

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Université 20 Août 1955-Skikda

Faculté des sciences



Thèse

Présentée

Par Mme CHERIDI Nour Elhouda

pour l'obtention du diplôme de Doctorat en Physique

Spécialité : **Physique des rayonnements**

Thème : Synergie des dépôts d'énergie d'origine électronique et nucléaire dans les modifications induites aux ions de basse énergie dans la silice vitreuse.

Soutenue, le 18/12/2025

Membres du jury :

Président	M. OTMANI Amara	Professeur, Université 20 Août 1955-Skikda
Directeur de thèse	M. MEFTAH Ali	Professeur, Université 20 Août 1955-Skikda
Examineurs	Mme TRIKI Houria	Professeur, Université Badji Mokhtar, Annaba
	Mme KADID Soraya	Maître de Conférences A, Université 20 Août 1955-Skikda

Je dédie ce travail à :
mes parents, mon frère Abderrahmane, mon époux Fayçal et ma fille Rawane.

Remerciements

*Ce travail a été accompli au sein du Laboratoire de Recherche sur la Physico-Chimie des Surfaces et Interfaces (LRPCSI) de l'Université 20 Août 1955 – Skikda. J'adresse mes sincères remerciements à Monsieur le Professeur **Fayçal DJAZI**, Directeur du laboratoire, pour son accueil bienveillant ainsi que pour m'avoir mis à disposition les moyens nécessaires à la réalisation de ce travail.*

*Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Monsieur **Ali MEFTAËH**, Professeur à l'Université de Skikda, pour l'encadrement de ce travail de thèse. Je le remercie sincèrement pour son aide précieuse, sa disponibilité constante, son soutien indéfectible et la qualité de ses conseils scientifiques.*

*J'adresse également mes sincères remerciements à Monsieur le Professeur **Amara OTMANI**, de l'Université de Skikda, qui a bien voulu accepter de présider le jury de cette thèse. Mes remerciements vont aussi à Madame le Professeur **Houria TRIKI**, de l'Université de Annaba, ainsi qu'à Madame **Soraya KADID**, Maître de Conférences A à l'Université de Skikda, pour l'intérêt qu'elles ont porté à ce travail et pour avoir accepté d'en être les rapporteurs.*

*Je remercie vivement le Dr **Marcel TOULEMONDE** pour ses échanges enrichissants, son soutien lors de la campagne expérimentale au CIMAP, GANIL (Caen), et pour la mise à disposition généreuse des échantillons. Je suis également reconnaissant au Directeur du CIMAP pour l'accès aux moyens d'irradiation nécessaires.*

J'exprime ma gratitude au Directeur du Laboratoire Chimie Ingénierie Moléculaire et Nanostructures (LCIMN) de l'Université Sétif-1 pour m'avoir autorisé à effectuer les analyses par microscopie à force atomique.

Table des matières

Introduction générale	4
Chapitre I : Interaction Ion – matière	7
I.1 Le pouvoir d'arrêt	8
I.1.1 Pouvoir d'arrêt nucléaire (collisions élastiques).....	8
I.1.2 Pouvoir d'arrêt électronique (collisions inélastiques).....	9
I.1.3 Comparaison entre pertes d'énergie nucléaire et électronique	13
I.4 La loi de Bragg et l'évaluation des parcours résiduels	14
I.5 Création de défauts.....	16
I.5.1 Création de défauts par collisions élastiques	16
I.5.2 Création de défauts par excitations électroniques.....	18
I.5.3 Effet de la vitesse du projectile sur la création des traces	19
I.5.4 Les modèles de formation de défauts.....	22
Chapitre II : État de l'art sur les effets de l'irradiation dans la Silice vitreuse	26
II.1 Caractéristiques du dioxyde de silicium	27
II.1.1 Propriétés structurales.....	29
II.1.2 Propriétés électroniques	31
II.1.3 Propriétés physiques	33
II.1.4 Propriétés chimiques.....	33
II.1.5 Propriétés électriques.....	33
II.2 Le choix du matériau.....	34
II.3 Les procédés de modification des matériaux	35
II.3.1 Croissance des couches minces	35
II.3.2 Pulvérisation ionique	36
II.3.3 Implantation ionique.....	36
II.3.4 Techniques d'analyse par faisceau d'ions (IBA).....	36
II.3.5 Nano-structuration des matériaux.....	37
II.4 Effets induits par irradiation dans le SiO ₂	37
II.4.1 Silicium cristallin sous irradiation.....	37
II.4.2 Les défauts créés dans l'a-SiO ₂	39
Chapitre III : Dispositifs expérimentaux	45
III.1 Les dispositif d'irradiation	46
III.1.1 Les accélérateurs du GANIL	47
III.1.2 ARIBE.....	48
III.1.3 La plateforme expérimentale	48

III.2 La spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier.....	50
III.2.1 Bandes d'absorption infrarouge dans les oxydes de silicium	53
III.2.2 Principe de fonctionnement du FTIR.....	56
III.2.3 Système expérimental d'acquisition FTIR	57
III.3 La microscopie à force atomique (AFM)	58
III.3.1 principe général.....	58
III.3.2 Les interactions pointe-échantillon	59
III.3.4 Modes opératoires de l'AFM	61
III.3.5 Composants instrumentaux.....	63
Chapitre IV : Présentation et analyse des résultats.....	66
IV.1. Méthodologie expérimentale.....	67
IV.2 Résultats et discussion	70
IV.2.1 Spectroscopie infrarouge.....	70
IV.2.2. Section efficace de la transformation structurale et détermination du rayon	77
IV.2.3 Caractérisation morphologique par microscopie à force atomique.....	79
IV.2.4 Analyse selon le modèle (u-TSM).....	86
Conclusion générale.....	97
Références	99
Annexe : Établissement des deux équations différentielles couplées du modèle de la Pointe Thermique	106
Liste des figures	110
Liste des tableaux	114

Introduction générale

Introduction générale

L'étude des effets de l'irradiation ionique dans les matériaux isolants amorphes constitue depuis plusieurs décennies un champ de recherche dynamique, motivé à la fois par des enjeux fondamentaux et des applications technologiques majeures. Parmi ces matériaux, la silice vitreuse (α -SiO₂) occupe une position centrale, en raison de ses propriétés physico-chimiques exceptionnelles, de son abondance naturelle, ainsi que de son importance cruciale dans des domaines stratégiques tels que les fibres optiques, les composants microélectroniques, et les dispositifs destinés à des environnements extrêmes, notamment nucléaires et spatiaux. Dans ces contextes, la résistance aux radiations et la stabilité structurale sont des critères essentiels qui conditionnent la fiabilité et la longévité des dispositifs.

L'interaction entre les ions et la silice amorphe résulte en un transfert d'énergie capable de modifier la structure du matériau à diverses échelles, de la création de défauts ponctuels à des phénomènes de densification et à la formation de traces latentes. Bien que de nombreuses études aient exploré les mécanismes de création de défauts sous irradiation^[Bena92, Busc92, Meft98, Awaz00, Klau04, Toul11, Rota12], la contribution relative des pertes d'énergie nucléaire (S_n) et électronique (S_e) aux altérations structurales demeure une question ouverte, particulièrement dans le régime des faibles énergies ioniques. C'est précisément dans ce domaine énergétique, à savoir 75 keV pour N⁵⁺ et 165 keV pour Ar¹¹⁺, que s'inscrit le présent travail.

*Dans cette perspective, cette thèse s'inscrit dans une double démarche complémentaire. D'une part, elle vise à caractériser et analyser les modifications induites par l'irradiation ionique dans la silice vitreuse, en identifiant les mécanismes de création des défauts et leurs répercussions sur les propriétés structurales du matériau. D'autre part, elle ambitionne de confronter ces résultats expérimentaux au modèle théorique "le modèle de la pointe thermique unifié (**u-TSM**)".*

*Pour atteindre ces objectifs, nous avons adopté une approche expérimentale et modélisatrice combinant la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (**FTIR**), la microscopie à force atomique (**AFM**) et la modélisation numérique via le modèle unifié de la pointe thermique (**u-TSM**). La spectroscopie **FTIR** a permis de suivre avec précision*

l'évolution des modes vibrationnels et des angles de liaison Si–O–Si, tandis que l'AFM a mis en lumière les transformations topographiques de surface résultant de l'irradiation. Ces observations ont ensuite été analysées à la lumière du modèle u-TSM, permettant d'établir une corrélation directe entre la nature du dépôt d'énergie (nucléaire ou électronique) et les changements structuraux observés.

Ce travail contribue ainsi à approfondir la compréhension des mécanismes de modification de la silice vitreuse sous irradiation ionique de basse énergie, tout en ouvrant des perspectives prometteuses pour la conception de matériaux plus résistants aux environnements radiatifs extrêmes, avec des impacts potentiels majeurs dans les secteurs nucléaire, spatial et microélectronique.

Ce mémoire est organisé en quatre chapitres :

Le premier chapitre expose les bases théoriques de l'interaction ion-matière. Après un rappel des principaux mécanismes physiques impliqués dans la formation des défauts sous irradiation, les modèles théoriques existants sont présentés puis confrontés aux résultats expérimentaux de la littérature.

Le deuxième chapitre propose une synthèse bibliographique approfondie sur les effets de l'irradiation dans la silice vitreuse, mettant en lumière l'état actuel des connaissances, les résultats majeurs obtenus, ainsi que les questions encore ouvertes, afin de situer clairement notre contribution dans un cadre scientifique global.

*Le troisième chapitre décrit les dispositifs expérimentaux mobilisés dans cette étude. Il détaille, d'une part, les installations d'irradiation utilisées pour exposer les échantillons aux faisceaux ioniques, et, d'autre part, les techniques de caractérisation mises en œuvre, notamment la spectroscopie **FTIR** et la microscopie **AFM**.*

*Le quatrième chapitre représente le noyau central des résultats de cette thèse. Dans une première partie, les spectres **FTIR** ainsi que les images **AFM**, obtenus avant et après irradiation, sont présentés et analysés, mettant en évidence les modifications structurales et morphologiques induites. Dans une seconde partie, ces données expérimentales sont confrontées au modèle unifié de la pointe thermique pour offrir une interprétation cohérente des mécanismes de formation et d'évolution des défauts sous irradiation.*

Chapitre I : Interaction Ion – matière

Introduction chapitre I

L'interaction des ions avec la matière constitue un domaine fondamental en physique des matériaux, car elle conditionne l'ensemble des phénomènes induits par l'irradiation ionique. Lorsqu'un ion pénètre dans un solide, il perd progressivement son énergie par des processus multiples impliquant les noyaux et les électrons de la cible. Ces mécanismes d'interaction sont à l'origine de modifications structurales, électroniques et parfois mécaniques du matériau, qui peuvent profondément altérer ses propriétés physiques.

Dans ce chapitre, nous présentons une synthèse bibliographique visant à introduire les concepts essentiels relatifs au pouvoir d'arrêt nucléaire et électronique, ainsi qu'aux parcours ioniques. Nous abordons ensuite les principaux mécanismes de création de défauts, depuis les déplacements atomiques élémentaires jusqu'à la formation de traces latentes, en passant par les modèles théoriques proposés pour décrire ces phénomènes. Cette mise en perspective permettra de mieux comprendre les mécanismes fondamentaux qui seront exploités et analysés dans les chapitres expérimentaux de cette thèse.

