chemistry* 80 (2019) 271
- [8] T. Bagdonat, M. Vicanek, I. I. Juaristi, F. J. Garcia de Abajo, *Nucl. Instr. and Meth. B* 142 (1998) 473
- [9] M. Farizon, N. V. de Castro Faria, B. Farizon-Mazuy, M. J. Gaillard, *Phys. Rev. A* 45 (1992) 179
- [10] C. D. Denton, I. Abril, M. D. Barriga-Carrasco, R. Garcia-Molina, G. H. Lantschner, J. C. Eckardt, N. R. Arista, *Nucl. Instr. and Meth. B* 193 (2002)198
- [11] J. C. Poizat, J. Remillieux, *Phys. Lett.* 34 A (1971) 53
- [12] W. Brandt, A. Ratkowsky, R.H. Ritchie, *Phys. Rev. Lett.*, 33 (1974) 1325
- [13] J. Kemmler, P. Koschar, M. Burhard and K.O. Groeneveld, *Nucl. Instr. and Meth.*, B12 (1985) 62
- [14] R. Garcia-Molina, I. Abril, C.D. Denton and N.R. Arista, *Nucl. Instr. and Meth.*, B 164-165 (2000) 310

- [15] V.A. Khodirev, V.S. Kulikauskas, C. Yang, Nucl. Instr. and Meth., B 195 (2002) 259
- [16] Y. Horino, M. Renda and K. Morita, Nucl. Instr. and Meth. B 33 (1988) 178
- [17] M. Behar, P.L. Grande, G. de M. Azevedo, E. Alves, M.F. da Silva, J.C. Soares, Nucl. Instr. and Meth. B 161- 163 (2000) 168
- [18] Y. Susuki, M. Fritz, K. Kimura, M.H. Mannami, R. Garcia-Molina, I. Abril, Phys. Rev. 62 (2000) 012902
- [19] M. Behar, J.F. Dias, P.L. Grande, J.H.R. dos Santos, N.R. Arista, Phys. Rev. 64 (2001) 022904
- [20] J.W. Tape, W.M. Gibson, J. Remilleux, R. Laubert, H.E. Wegner, Nucl. Instr. and Meth. 132 (1976) 75
- [21] Y. susuki, M. Fritz, K. Kimura, M. Manami, N. sakamoto, H. Ogawa, I. Katayama, T. Noro, H. Ikegami, Phys. Rev. A 50 (1994) 3533
- [22] S. M. Shubeita, P. L. Grande, J. F. Diaz, R. Garcia-Molina, C. D. Denton, I. Abril, Phys. Rev. B 83 (2011) 245423
- [23] L. F. S. Rosa, P. L. Grande, J. F. Diaz, and R. C. Fadanelli, Phys. Rev. A 91, 042704 (2015)
- [24] S. M. shubeita, R. C. Fadanelli, P. L. Grande, Surface Science (2013) 292
- [25] N. E. Koval, A. G. Borisov, L. F. S. Rosa, E. M. Stori, J. F. Dias, P. L. Grande, D. Sanchez-Portal, and R. Diez Muino, Phys. Rev. A 95, 062707 (2017)
- [26] N.R. Arista, Nucl. Instr. and Meth. B 164-165 (2000) 108
- [27] N.R. Arista, Phys. Rev. B 18 (1978) 1
- [28] P. Sigmund, I.S. Bitensky, J. Jensen, Nucl. Instr. and Meth. B 112 (1996) 1
- [29] J. Mugiraneza, G. Zhang, X. Le, L. Wang, C. Rong, Y. Wang, Nucl. Instr. And Meth. B 267 (2009) 3175
- [30] R. Garcia-Molina, C.D. denton, F.J. Perez-Perez, I. Abril, Phys. Stat. Sol. B 219 (2000) 23
- [31] W. Brandt, R. H. Ritchie, Nucl. Instr. and Meth. 132 (1976) 45
- [32] P. M. Echenique, R. H. Ritchie, W. Brandt, Phys. Rev. B 20 (1979) 2567

- [33] G. Basbas, R. H. Ritchie, Phys. Rev. A 25 (1982) 1943
- [34] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, U. Littmark, The stopping and Range of Ions in Solids, (Pergamon Press, New York, 1985).