I.1 Le pouvoir d'arrêt

Lorsqu'un ion pénètre dans un solide, il perd progressivement son énergie en raison de diverses interactions avec les atomes et les électrons de la cible. Cette perte d'énergie, appelée pouvoir d'arrêt (ou stopping power), dépend de la masse, de la charge et de l'énergie de l'ion, ainsi que des propriétés électroniques et structurales du matériau cible. On distingue deux contributions principales : le pouvoir d'arrêt nucléaire et le pouvoir d'arrêt électronique.

I.1.1 Pouvoir d'arrêt nucléaire (collisions élastiques)

Le pouvoir d'arrêt nucléaire est associé aux collisions élastiques entre l'ion incident et les noyaux des atomes de la cible. Ces interactions, décrites par la mécanique classique, se

traduisent par un transfert d'énergie cinétique qui peut provoquer le déplacement des atomes de leurs sites initiaux. Lorsque l'énergie transférée dépasse une certaine valeur seuil, des défauts structuraux permanents peuvent être créés dans le réseau cristallin. L'interaction est purement coulombienne. Le paramètre qui décrit les interactions ion-atome, est la section efficace du processus collisionne (σ), définie comme la probabilité pour que le projectile cède de l'énergie à une particule-cible lors de son interaction. L'ion incident (d'énergie cinétique initiale E_1 , de numéro atomique Z_1 et de masse M_1) déplace un atome de la cible (de numéro atomique Z_2 et de masse M_2) de son site, en lui communiquant une certaine quantité d'énergie T . Ainsi la section efficace de collision^[Lehm77] s'écrit :

$$\sigma(E_1, T_1) = \pi \frac{M_1 (Z_1 Z_2 e^2)^2}{M_2 T^2 E_1} \quad (\text{I.1})$$

Où $e^2 = 1.44 \times 10^{-7} \text{eV} \cdot \text{cm}^{-1}$

L'énergie perdue par collisions nucléaires par l'ion le long de son parcours s'écrit alors :

$$\left(- \frac{dE}{dx} \right)_n = \int_{T_{min}}^{T_{max}} T \sigma(E_1, T) dT \quad (\text{I.2})$$

Où :

- N : nombre d'atomes de la cible par unité de volume.
- T_{min} : énergie minimale introduite afin d'éviter la divergence de l'intégrale.
- T_{max} : énergie maximale transférée lors d'un choc frontal, définie par l'équation suivante :

$$T_{max} = 4 \frac{M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} E_1 \quad (\text{I.3})$$

L'expression du pouvoir d'arrêt nucléaire après intégration devient alors :

$$\left(- \frac{dE}{dx} \right)_n = 2 \pi N \frac{M_1 Z_1^2 Z_2^2}{M_2 E_1} e^4 \ln \frac{T_{max}}{T_{min}} \quad (\text{I.4})$$

1.1.2 Pouvoir d'arrêt électronique (collisions inélastiques)

Le pouvoir d'arrêt électronique résulte des collisions inélastiques entre l'ion incident et les électrons du matériau. Dans ce cas, l'ion interagit simultanément avec plusieurs électrons liés, leur transférant une partie de son énergie. Ces électrons secondaires (électrons δ)

peuvent parcourir plusieurs centaines de nanomètres à partir de la trajectoire initiale de l'ion, entraînant une redistribution de l'énergie dans le matériau^[Gerv93]. Trois régimes de vitesses peuvent être distingués : haute, intermédiaire et basse, chacun étant régi par des lois spécifiques. Ils sont définis par rapport à la quantité $Z_1^{2/3} V_0$ (Fig. I.1).

Où V_0 est la vitesse de Bohr ($V_0 = \frac{e^2}{h} = 2.2 \times 10^8$ cm/s = 25 keV/uma) et Z_1 est le numéro atomique de l'ion incident. En considérant V_1 comme la vitesse du projectile, il existe 03 types de domaine des vitesses :

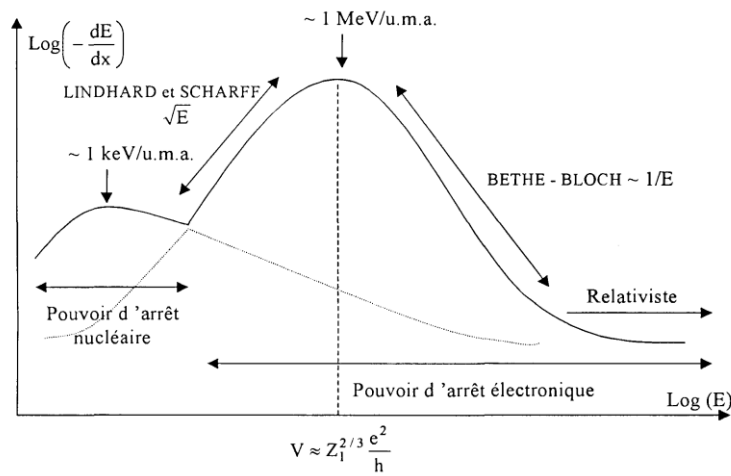


Fig. I.1 : Schéma présentant le pouvoir d'arrêt en fonction de l'énergie des projectiles. A basse énergie, le pouvoir d'arrêt nucléaire est dominant.

I.1.2.1 Domaine des grandes vitesses : $V_1 \gg Z_1^{2/3} V_0$

Dans ce régime, le projectile est rapidement totalement dénudé de ses électrons et interagit avec les électrons de la cible via un potentiel purement coulombien (interaction de type Rutherford). Le pouvoir d'arrêt s'exprime alors selon la formule de Bethe^[Beth33] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_n = \frac{4\pi e^4 Z_1^2 Z_2 N}{m_e v_1^2} \ln\left(\frac{2m_e v_1^2}{I}\right) \quad (\text{I.5})$$

$Z_2 N$: est la densité électronique de la cible, avec N le nombre d'atomes par unité de volume,

- m_e est la masse de l'électron,

- V_1 est la vitesse du projectile,
- \hat{I} correspond au potentiel moyen d'ionisation. Son calcul est complexe. Mais, il existe des formules semi-empiriques^[Zieg80], comme \hat{I} [eV] $\approx 10 Z_2$, qui donnent une bonne estimation (Fig. I.2).

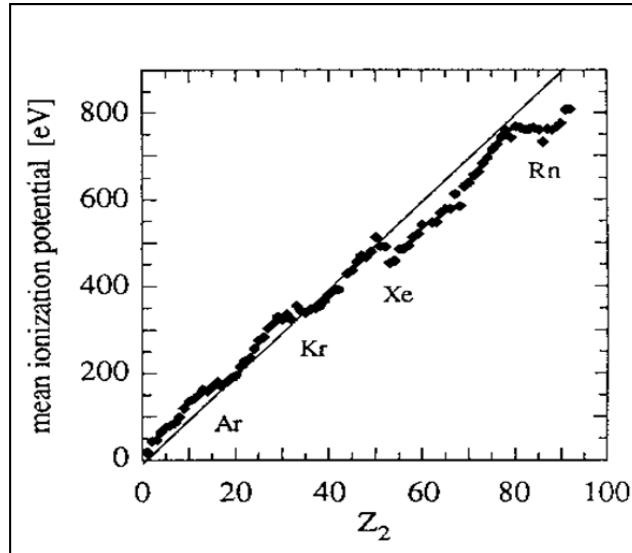


Fig. I.2 : Le potentiel d'ionisation moyen I en fonction de la charge Z_2 de plusieurs atomes^[Zieg80]. La droite correspond à $\hat{I} = 10 Z_2$.

Dans ce domaine, la perte d'énergie varie approximativement comme :

$$\frac{Z_1^2 \ln E_1}{E_1} \approx \frac{Z_1^2}{V_1^2} \quad (\text{I.6})$$

avec E_1 l'énergie initiale du projectile.

Le rapport $\frac{Z_1^2}{v_1^2}$ est connu sous le nom de paramètre de Sommerfeld ou paramètre de perturbation. Il en résulte que la perte d'énergie diminue lorsque l'énergie du projectile augmente.

I.1.2.2 Domaine des vitesses intermédiaires ($V_1 \approx Z_1^{2/3} V_0$)

Dans cette gamme de vitesses, les phénomènes de capture électronique deviennent compétitifs avec les processus d'ionisation. L'ion incident n'est alors plus totalement dénudé : il capture certains électrons de la cible, ce qui réduit sa charge effective. Ainsi, la

charge moyenne de l'ion est inférieure à Z_1 , et le pouvoir d'arrêt électronique devient plus faible que celui prédit par la formule de Bethe pour un ion nu. Dans ce cas, la charge effective de l'ion est donnée par la relation de Barkas^[Bark63] :

$$Z_1^* = Z_1 \left(1 - e^{-125 \beta Z_1^{-2/3}} \right) \text{ où } \beta = \frac{v_1}{c} \quad (\text{I.7})$$

Du fait que Z_1^* diminue avec la vitesse (Fig. I.3), le pouvoir d'arrêt électronique passe par un maximum puis diminue au fur et à mesure que l'écrantage de l'ion est plus efficace

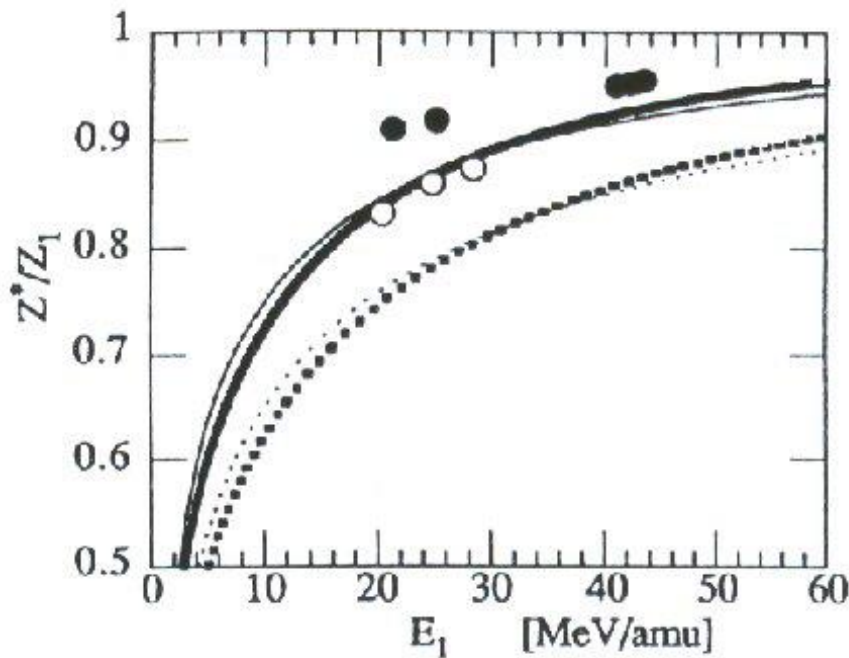


Fig. I.3 : Charge efficace en fonction de l'énergie des ions dans une cible d'aluminium^[Bala92]. Les cercles ouverts représentent les ions Pb et les cercles pleins les ions Xe. Les courbes épaisses correspondent à la formule de Barkas^[Bark63], tandis que les courbes fines suivent l'expression de Huber et al.^[Hube89] (lignes continues pour les ions Xe et discontinues pour les ions Pb).

I.1.2.3 Domaine des basses vitesses ($V_1 \ll Z_1^{2/3} V_0$)

À faible vitesse, l'ion conserve la quasi-totalité de ses électrons. Lors d'une collision avec un atome cible, les nuages électroniques des deux partenaires se recouvrent et forment une quasi-molécule dotée de ses propres états moléculaires. Dans ce régime, seuls les électrons faiblement liés de la cible participent de manière significative à la perte d'énergie de l'ion.

Les travaux de Lindhard, Scharff et Schiøtt^[Lind63] (théorie LSS) ont montré que, dans ce domaine, le pouvoir d'arrêt électronique est proportionnel à la vitesse de l'ion. Plusieurs expressions de la perte d'énergie ont été proposées

- Selon Firsov^[Firs59] (exprimée en [$eV cm^{-1}$]) :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = 5.15 N (Z_1 + Z_2) 10^{-15} \frac{V_1}{V_0} \quad (\text{I.8})$$

- Selon la théorie LSS^[Lind63] (exprimée en [$eV cm^{-1}$]) :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = 8 \pi e^2 a_0 Z_1^{1/6} N \left(\frac{Z_1 Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{2/3}} \right) \left(\frac{V_1}{V_0} \right) \quad (\text{I.9})$$

Où a_0 est le rayon de Bohr ($a_0 = 0.529 \times 10^{-8} cm$).

I.1.3 Comparaison entre pertes d'énergie nucléaire et électronique

Dans le domaine $V_1 \gg V_0$, et en négligeant la variation logarithmique, le rapport entre les pertes d'énergie électronique et nucléaire s'écrit :

$$\frac{\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e}{\left(-\frac{dE}{dx}\right)_n} = \frac{M_2}{Z_2 m_e} = \frac{2 m_p}{m_e} \approx 3700 \quad (\text{I.10})$$

Ce résultat met en évidence que, pour des énergies élevées ($E > 0.1 MeV/u$), les pertes d'énergie sont principalement gouvernées par les collisions électroniques. En revanche, à plus basse énergie, ce sont les collisions nucléaires qui deviennent prépondérantes, comme le montre la figure I.4 pour le cas d'une cible de silice vitreuse irradiée par des ions uranium. Il apparaît donc clairement que la nature dominante des interactions est directement liée à l'énergie et, par conséquent, à la vitesse de l'ion incident.

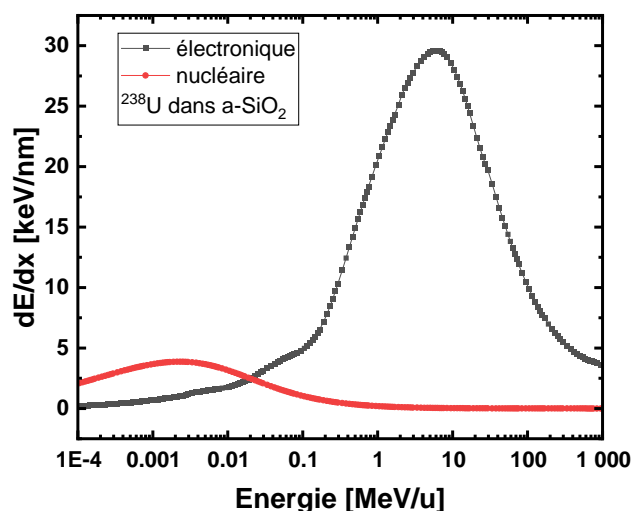


Fig. I 4 : Comparaison entre la perte d'énergie nucléaire et électronique dans le cas des ions Uranium sur α -SiO₂, calculée avec le code SRIM^[Birs80].

I.4 La loi de Bragg et l'évaluation des parcours résiduels

Du fait de ses déviations et de ses pertes d'énergie successives, un ion de nature donnée, d'énergie et de direction initiales déterminées suit, dans la cible, une trajectoire particulière dont la longueur totale définit un parcours réel. A ce parcours, sont géométriquement associés (Fig. I.5) : le parcours projeté R_p qui correspond à la profondeur de pénétration mesurée le long de l'axe orienté suivant la direction du faisceau incident et le parcours transverse R_T qui mesure le déplacement de l'ion dans un plan perpendiculaire à la direction d'arrivée et contenant le point d'arrêt.

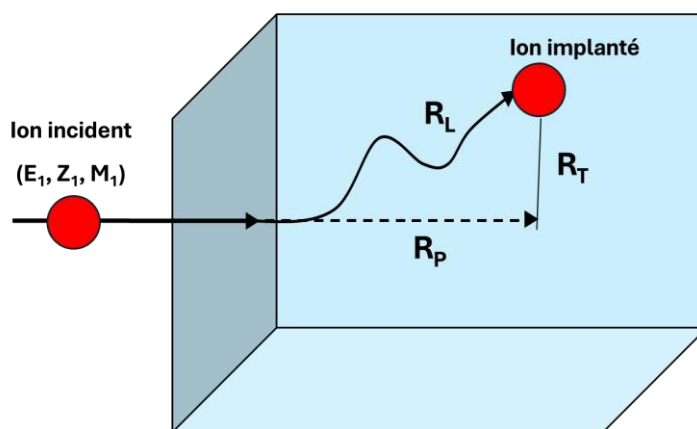


Fig.I.5 : Parcours projeté R_p d'un ion-projectile dans une cible solide

Le paramètre important utilisé habituellement est le parcours moyen projeté qui est approché en intégrant l'inverse de la perte d'énergie totale $\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{total}$ de l'ion :

$$R_p = \int_0^{E_1} \left(-\frac{dE}{dx}\right)_{total}^{-1} dE \quad (\text{I.11})$$

où

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{total} = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_e + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_n \quad (\text{I.12})$$

Pour une cible polyatomique, il suffit de pondérer les pertes d'énergie induites par chaque type d'atome i selon leur densité volumique N_i et leurs masses molaires A_i respectives. On a alors la relation de Bragg. La figure 1.6 montre la variation du parcours projeté de divers ions dans une cible de silice vitreuse en fonction de l'énergie incidente du projectile.

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{total} = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^n N_i A_i \left(-\frac{dE}{dx}\right)_i \quad (\text{I.13})$$

Soit $R_p = M \sum_{i=1}^n \left(\frac{N_i A_i}{R_{p_i}}\right)^{-1}$ avec $M = \sum_{i=1}^n N_i A_i$ (I.14)

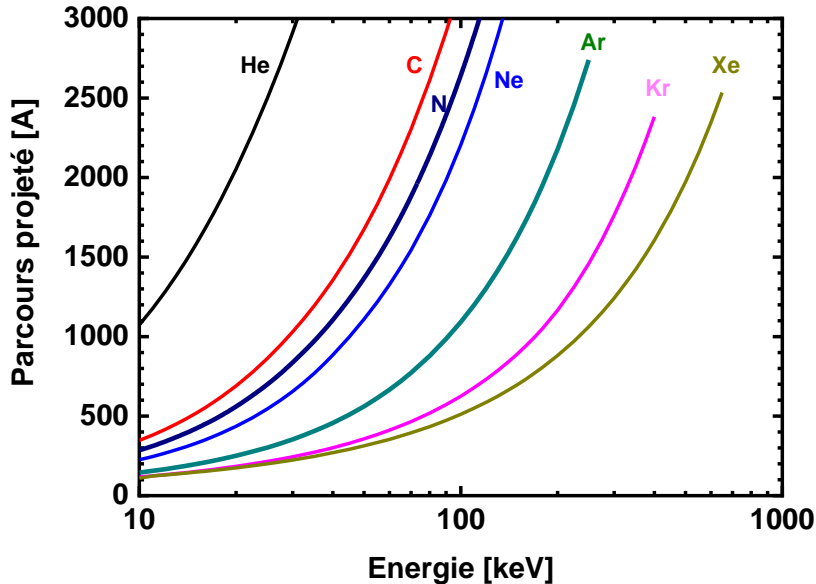


Fig. I.6 : Variation du parcours projeté en fonction de l'énergie pour différents ions incidents dans une cible de silice vitreuse, calculée à l'aide du code SRIM ^[Birs80].

Par souci de commodité, nous ne tiendrons pas compte, dans la suite de ce mémoire, du signe négatif associé aux pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique. Ces grandeurs seront désignées respectivement par $\left(\frac{dE}{dx}\right)_n$ **et** $\left(\frac{dE}{dx}\right)_e$, et sont communément notées de manière usuelle S_n et S_e .

I.5 Création de défauts

Jusqu'à présent, nous avons essentiellement décrit les transformations subies par les ions au cours de leur interaction avec la matière. Il convient maintenant d'examiner les effets produits dans le matériau traversé. Les types de défauts générés dépendent fortement de la nature du solide et de sa structure électronique.

Ainsi, dans les isolants et les semi-conducteurs, les collisions électroniques peuvent induire des modifications structurales, tandis que dans les métaux, l'énergie déposée par les électrons est en grande partie dissipée sous forme de chaleur, sans provoquer de défauts cristallins notables^[Lehm77].

Les défauts créés dans les solides peuvent être classés en deux grandes catégories :

- Défauts ponctuels, tels que les lacunes, les atomes interstitiels ou encore la combinaison des deux, appelée paire de Frenkel.
- Défauts étendus, qui apparaissent suite à l'accumulation d'événements de collisions électroniques multiples et qui se manifestent par la formation de traces latentes.

Plusieurs modèles ont été proposés afin d'expliquer la formation de ces traces latentes dans divers solides (métaux, isolants et semi-conducteurs). Parmi eux, on peut citer :

- le modèle de l'explosion coulombienne^[Flei65, Flei67].
- et le modèle de la pointe thermique^[Toul92].

I.5.1 Création de défauts par collisions élastiques

Les processus élastiques constituent les mécanismes les plus simples à décrire. Lorsqu'un ion incident transfère une énergie cinétique suffisante à un atome cible, celui-ci peut être éjecté de son site. Si l'énergie transférée T est supérieure à l'énergie seuil de déplacement (T_d , comprise entre 10 et 60 eV selon le matériau considéré), l'atome déplacé ne revient

pas immédiatement à sa position initiale. De plus, si l'énergie communiquée est suffisamment élevée, cet atome déplacé peut à son tour éjecter d'autres atomes, initiant ainsi une cascade de déplacements. Le nombre N_d d'atomes déplacés par un noyau primaire ayant reçu une énergie T est décrit par le modèle de Kinchin et Pease^[Kinc55] :

- $N_d = 0$ Si $0 < T < T_d$ aucun déplacement permanent n'a lieu.
- $N_d = 1$ Si $T_d < T < 2 T_d$ l'atome est déplacé en position interstitielle, créant ainsi une paire de Frenkel (lacune + interstitiel).
- $N_d = \frac{T}{2 T_d}$ Si $2 T_d < T$ l'atome éjecté devient à son tour projectile et emporte suffisamment d'énergie générer une cascade de déplacements.

Le programme SRIM^[Birs80] permet de simuler la trajectoire d'un ion dans un solide, ainsi que les déplacements atomiques résultant de son ralentissement.