- [35] D. S. Gemmell, J. Remillieux, J. C. Poizat, M. J. Gallard, R. E. Holland, Z. Vager, Nucl. Instr. and Meth. 132 (1976) 61
- [36] Z. Vager, D. S. Gemmell, B. Zabranski, Phys. Rev. A 14 (1976) 638
- [37] A. Breskin, A. Faibis, G. Goldring, M. Hass, R. Kaim, Z. Vager, N. Zwang, Nucl. Instr. and Meth. 170 (1980) 93
- [38] T. Kaneko, , Nucl. Instr. and Meth. B 153 (1999) 15
- [39] S. Heredia-Avalos, r. Garcia-Molina, I. Abril, , Nucl. Instr. and Meth. B 164- 165 (2000) 296
- [40] W. Guiqiu, E. Peng, XIA Wenwen, Plasma Science and Technology, 16 (2014) 637
- [41] S. A. Cruz, E. G. Gamaly, L. T. Chadderton, D. Fink, Rad. Meas. 36 (2003) 145
- [42] M. Behar, C. Cohen, , J.H.R. dos Santos, P.L. Grande, Nucl. Instr. and Meth. B 190 (2002) 74
- [43] E. Ray, R. Kirsch, H. H. Mikkelsen, J. C. Poizat, J. Remillieux, Nucl. Instr. and Meth. B 69 (1992) 133
- [44] S. M. Shubeita, R. C. Fadanelli, J. F. Diaz, P. L. Grande, C. D. Denton, I. Abril, R. Garcia-Molina, N. R. Arista, Phys. Rev. B 80 (2009) 205316-1
- [45] J. C. Poizat, J. Remillieux, J. Phys. B 5 (1972) L94
- [46] B. Manschwetus, T. Nubbemeyer, K. Gorlmg, G. Steinmeyer, U. Eichmann, H. Rottke, W. Sandner, Phys. Rev. Lett. 102 (2009) 113002
- [47] N. E. Capuj, M. M. Jakas, Nucl. Instr. and Meth. B 115 (1996) 146
- [48] A. N. Tripathi, K. C. Mathur, S. K. Joshi, Phys. Rev. A 7 (1975) 586
- [49] H. Kobayashi, N. Oda, Phys. Rev. A 30 (1984) 1294

- [50] R.C. Fadanelli, P.L. Grande, M. Behar, J.F. Dias, G. Schiwietd, Nucl. Instr. and Meth. B 230 (2005) 96
- [51] S.M. Shubeita, M. A. Sortica, P. L. Grande, J. F. Dias, N. R. Arista, Phys. Rev. B 77 (2008) 115327
- [52] R. C. Fadanelli, P. L. Grande, M. Behar, J. F. Diaz, B 69, 212104 (2004)
- [53] A. L'Hoir, C. Cohen, J. J. Ganem, I. Trimaille, I. C. Vickridge and S. M. Shubeita, Phys. Rev. A 85, 042901 (2012)
- [54] M. Chiari, L. Giuntini, P. A. Mando, N. Taccetti, Nucl. Instr. And Meth. B 174 (2001) 259
- [55] M. Kokkoris, P. Misailides, S. Kossionides, A. Lagoannis, Ch. Aarbadas, R. Vlaston, C. T. Papadopoulos, A. Kontos, Nucl. Instr. and Meth. B 249 (2006)81
- [56] J. Lindhard and A. Winther, Mat. Fys. Medd. k. Dan. Vidensk. Selsk. 34 (1964) 1
- [57] SRIM 2003, obtained from <http://www.srim.org>
- [58] J. F. Ziegler, Helium: stopping Powers and Rangers in All elements (Pergamon press, New York, 1977)
- [59] W. H. Bragg, R. Kleeman, Phylos. Mag. 10 (1905) 318
- [60] J. F. Ziegler, J. M. Manoyan, Nucl. Instr. And Meth. B 35 (1988) 215
- [61] G. S. Was, Fundamentals of Radiation Material Science (Springer, Berlin hedelberg, 2007)