La section efficace de création de défauts a été calculée par Biersack et al.^[Bier80] :

$$\sigma_{dpa} = \int_{T_d}^{T_{max}} \sigma(E_1, T) N_d(T) dT \quad (\text{I.15})$$

N_d permet de connaître le nombre moyen d'atomes déplacés $\langle N_d (E_1) \rangle$:

$$\langle N_d (E_1) \rangle = \frac{\int_{T_d}^{T_{max}} N_d(T) d\sigma(E_1, T)}{\int_{T_d}^{T_{max}} d\sigma(E_1, T)} \quad (\text{I.16})$$

Il est ainsi possible d'estimer le nombre d'atomes déplacés de leur site initial. Cependant, en raison des phénomènes de recombinaison thermiques et athermiques, ce nombre demeure systématiquement supérieur à celui des défauts réellement stabilisés dans le matériau. Naguib et Kelly^[Nagu75] ont étudié les propriétés intrinsèques des matériaux isolants afin de prédire leur comportement dans le domaine du ralentissement nucléaire. Leurs travaux ont montré que lorsque le caractère ionique des liaisons chimiques dépasse environ 64 %, les matériaux conservent leur structure cristalline sous irradiation (*Fig. I.7*).

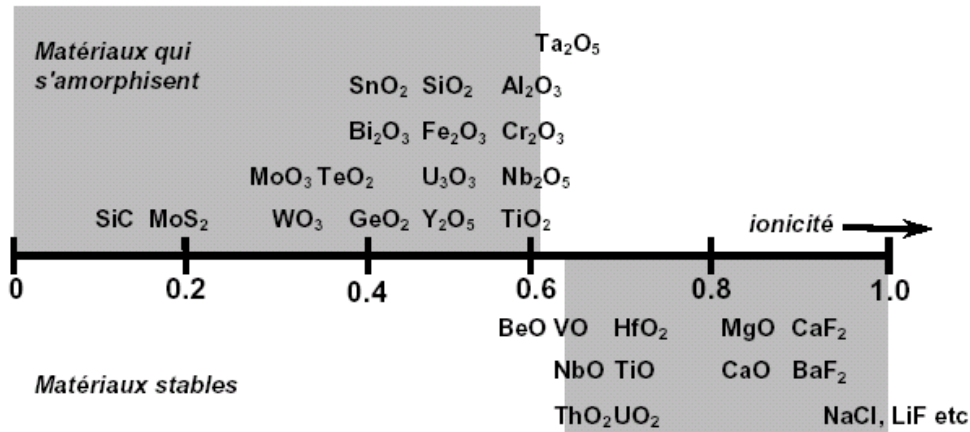


Fig. I.7 : Critère d'ionicité déterminant l'amorphisation des isolants soumis à une irradiation par ions lourds de basse énergie^[Nagu75].

I.5.2 Création de défauts par excitations électroniques

Contrairement aux collisions élastiques, les excitations électroniques donnent lieu à des mécanismes indirects et plus complexes. Dans ce cas, la notion de déplacement atomique perd de sa pertinence, et l'on raisonne plutôt en termes de concentration de défauts.

- Dans les métaux, ces processus jouent un rôle mineur, car l'énergie est rapidement dissipée par conduction électronique.
- En revanche, dans les isolants et les composés organiques, les excitations électroniques sont déterminantes dans la formation de défauts.

La problématique principale est alors de comprendre le retour à l'équilibre dans la région fortement perturbée par le passage de l'ion.

Dans le cas d'ions lourds rapides, les densités d'énergie déposées à proximité de la trajectoire peuvent atteindre plusieurs dizaines de keV/nm³. Ce phénomène entraîne l'éjection de plusieurs dizaines d'électrons par nm³, dotés d'énergies cinétiques de l'ordre de la centaine d'eV. Une telle densité d'ionisation est suffisante pour créer une zone localement et fortement endommagée, connue sous le nom de trace latente.

I.5.3 Effet de la vitesse du projectile sur la création des traces

Le paramètre le plus couramment utilisé pour interpréter la formation de traces latentes est le pouvoir d'arrêt électronique. Cependant, Meftah et al.^[Meft93] ont mis en évidence qu'un autre facteur joue un rôle tout aussi déterminant : la vitesse du projectile.

Leurs travaux ont montré que plus la vitesse de l'ion incident est faible, plus la section efficace d'endommagement est élevée. Cette tendance s'explique par le fait qu'à basse vitesse, l'énergie déposée le long de la trajectoire est plus localisée spatialement, ce qui accroît la probabilité de créer des défauts structuraux.

Un exemple marquant est donné par l'irradiation de cibles avec des ions cuivre et krypton à deux vitesses différentes, mais présentant le même pouvoir d'arrêt (≈ 13 keV/nm) :

- pour le Cu à 0.8 MeV/u, la section efficace mesurée par RBS est de $5.3 \times 10^{-13} \text{ cm}^2$
- alors que pour le Kr à 10.7 MeV/u, elle n'est que^[Meft93] de $1.2 \times 10^{-13} \text{ cm}^2$.

Ces résultats illustrent clairement l'influence de la vitesse sur la localisation de l'énergie déposée et sur la probabilité de création de traces.

De plus, les dimensions des traces latentes varient également avec le pouvoir d'arrêt. Ainsi, pour des irradiations au plomb (Pb) :

- une perte d'énergie de 40 keV/nm peut être atteinte aussi bien pour des énergies de 3.6 MeV/u que de 12 MeV/u ;
- les sections efficaces correspondantes sont respectivement de $11 \times 10^{-13} \text{ cm}^2$ et $8.2 \times 10^{-13} \text{ cm}^2$.

Ces observations confirment que, même à pouvoir d'arrêt identique, la vitesse du projectile reste un paramètre essentiel dans la compréhension des mécanismes de formation des traces latentes.

Par ailleurs, il apparaît que l'évolution de l'endommagement ne peut pas être expliquée uniquement par la perte d'énergie. La distribution spatiale de la dose d'énergie déposée autour de la trajectoire de l'ion joue également un rôle déterminant dans la création, la taille et la morphologie des défauts.

Cette influence a été clairement mise en évidence dans l'oxyde magnétique $Y_3Fe_5O_{12}$ (grenat d'yttrium-fer), où la taille des traces varie selon que l'irradiation s'effectue à basse ou à haute vitesse (Fig. I.8). Meftah et al.^[Meft93] ont ainsi montré que, pour un même pouvoir d'arrêt électronique :

- le rayon effectif des traces (R_e), déduit des expériences à basse énergie, est plus élevé que celui obtenu à haute énergie ;
- le seuil de création de traces est déplacé vers des pouvoirs d'arrêt plus faibles lorsque la vitesse du projectile diminue.

Les caractéristiques des traces latentes dépendent à la fois du pouvoir d'arrêt électronique et de la vitesse de l'ion incident. À pouvoir d'arrêt équivalent, la vitesse influence significativement la taille des traces et le seuil de leur formation. Cet effet de vitesse a par la suite été confirmé dans des polymères comme le polyéthylène et dans des minéraux cristallins tels que le mica^[Lero96].

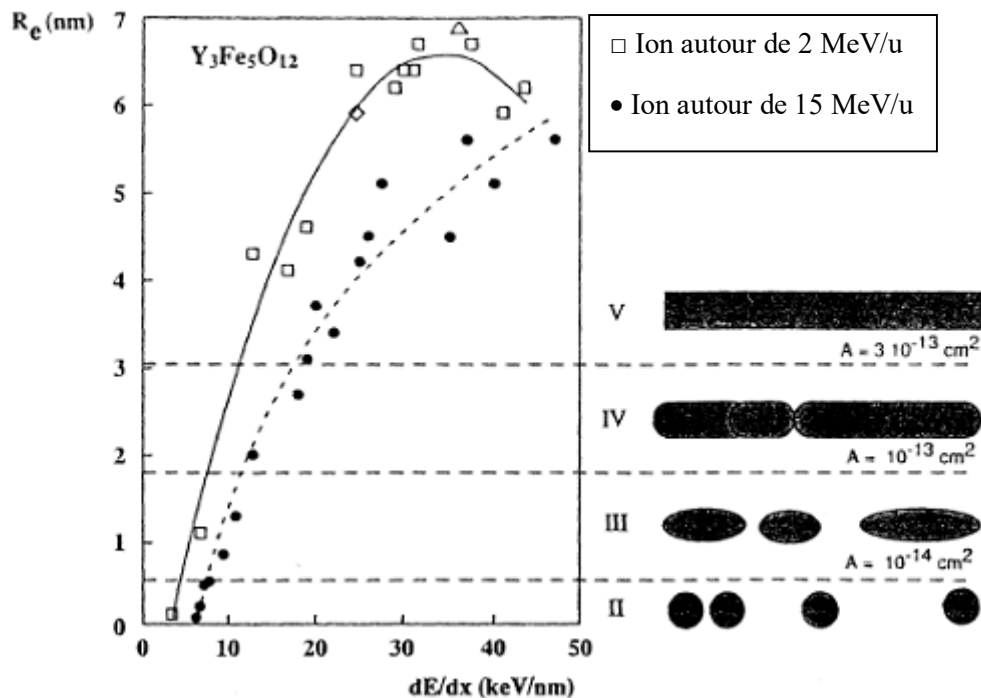


Fig. I.8 : Rayons de trace pour deux vitesses différentes^[Meft93] dans l'oxyde magnétique $Y_3Fe_5O_{12}$ (grenat d'yttrium-fer) et morphologie des traces correspondantes (A représente la section efficace mesurée).

Ces résultats montrent que le pouvoir d'arrêt électronique, bien qu'essentiel, ne constitue pas un paramètre suffisant pour expliquer à lui seul les mécanismes d'endommagement induits par irradiation ionique. Une analyse complète doit prendre en considération non seulement la quantité totale d'énergie déposée, mais aussi sa distribution spatiale et sa localisation le long de la trajectoire du projectile.

Des simulations Monte Carlo réalisées par Gervais et al.^[Gerv93] ont mis en évidence que, pour une même valeur de dE/dx , l'extension radiale du dépôt d'énergie autour de la trajectoire de l'ion augmente avec la vitesse de ce dernier. Il en résulte qu'à basse vitesse, l'énergie déposée par unité de volume à proximité immédiate de la trajectoire de l'ion est plus élevée. Ces travaux ont également montré que, dans les matériaux isolants, la distribution radiale de l'énergie déposée au-delà du cœur de la trace obéit à une loi en r^{-2} (Fig. I.9), r étant la distance radiale ^[GER93, Kobe68, Wali68].