- [62] N. Bohr, Phil. Mag. 30 (1915) 318
- [63] J. Lindhard, M. Sharff, Phys. Rev. 124 (1961) 128
- [64] E. Bonderup, P. Hvelpund, Phys. Rev. A4 (1971) 526
- [65] W. K. Chu Phys. Rev. A13 (1976) 2057
- [66] K. Sunil, P. K. Diwan, K. Shyam Radiat. Phys. Chem. 106 (2015) 21
- [67] I. Gertner, M. Meron, B. Rosner, Phys. Rev. A 18 (1978) 2022

- [68] B. Latta, P. Scanlon, Phys. Rev. A 12 (1975) 34
- [69] Z. Vager, D. S. Gemmell, Phys. Rev. Letters 37 (1976) 1352
- [70] E.U. CONDON, Phys. Rev. 32 (1928) 858
- [71] P.M. Morse, Phys. Rev. 34 (1929) 57
- [72] W. H. Barkas, W. Birnbaum, F. M. Smith, Phys. Rev. 101 (1956) 778
- [73] ICRU report, Bethesda, Md., USA, 1993
- [74] N. Bohr, Phil. Mag., 30 (1915) 581
- [75] H. Bethe, Ann. Physik 5 (1930) 325
- [76] ICRU report, Bethesda, Md., USA, 1984
- [77] S. Rubin, Nucl. Instr. and Meth. 5 (1959) 177
- [78] W. K. Chu, J. W. Mayer, M. A. Nicolet Backscattering Spectrometry 1978 San Diego, CA: academic)
- [79] J. Chadwick, E. S. Bieler Phil. Mag. 6 (1921) 923
- [80] I. Stefan, Ph.D., Université de Caen, 2006
- [81] J. L'Ecuyer, J. A. Davies, N. Matsunami Nucl. Instr. And Meth. 160 (1979) 337
- [82] W. A. Wenzel, W. Whaling Phys. Rev. 87 (1952) 499
- [83] B. Touchrift, These Magister 1992
- [84] E. Szilagy, F. Paszti, A. Manuaba, C. Hajdu, E. Kotai, Nucl. Instr. and Meth. B43 (1989) 502
- [85] V. Quillet, F. Abel, M. Schott, Nucl. Instr. and Meth. B 83 (1993) 47
- [86] H. Salah, B. Touchrift, M. Saad, Nucl. Instr. and Meth. B (1998) 382
- [87] L. Doyle, D. K. Brice, Nucl. Instr. and Meth. B 35 (1988) 301

- [88] J. Tirira, P. Trocelier, M. Mosbah, N. Metrich, Nucl. Instr. and Meth. B 56/57 (1991) 839
- [89] M. Ouchabane, H. Salah, M. Hrrrmann, N. Tabet, K. Henda, B. Touchrift, M. Kechouane, Phys. Status Solidi A 207 (2010) 2311
- [90] M. Mayer, Proceedings of the 15th International Conference on the application of accelerators in Research and Industry, J. L. Duggan and I. L. Morgan (eds), American Institute of Physics Conference Proceedings 475 (1999) 541
- [91] G. Amsel, J. P. Nadai, E. D'Artemare, D. David, E. Girard, J. Moulin, Nucl. Instr. and Meth. 92 (1971) 481
- [92] C. Olivier, M. Peisash, J. Radioanalytical Chem. 5 (1970) 391
- [93] G. Amsel, J. A. Davies, Nucl. Instr. and Meth. 18 (1983) 177
- [94] H. Salah, N. Arab, J. Nucl. and Rad. Chem. Sciences 8 (2007) 31
- [95] G. E. Coote, I. C. Vickridge, Nucl. Instr. and Meth. B 30 (1988) 393
- [96] H. U. Frey, G. Otto, J. Vogt, Nucl. Instr. and Meth. B 30 (1988) 83.