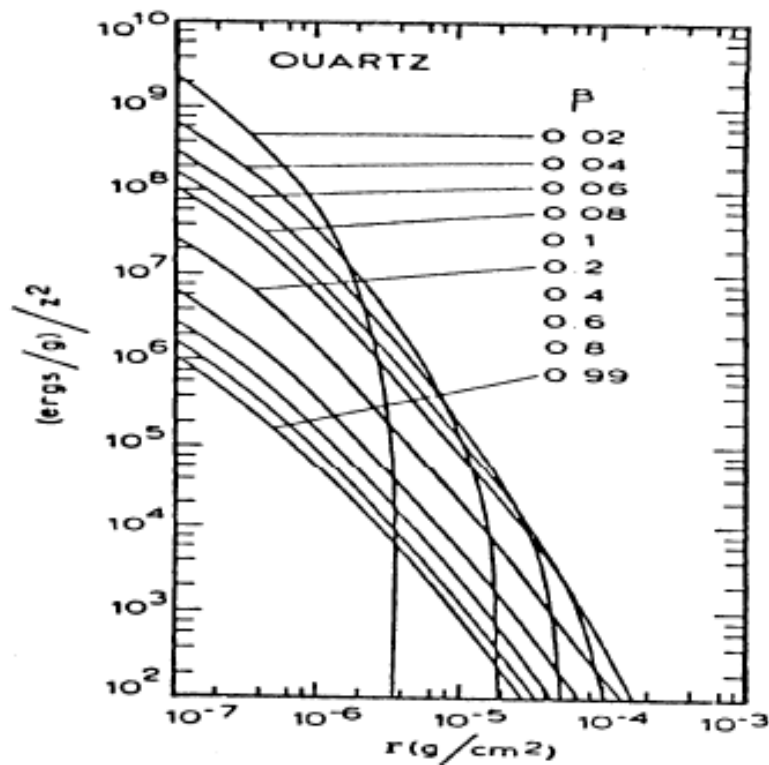


Fig. I.9 : Énergie déposée radialement autour de la trajectoire d'un ion incident par les électrons δ émis dans le quartz, en fonction du rayon r (d'après Kobetich et al.^[Kobe68]). Les courbes sont obtenues pour différentes vitesses réduites du projectile, $\beta = V_1/c$, avec c la vitesse de la lumière.

I.5.4 Les modèles de formation de défauts

I.5.4.1 Modèle de l'explosion coulombienne

Ce modèle, dès 1965 par Fleischer et al.^[Flei65, Flei75], repose sur l'idée qu'un ion de haute énergie, en pénétrant dans un solide, arrache un grand nombre d'électrons le long de sa trajectoire. Il en résulte la formation d'un cylindre chargé positivement, constitué d'ions fortement ionisés. L'accumulation de charges conduit à une répulsion coulombienne intense entre les ions, provoquant une véritable explosion locale (Fig. I.10). Cette instabilité est progressivement atténuée par le retour des électrons, qui assurent l'écrantage du cylindre ionisé.

L'explosion devient effective, c'est-à-dire que les atomes sont réellement déplacés – lorsque deux conditions sont réunies :

- le temps de retour des électrons est supérieur au temps caractéristique d'une vibration atomique ($\sim 10^{-13}$ s),
- la force de répulsion inter-ionique excède les constantes élastiques du matériau (le module de Young étant le paramètre pertinent).

Ainsi, ce mécanisme est favorisé dans les matériaux à faible mobilité électronique et à densité réduite d'électrons libres. Dans ce cas, les ions repoussés quittent la région centrale de la trace, créant des lacunes qui peuvent être occupées par des atomes interstitiels. Après la relaxation de la zone perturbée, il subsiste une région désordonnée, de densité plus faible que celle du matériau initial.

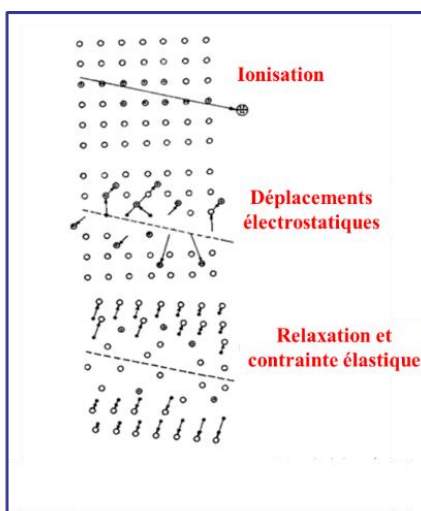


Fig. I.10 : Schéma illustrant le mécanisme de formation des traces latentes selon le modèle de l'explosion coulombienne dans les matériaux inorganiques^[Flei75].

I.5.4.2 Modèle de la pointe thermique

Le modèle de la pointe thermique a été introduit dès 1923 par Dessauer^[Dess23], puis appliqué dès 1956 aux métaux^[Seit56, Lif60] puis aux isolants^[Chad69]. Il a été adapté aux irradiations par ions lourds en 1992 par Toulemonde et al.^[Toul92]. Contrairement au modèle précédent, il considère que l'énergie déposée par l'ion incident aux électrons est rapidement convertie en énergie thermique au sein du système électronique.

Le processus se déroule en plusieurs étapes temporelles (Fig. I.11) :

- excitation électronique et ionisation en un temps extrêmement bref ($<10^{-16}$ s)
- thermalisation de l'énergie entre électrons en $\sim 10^{-15}$ à 10^{-14} s,
- transfert progressif de l'énergie des électrons vers le réseau atomique en $\sim 10^{-13}$ à 10^{-12} s, selon l'intensité du couplage électron-phonon.

Lorsque le dépôt d'énergie électronique est particulièrement intense et que le couplage électron-phonon est fort, une région cylindrique entourant la trajectoire de l'ion atteint temporairement un état quasi-fluide, à l'origine de la formation des traces latentes.

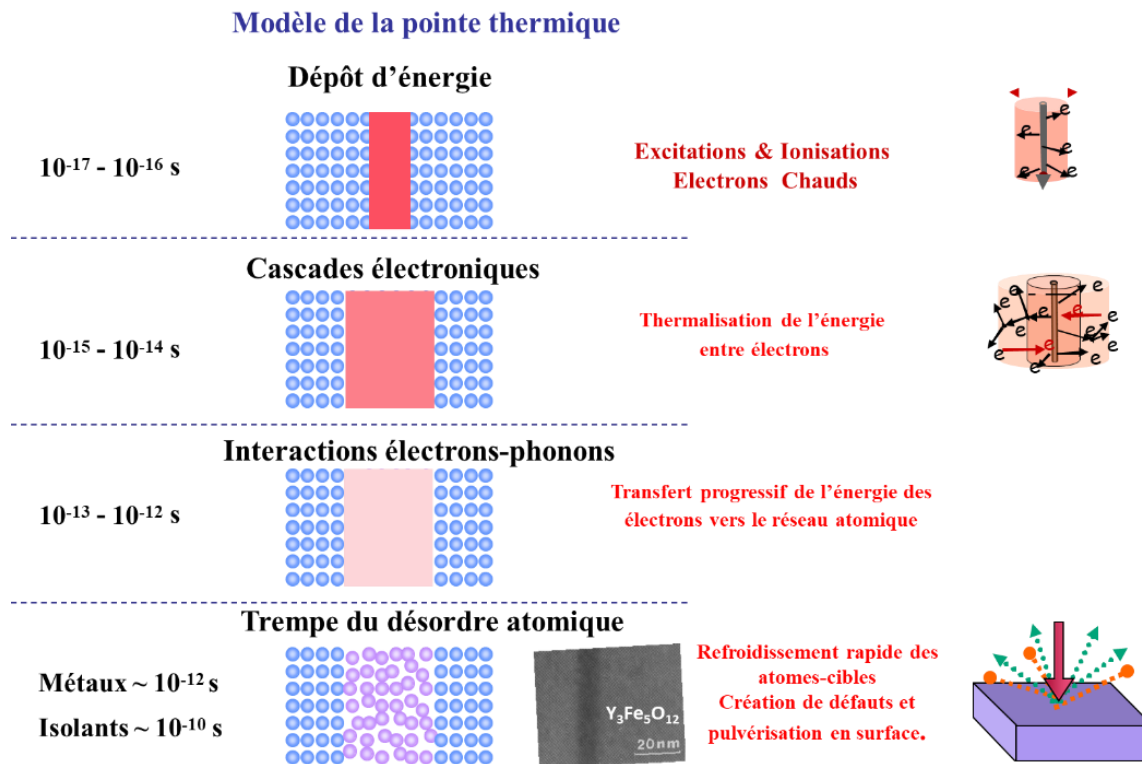


Fig. I.11 : Représentation schématique des étapes successives dans un matériau solide soumis à une irradiation, illustrant le modèle de la pointe thermique^[Toul92].

I.5.4.3 Modèle des Potentiels interatomiques

Les potentiels interatomiques peuvent être modifiés par l'excitation électronique induite lors du passage d'un ion. Ces perturbations, parfois suffisamment marquées, sont susceptibles d'abaisser l'énergie seuil de déplacement des atomes et de modifier leur position d'équilibre, entraînant ainsi un désordre structural. Dans un premier temps, cette réponse supposée du matériau a été étudiée à la surface dans le cadre de la pulvérisation^[Wats85]. Ce modèle a ensuite été repris par Stampfli et collaborateurs^[Stam90, stam96] pour expliquer l'endommagement sous irradiation par ions lourds, en s'inspirant des travaux menés sur l'interaction laser-solide^[Vech79, Waut85].

I.5.4.4 Autres modèles

Divers autres modèles ont été proposés, parmi lesquels le modèle d'onde de choc (*shock wave model*^[Bite87]) et le modèle du cœur de plasma (*core plasma model*^[Ritc82]). Toutefois, il est difficile, voire impossible, d'en dresser une liste exhaustive compte tenu du grand nombre de tentatives visant à décrire l'endommagement. Ces approches ne doivent pas nécessairement être vues comme contradictoires ; elles peuvent au contraire être considérées comme complémentaires^[Schi01], chacune mettant l'accent sur des paramètres physiques distincts. Ainsi Le modèle de l'explosion coulombienne se concentre sur les effets de la répulsion entre ions positifs formés le long de la trajectoire. Bien qu'il soit principalement qualitatif, il permet d'expliquer certaines observations expérimentales, notamment dans les matériaux à faible conductivité électronique. Le modèle de la pointe thermique, en revanche, met en avant le rôle du système électronique excité et fournit une description quantitative du processus. Il permet notamment d'estimer les rayons des traces formées et d'évaluer les seuils énergétiques associés. Les autres approches constituent pour la plupart des situations intermédiaires ou des adaptations de ces concepts.

Conclusion du premier chapitre

*L'étude des interactions ion-matière met en évidence la complexité des phénomènes mis en jeu, dominés par les pertes d'énergie nucléaire à basse énergie et par les pertes électroniques à haute énergie. Ces processus sont à l'origine de différents types de défauts, allant des déplacements ponctuels aux traces latentes, dont la formation dépend non seulement du pouvoir d'arrêt électronique, mais également de la vitesse de l'ion incident et de la distribution spatiale de l'énergie déposée. Les modèles proposés dans la littérature, explosion coulombienne, pointe thermique, potentiels interatomiques ou encore onde de choc, apportent chacun une vision complémentaire des mécanismes d'endommagement. Ils constituent un socle théorique indispensable pour interpréter les résultats expérimentaux. Ainsi, ce chapitre établit le cadre conceptuel nécessaire à l'analyse des modifications structurales induites par irradiation, qui seront étudiées plus en détail dans les chapitres suivants au moyen de techniques expérimentales telles que la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (**FTIR**) et la microscopie à force atomique (**AFM**).*

*Chapitre II : État de l'art sur les
effets de l'irradiation dans la Silice
vitreuse*

Introduction du second chapitre

Dans ce chapitre, nous présentons un état de l'art consacré aux effets de l'irradiation dans la silice vitreuse (α -SiO₂). Après avoir rappelé les propriétés fondamentales de ce matériau, tant sur le plan structural, électronique, physique, chimique qu'électrique, nous mettrons en évidence ce qui distingue ses formes cristalline et amorphe, en insistant sur les particularités de la silice vitreuse, largement utilisée dans les applications technologiques modernes. Cette présentation permettra de comprendre pourquoi le SiO₂ constitue un matériau de choix dans de nombreux domaines, de l'optoélectronique aux technologies nucléaires et spatiales, tout en soulignant l'importance de ses propriétés sous irradiation. L'examen des principaux mécanismes de modification induits par les faisceaux d'ions, qu'il s'agisse de dépôts, de pulvérisation, d'implantation ou encore de nanostructuration, mettra en lumière les processus physiques complexes qui régissent la création et l'évolution des défauts. Enfin, une attention particulière sera portée aux défauts ponctuels et étendus générés dans l' α -SiO₂ sous irradiation, à leur rôle dans les modifications structurales et fonctionnelles du matériau, ainsi qu'aux modèles théoriques proposés pour interpréter ces phénomènes (pointe thermique, explosion coulombienne).

II.1 Caractéristiques du dioxyde de silicium

Le dioxyde de silicium (SiO₂) est un matériau largement utilisé en raison de ses propriétés remarquables : stabilité chimique élevée, indice de réfraction important et transparence dans le visible. Ces caractéristiques en font un composant clé pour les dispositifs optiques et optoélectroniques, les supports électroniques, les amplificateurs optiques intégrés, ainsi que les structures multicouches alternées (TiO₂ – SiO₂) utilisées dans les microcavités à miroirs de Bragg.

La silice peut être cristalline (quartz, tridymite, cristobalite) ou amorphe. Les phases cristallines se distinguent par leurs conditions de stabilité : le quartz est stable en dessous de 867 °C, la tridymite jusqu'à 1470 °C et la cristobalite jusqu'à 1713 °C. Ce polymorphisme résulte de la diversité des arrangements possibles des tétraèdres [SiO₄], tous reliés par des liaisons Si–O–Si particulièrement stables. Le tableau II.1 résume les

caractéristiques différenciant la silice cristalline de la silice amorphe. Dans la silice amorphe, ces tétraèdres sont organisés de manière désordonnée, sans périodicité à longue distance.

Tableau II.1 : Caractéristiques comparatives de la silice cristalline et de la silice amorphe

Caractéristiques	Silice cristalline	Silice amorphe
Structure	Ordonnée, périodique à longue distance	Désordonnée, enchevêtrement aléatoire des tétraèdres [SiO ₄]
Polymorphes principaux	Quartz (≤ 867 °C), Tridymite (≤ 1470 °C), Cristobalite (≤ 1713 °C)	Amorphe (sans phase cristalline définie)
Origine	Naturelle (quartz, sable, minéraux)	Synthétique (dépôt de couches minces, précipitation, fusion rapide)
Surface spécifique	Faible, limitée à la surface géométrique	Élevée, due à la porosité développée
Réactivité chimique	Faible (surface peu active)	Forte (grande surface active et porosité)
Applications	Piézoélectricité, horlogerie, optique (quartz)	Catalyse, adsorption, optoélectronique, microcavités optiques

L'indice de réfraction des couches minces de SiO₂ dépend de leur densité, de leur structure cristalline et de la taille des cristallites. Généralement amorphes après dépôt, ces couches peuvent se transformer en quartz α puis en quartz β lors de traitements thermiques.

Enfin, une distinction essentielle existe entre les formes cristallines et les silices amorphes synthétiques : les premières présentent une surface spécifique limitée, tandis que les secondes, en raison de leur porosité élevée, possèdent une surface beaucoup plus développée, ce qui les rend nettement plus réactives et adaptées à des applications variées en catalyse, adsorption et nanotechnologie.

II.1.1 Propriétés structurales

La silice (SiO_2) se présente sous plusieurs formes allotropiques, caractérisées par une composition chimique identique mais des arrangements atomiques distincts. On distingue principalement (Fig. II.1) :

- La silice cristalline, dont la structure présente un ordre cristallographique à longue distance ;
- La silice vitreuse, marquée par un ordre à courte distance ;
- La silice amorphe, qui se caractérise par une absence d'ordre à longue distance^[Ball86].

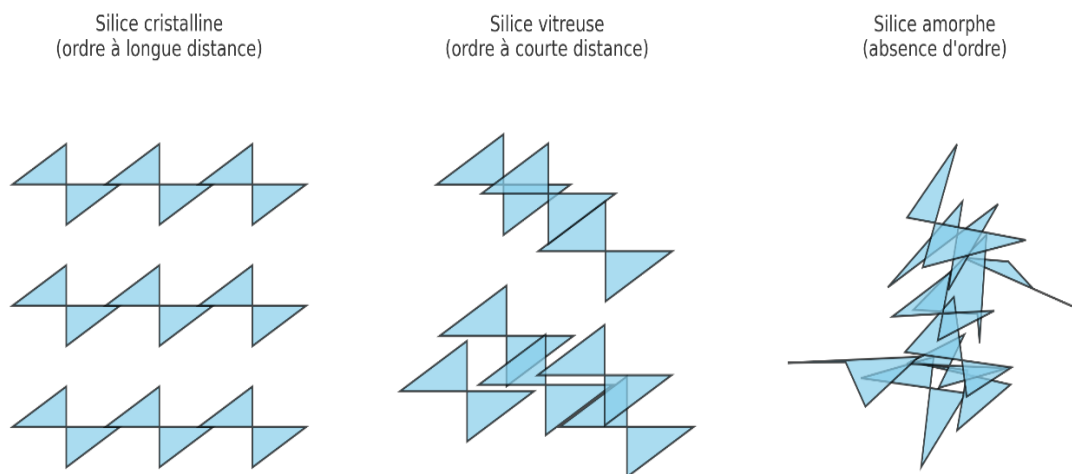


Fig. II.1 : Représentation schématique des différentes formes allotropiques de la silice.

La silice obtenue par oxydation thermique correspond généralement à la forme vitreuse. Toutefois, en l'absence d'un contrôle rigoureux des conditions de croissance de l'oxyde, cette dernière peut évoluer vers une organisation amorphe, moins stable sur le plan structural.

Sur le plan fondamental, l'unité structurale de base de la silice est constituée d'un atome de silicium tétracoordonné, lié de manière covalente à quatre atomes d'oxygène disposés aux sommets d'un tétraèdre [SiO₄]. L'agencement de ces tétraèdres régulier dans le cas cristallin, localement ordonné dans le cas vitré et totalement désordonné dans le cas amorphe conditionne les propriétés physiques et chimiques de la silice, en particulier sa densité, sa stabilité et son indice de réfraction.

La compréhension de la structure du dioxyde de silicium amorphe ($a\text{-SiO}_2$) repose principalement sur les travaux précurseurs de Zachariasen^[Zach32]. Celui-ci a formulé l'idée que la distinction essentielle entre un réseau cristallin et un réseau vitreux réside dans la présence de symétrie et de périodicité dans le premier, et leur absence dans le second. Selon lui, le verre peut être décrit comme un réseau aléatoire continu (*Continuous Random Network*), dans lequel les atomes occupent des positions irrégulières, sans équivalence structurale stricte entre eux.

Cette vision a été renforcée par les travaux de Warren^[Warr36], qui a confirmé le modèle de Zachariasen à travers l'analyse des diagrammes de diffraction des rayons X de la silice vitreuse, en appliquant la transformée de Fourier. Ces études ont permis de mettre en évidence l'existence d'un ordre limité à courte distance (*Short Range Order, SRO*), caractérisé par des tétraèdres $[\text{SiO}_4]$ reliés entre eux par leurs sommets, tandis qu'aucun ordre à longue distance (*Long Range Order, LRO*) n'est observé.

Le modèle structural proposé par Zachariasen et confirmé par Warren, souvent désigné sous le nom de modèle de Zachariasen-Warren, a été synthétisé et enrichi par Galeener^[Gale87]. Il constitue encore aujourd'hui une base théorique essentielle pour l'interprétation des propriétés structurales et physiques de la silice amorphe.

Selon le modèle de Tu^[Tu1998], la structure du dioxyde de silicium amorphe ($a\text{-SiO}_2$) correspond à un réseau continu désordonné (*Continuous Random Network*). Chaque atome de silicium est tétracoordonné à quatre oxygènes formant des tétraèdres $[\text{SiO}_4]$ quasi rigides, tandis que chaque oxygène relie deux siliciums. L' $a\text{-SiO}_2$ conserve ainsi un ordre local à courte portée (*SRO*), similaire aux phases cristallines, mais dépourvu de périodicité à longue distance. Cette coexistence d'ordre local et de désordre global, illustrée à la figure II.2, explique ses propriétés physiques et optiques particulières.

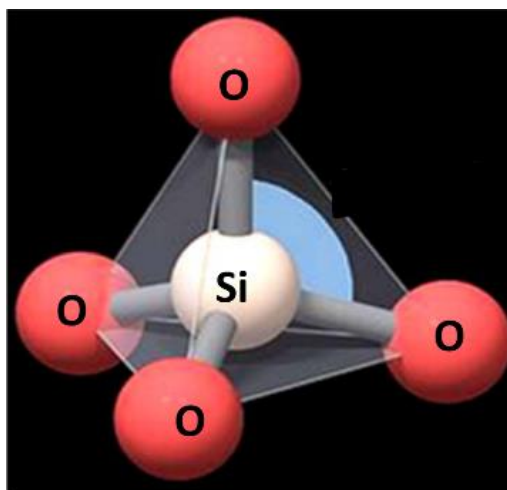


Fig. II.2 : Structure cristallographique de la maille élémentaire de la silice.

La nature amorphe du dioxyde de silicium résulte de l'orientation aléatoire des liaisons dans le réseau. La distance moyenne Si–O est de 1.61 Å, avec de faibles variations, tandis que l'angle Si–O–Si, généralement proche de 145°, peut fluctuer entre 100° et 170°. Cette dispersion engendre une distribution désordonnée des tétraèdres $[SiO_4]$ (Fig. II.3), organisés en cycles fermés –Si–O–Si–O– de tailles variables, comprenant de 3 à 8 atomes de silicium^[Novi91].

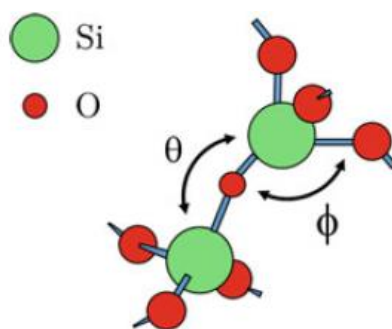


Fig. II.3 : Représentation schématique de deux tétraèdres $[SiO_4]$ mettant en évidence les angles θ et ϕ définis entre les liaisons interatomiques.

II.1.2 Propriétés électroniques

La structure électronique du dioxyde de silicium amorphe présente de fortes similitudes avec celle de la silice cristalline. Il s'agit d'un isolant robuste, caractérisé par des liaisons mixtes iono-covalentes particulièrement stables et par une large bande interdite, évaluée à environ 8.9 eV. Cette configuration confère à l'a-SiO₂ ses excellentes propriétés d'isolant électrique et optique.