- [97] L. R. Doolittle, Nucl. Instr. and Meth. B 113 (1985) 300
- [98] N.P. Barradas, C. Jeynes, R.P. Webb, Appl. Phys. Lett. 71 (1997) 291
- [99] C. Jeines, V. V. Palitsin, G. W. Grine, C. Pascual-Izara, A. Taborda, M. A. Reis, N. P. Barradas, Nucl. Instr. And Meth. B 481 (2020) 47
- [100] N.P. Barradas, C. Jeynes, Y. Kusano, J.E. Evetts, I.M. Hutchings, AIP Conf. Proc., 475 (1999) 504
- [101] N.P. Barradas, A.P. Knights, C. Jeynes, O.A. Mironov, T.J. Grasby, E.H.C. Parker Phys. Rev. B, 59 (7) (1999) 5097
- [102] C. Jeynes, N.P. Barradas, H. Rafla-Yuan, B.P. Hichwa, R. Close, Surf. Interface Anal., 30 (2000) 237
- [103] N.P. Barradas, C. Jeynes, O.A. Mironov, P.J. Phillips, E.H.C. Parker, Nucl. Instr. Methods B, 139 (1998) 239
- [104] C. Jeynes, N.P. Barradas, J.R. Wilde, A.L. Greer, Nucl. Instrum. Methods B, 161–163 (2000) 287

- [105] N.P. Barradas, S.A. Almeida, C. Jeynes, A.P. Knights, S.R.P. Silva, B.J. Sealy, Nucl. Instr. Methods B, 148 (1999) 463
- [106] N.P. Barradas, C. Jeynes, R.P. Webb, U. Kreissig, R. Grötzschel, Nucl. Instrum. Methods B, 149 (1999) 233
- [107] R. O. Bondelid, C. A. Kennedy, Phys. Rev. 115 (1959) 1601
- [108] A. Schardt, W. A. Fowler, C. C. Lauritsen, Phys. Rev. 86 (1952) 527
- [109] R. O. Bondelid, J. W. Butler, Phys. Rev. 130 (1963) 1078
- [110] R. O. Bondelid, J. W. Butler, Nucl. Phys. 53 (1964) 618
- [111] S. E. Hunt, K. Firth, Phys. Rev. 99 (1955) 786
- [112] S. E. Hunt, R. A. Pope, D. V. Freck, W. W. Evans, Phys. Rev. 120 (1960) 1740
- [113] F. W. Prosser, W. P. Unruth, B. H. Wildenthal, R. W. Krone, Phys. Rev. 125 (1962) 594
- [114] H. J. Rose, F. Riess, W. Trost, Nucl. Phys. 21 (1960) 367
- [115] J. W. Butler, C. R. Gossett, Phys. Rev. 108 (1957) 1473
- [116] G. Fotti, L. Calcagno, O. Puglist, Nucl. Instr. and Meth. 105 (1995) 46
- [117] E. Balanzat, N. Betz S. Bouffard, Nucl. Instr. And Meth. 209-210 (1983) 87
- [118] H. Salah, B. Touchrift, M. Saad Nucl. Instr. And Meth. B160 (2000) 149
- [119] H. SalaH, B. Touchrift, Rad. Effects and Defects in Solids 159 (2004) 181
- [120] H. H. Andersen, F. Ziegler, The stopping and Ranges of Ions in Matter, vol.3 Pergamon Press, 1977
- [121] A. F. Gurbich, Nucl. Instr. and Meth. B136-138 (1998) 60
- [122] N. P. Barradas, C. Jeines, R. P. Webb, Appl. Phys. Lett. 71 (1997) 291
- [123] J. M. Knox, J. F. Harmon, Nucl. Instr. And Meth. B44 (1989) 40
- [124] R. O. Nelson, J. Phys. Rev. C 29 (1984) 1656
- [125] M. Kokkoris, Nucl. Instr. and Meth. B 249 (2006) 81.