Le diagramme de bandes du SiO_2 décrit les niveaux d'énergie accessibles aux électrons dans un matériau. Il découle directement de la théorie des bandes, elle-même fondée sur la combinaison des orbitales atomiques. Le premier diagramme de bandes du système Si- SiO_2 a été obtenu par Williams à partir de mesures de photoémission^[Will65]. Ce schéma, présenté ci-dessous (Fig. II.4), constitue une référence fondamentale pour la compréhension du comportement électronique de la silice.

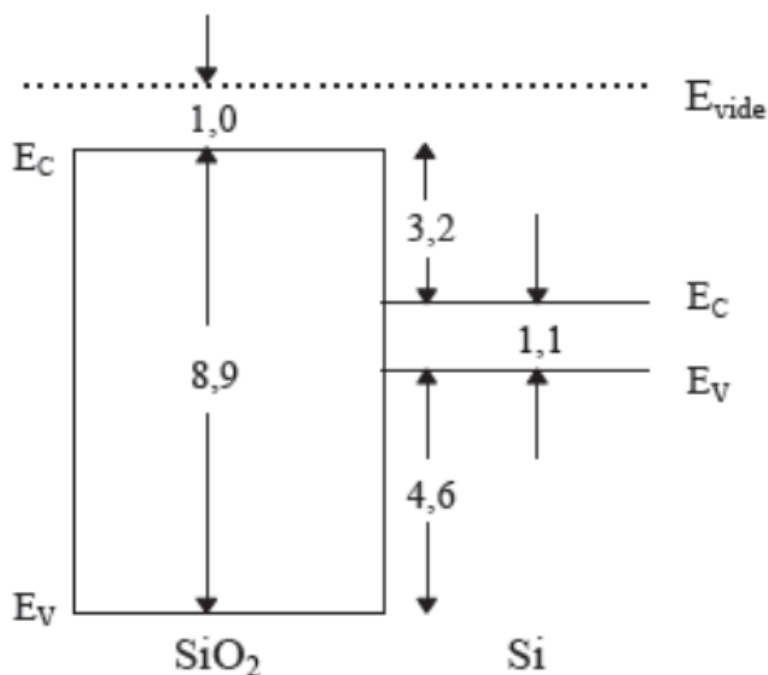


Fig. II.4 : Diagramme de bandes du système Si- SiO_2 , obtenu par Williams^[Will65] à partir de mesures de photoémission.

À la lecture de ce diagramme, on observe que la bande interdite du dioxyde de silicium est particulièrement large (~8.9 eV), comparée, par exemple, à celle du nitrure de silicium (Si_3N_4), dont la valeur est de 5.1 eV. Cette grande largeur de bande est directement responsable du caractère fortement isolant du SiO_2 . Par ailleurs, les hauteurs de barrière auxquelles sont soumis les porteurs de charge se révèlent élevées : environ 3.2 eV pour les électrons et 4.6 eV pour les trous. L'oxyde se trouve ainsi efficacement protégé contre les phénomènes d'injection de porteurs, en particulier celle des trous. Ces résultats sont en accord avec les observations expérimentales^[Wein74] de séparation de porteurs réalisées dans le SiO_2 .

II.1.3 Propriétés physiques

Les propriétés physiques du dioxyde de silicium dépendent fortement de sa morphologie et de sa texture. Sa surface spécifique, déterminée par la méthode BET, peut varier de 2 à 15000 m²·g⁻¹ selon la forme de la silice, tandis que sa porosité microporeuse (< 2 nm), mésoporeuse (2-50 nm) ou macroporeuse (> 50 nm) conditionne directement l'accessibilité et la densité des groupes silanols en surface. La viscosité des suspensions de silice augmente avec l'introduction de particules colloïdales, modifiant leurs propriétés rhéologiques. Par ailleurs, la silice se caractérise par une grande dureté, conférant des propriétés abrasives et renforçantes exploitées dans de nombreuses applications mécaniques. Enfin, la taille de ses particules primaires varie de quelques nanomètres à 500 nm, celles-ci pouvant s'agglomérer en agrégats atteignant plusieurs dizaines de micromètres.

II.1.4 Propriétés chimiques

À température ambiante, la forme cristallisée la plus stable du dioxyde de silicium est le quartz α , l'une des variétés polymorphes de la silice. L'étude de la chimie du quartz nécessite de prendre en compte la spéciation des impuretés chimiques présentes dans le cristal. Ces impuretés, qu'elles soient isolées ou liées à d'autres espèces, peuvent s'intégrer dans trois environnements distincts :

- le réseau cristallin, en substitution ou en interstitiel,
- les inclusions solides ou fluides, emprisonnées au cours de la cristallisation,
- les défauts structuraux et les surfaces, où elles peuvent être adsorbées^[Usna74].

Elles se rencontrent également dans les fractures totales ou partielles, où elles jouent un rôle non négligeable dans les propriétés chimiques, la réactivité de surface et la stabilité du matériau.

II.1.5 Propriétés électriques

Le dioxyde de silicium se distingue par sa résistivité électrique extrêmement élevée, de l'ordre de 10¹⁵ à 10¹⁶ Ω·cm, confirmant ainsi son caractère d'isolant électrique. À température ambiante, sa conductivité thermique et sa diffusivité thermique sont

relativement faibles, respectivement de $0.014 \text{ W}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ et $0.006 \text{ cm}^2\cdot\text{s}^{-1}$, ce qui en fait un matériau à faible dissipation énergétique.

Dans le cadre de ce travail, l'attention sera principalement portée sur les propriétés structurales du dioxyde de silicium et sur leurs évolutions sous déformation, ces aspects étant déterminants pour la compréhension de son comportement sous irradiation et dans diverses applications technologiques.

II.2 Le choix du matériau

Le silicium est l'un des éléments les plus abondants dans la nature, principalement sous forme de silice (SiO_2). Depuis les années 1950, il occupe une place centrale dans le domaine de l'électronique, allant des transistors les plus simples jusqu'aux microprocesseurs les plus complexes, et constitue ainsi la base de l'industrie microélectronique moderne.

Le choix du silicium et de la silice n'est pas fortuit : il découle de leurs propriétés exceptionnelles et de leurs nombreuses applications technologiques. Parmi celles-ci, on peut citer :

- le silicium amorphe (a-Si) : largement utilisé dans la fabrication d'instruments optiques, de dispositifs de laboratoire et de fibres de verre.
- la silice (SiO_2) : considérée comme l'un des meilleurs isolants électriques disponibles. Elle est couramment exploitée dans les circuits à base de silicium grâce à l'oxydation contrôlée des couches superficielles^[Legr02].

Les effets de l'irradiation par ions lourds dans la silice vitreuse (a- SiO_2) revêtent par ailleurs un intérêt particulier en raison de leur impact technologique et scientifique. Ils concernent notamment :

- le développement de verres pour le confinement et le stockage des déchets radioactifs,
- la réalisation de guides d'ondes optiques et de couches minces isolantes pour l'industrie des semi-conducteurs,
- les applications spatiales, où la silice est soumise à l'influence des rayonnements cosmiques,

- l'abaissement de la température de fusion par l'ajout de silice dans certains verres techniques,
- et enfin, un enjeu fondamental : la compréhension des mécanismes de création et d'évolution des défauts dans une structure amorphe préexistante^[Toul11].

II.3 Les procédés de modification des matériaux

La figure II.5 illustre les principaux procédés de modification des matériaux induits par l'interaction avec des faisceaux d'ions. Ces mécanismes dépendent fortement de l'énergie cinétique des ions incidents et de leur mode d'interaction avec la cible.

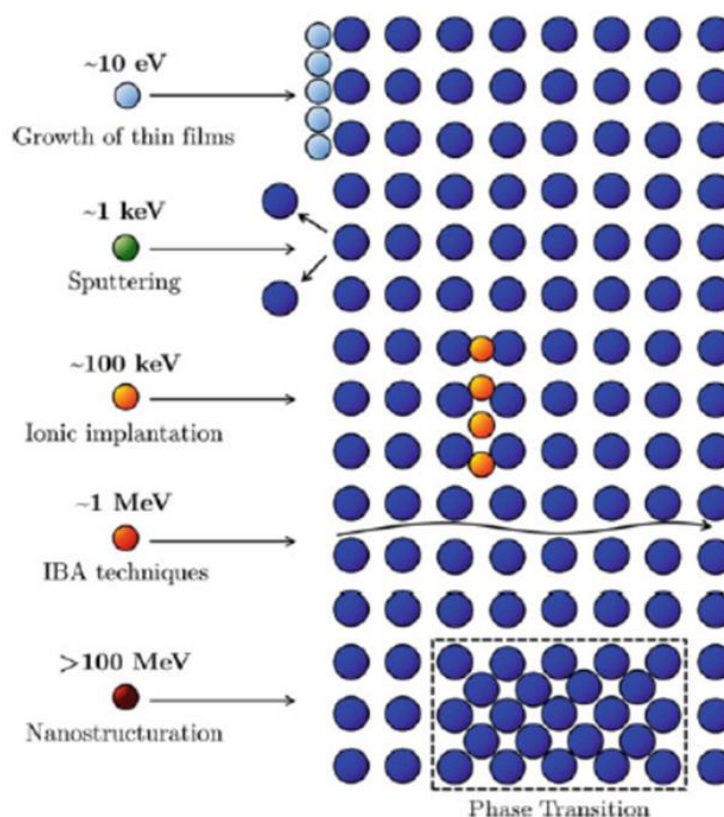


Fig. II.5 : Différents procédés de modification des matériaux en fonction de l'énergie du faisceau ^[Dian18].

II.3.1 Croissance des couches minces

La croissance de couches minces peut être réalisée par bombardement direct d'un substrat par un faisceau d'ions, procédé connu sous le nom de dépôt par faisceau d'ions primaire (*Ion Beam Deposition, IBD*) ou de bombardement ionique à basse énergie (*LEIB*). Pour

assurer ce type de dépôt, l'énergie des ions doit se situer entre quelques eV et quelques centaines d'eV. Lorsque l'énergie du faisceau atteint des valeurs plus élevées (quelques keV), d'autres procédés tels que la pulvérisation cathodique ou l'implantation ionique interviennent. Dans ce cadre, les ions sont produits par une source et accélérés vers le substrat grâce à un extracteur, qui leur confère l'énergie cinétique nécessaire.

II.3.2 Pulvérisation ionique

Lorsque l'énergie d'un faisceau d'ions est de l'ordre de quelques keV, les atomes situés à la surface de la cible peuvent être arrachés et éjectés dans diverses directions. Ce phénomène, appelé pulvérisation ionique, est exploité pour la déposition de films minces, la gravure de surfaces ou encore certaines méthodes d'analyse. Le processus peut être induit par des faisceaux issus d'une source d'ions, mais également par des plasmas, accélérateurs de particules ou matières radioactives. Lorsque la pulvérisation est utilisée pour déposer des films minces sur un substrat, on parle de dépôt par faisceau d'ions secondaires ou de dépôt par pulvérisation ionique^[Voss78].

II.3.3 Implantation ionique

L'implantation ionique constitue l'un des procédés les plus importants en science et ingénierie des matériaux. Elle repose sur la pénétration d'ions dans un solide jusqu'à perte complète de leur énergie. Cette technique est largement utilisée pour introduire des impuretés (dopants) dans les semi-conducteurs^[Goor12, Zieg88], constituant ainsi une étape clé de la fabrication des dispositifs électroniques. Elle permet également la modification ciblée des propriétés physiques, chimiques ou électriques des matériaux, ainsi que la réalisation de guides d'ondes optiques ou d'autres composants fonctionnels.

II.3.4 Techniques d'analyse par faisceau d'ions (IBA)

Pour des énergies de faisceau de l'ordre du MeV, les techniques d'analyse par faisceau d'ions (*Ion Beam Analysis, IBA*) sont utilisées afin de caractériser la composition élémentaire et la structure des matériaux. Ces méthodes non destructives offrent une grande sensibilité et une excellente résolution en profondeur.

II.3.5 Nano-structuration des matériaux

Enfin, l'utilisation d'ions lourds relativistes permet d'induire des transformations de phase et de provoquer une nano-structuration contrôlée des matériaux. Ce type de modification, particulièrement étudié dans le cadre des applications avancées, ouvre la voie à la mise au point de matériaux fonctionnels aux propriétés ajustées à l'échelle nanométrique^[Lang09, Zhan10].

II.4 Effets induits par irradiation dans le SiO₂

II.4.1 Silicium cristallin sous irradiation

Les travaux pionniers de Toulemonde^[Toul89] ont montré que l'irradiation du silicium cristallin par des ions lourds de haute énergie (par exemple Kr et Xe, ~3.5 GeV) peut induire la formation de défauts modifiant de manière significative sa résistivité électrique. Dans ces conditions, les pertes d'énergie sont dominées par le canal électronique, avec une perte d'énergie linéaire S_e comprise entre 3.7 et 14.0 keV/nm. Toutefois, les mesures réalisées par spectroscopie transitoire des niveaux profonds (*DLTS*, *Deep Level Transient Spectroscopy*) ont révélé que le seul dépôt d'énergie électronique ne suffit pas à produire systématiquement des défauts cristallins stables dans le silicium.

Des recherches complémentaires, notamment celles de Levalois et al.^[Leva92], ont exploré l'effet d'irradiations avec divers ions, allant de l'oxygène à l'uranium. Pour ce dernier (3.6 GeV), une perte d'énergie électronique atteignant 23 keV/nm a été rapportée. Cependant, la densité de défauts demeure relativement faible, suggérant un seuil critique de dépôt d'énergie nécessaire à la formation de dommages visibles.

Un résultat particulièrement marquant est celui de Furuno et al.^[Furu96], qui ont mis en évidence la formation de traces latentes dans le silicium lorsque la perte d'énergie électronique atteint 17 keV/nm (ions Au à 207 MeV). En revanche, aucune trace n'est observée pour des pertes plus faibles (12 keV/nm avec des ions In 150 MeV). Ces expériences, menées sur des films minces amorphes d'environ 5 nm préparés par évaporation, ont montré la présence de traces de 7 nm de diamètre, dont la nature physique demeure encore mal comprise.

Contrairement aux ions isolés, les agrégats moléculaires (clusters), possédant une énergie spécifique d'environ 0.05 MeV/u et un dépôt d'énergie électronique supérieur à 30 keV/nm, se révèlent nettement plus efficaces pour générer des traces latentes dans le silicium cristallin. Leur principal atout réside dans la possibilité d'atteindre localement des densités d'énergie bien supérieures à celles produites par des ions individuels. Ainsi, Canut et al.^[Canu98] ont démontré que des agrégats de carbone (30 et 40 MeV) possédant des pertes d'énergie électronique de 48 et 57 keV/nm induisent, près de la surface, la formation de traces latentes de diamètres respectifs 8.5 nm et 10.5 nm, observées par microscopie électronique en transmission (*TEM*). Ces résultats ont été confirmés par Dunlop et al.^[Dunl98], qui ont montré que des agrégats de C₆₀ à 30 MeV ($S_e = 46$ keV/nm) provoquent la formation de régions amorphes d'environ 10 nm de diamètre dans le silicium, et ce indépendamment de l'angle d'incidence (normal ou rasant à 10°). Une relation quasi linéaire a été établie entre le nombre de défauts amorphes et le flux d'agrégats incidents, illustrant l'efficacité remarquable de ce type d'irradiation. La figure II.6 illustre ces observations en présentant trois traces voisines formées dans le silicium suite à une irradiation par des agrégats de C₆₀ (30 MeV), visualisées par microscopie électronique à transmission (*MET*) à haute résolution en incidence normale^[Dunl98].

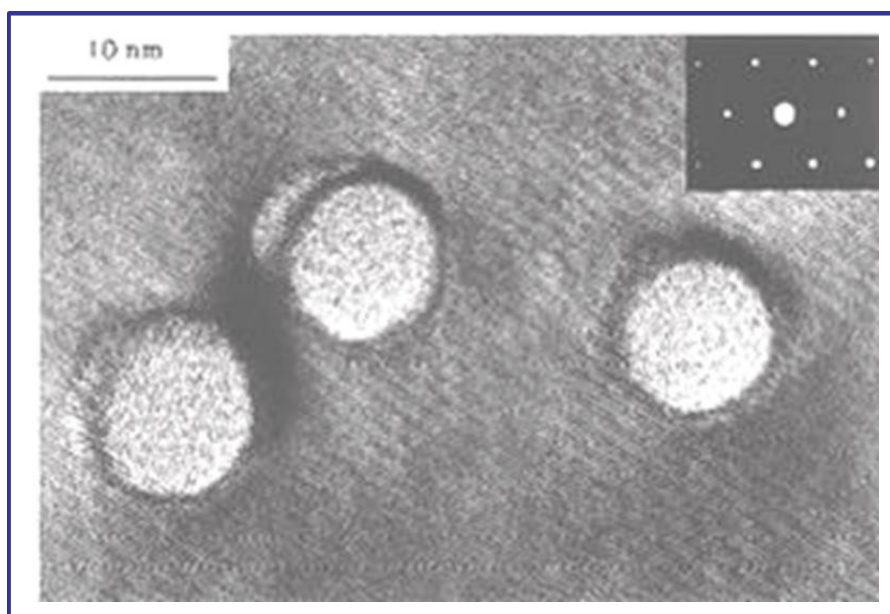


Fig. II.6 : Images MET haute résolution de deux traces voisines créées dans le silicium par irradiation avec des agrégats C₆₀ de 30 MeV, en incidence normale^[Dunl98].

Enfin, une étude théorique basée sur le modèle de la pointe thermique (*thermal spike model*), développée par Wang et al.^[Wang03], a permis de rationaliser ces observations expérimentales. En intégrant un couplage électron-phonon de $1.8 \times 10^{12} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, les simulations reproduisent la formation des zones amorphes observées expérimentalement, confirmant ainsi le rôle déterminant du transfert d'énergie électronique dans les processus d'endommagement du silicium cristallin.

II.4.2 Les défauts créés dans l'*a*-SiO₂

Sous irradiation, comme tout autre matériau, le dioxyde de silicium amorphe (*a*-SiO₂) subit d'importantes modifications de ses propriétés physiques et structurales. Les ions lourds interagissent avec le matériau par deux processus principaux de dissipation d'énergie (voir chapitre I) :

- perte d'énergie nucléaire S_n , liée aux collisions élastiques avec les atomes du réseau ;
- perte d'énergie électronique S_e , associé aux excitations et ionisations électroniques.

Ces transferts d'énergie peuvent engendrer la création de défauts ponctuels ou étendus, affectant directement les propriétés optiques, électriques et mécaniques du matériau.

II.4.2.1 les défauts ponctuels dans l'*a*-SiO₂

L'étude des défauts ponctuels induits par irradiation est d'une importance majeure, notamment parce qu'ils modifient les propriétés optiques de la silice et conditionnent ses applications en optoélectronique, télécommunications et confinement des déchets nucléaires. Ces défauts, souvent appelés centres colorés, entraînent des bandes d'absorption optique supplémentaires qui réduisent la transparence du verre^[Skuj05]. On distingue deux grandes familles de défauts ponctuels :

- défauts paramagnétiques : ils possèdent un électron non apparié (liaisons pendantes) et peuvent être détectés par résonance de spin électronique (*ESR/EPR*) ;
- défauts diamagnétiques : toutes les orbitales sont occupées par des paires d'électrons, ce qui les rend indétectables par *ESR*.

Contrairement au SiO_2 massif, les films minces d' $\alpha\text{-SiO}_2$ déposés sur substrat de silicium ($\alpha\text{-SiO}_2/\text{Si}$) présentent une réponse particulière sous irradiation. Plusieurs études ont montré que l'irradiation peut induire :

- une diminution de l'angle inter-tétraédrique Si–O–Si,
- une rupture des liaisons Si–O, conduisant à la formation de défauts ponctuels tels que les centres E' (liaisons $\text{Si}\cdot$ non saturées) et les radicaux peroxydes^[Busc92].

Busch et al.^[Busc92] ont étudié ces défauts par spectroscopie infrarouge (IR) sur des films de 70 à 120 nm irradiés par ions Xe ($E = 5.9 \text{ MeV/u}$; $S_e = 14.6 \text{ keV/nm}$) et Ni ($E = 10 \text{ MeV/u}$; $S_e = 5 \text{ keV/nm}$). Ils ont observé :

- une diminution du pic associé à la vibration d'élongation Si–O–Si (mode TO_3 , $\sim 1080 \text{ cm}^{-1}$),
- un déplacement de ce pic vers des fréquences plus basses (jusqu'à $\sim 1044 \text{ cm}^{-1}$),
- un élargissement de la bande spectrale (Fig. II.7).

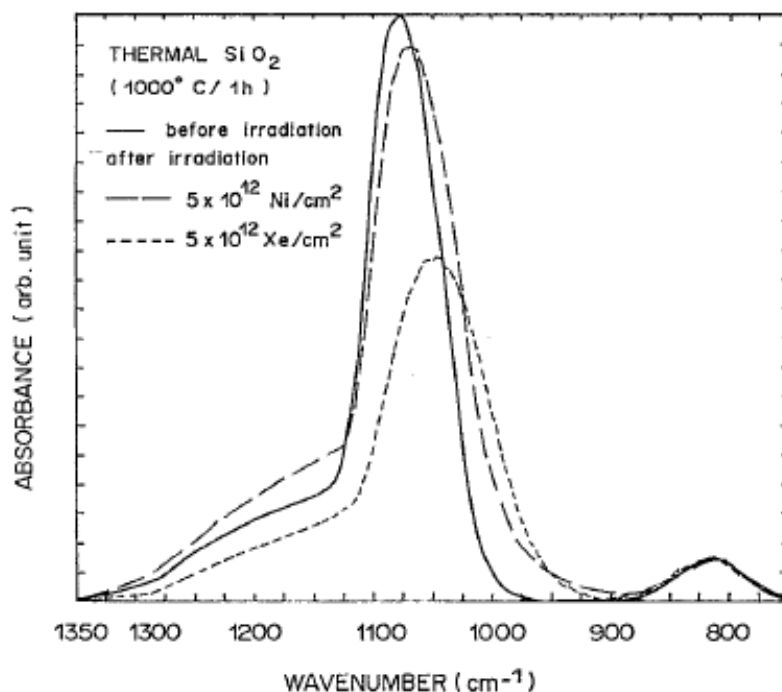


Fig. II.7 : Spectre IR des échantillons $\alpha\text{-SiO}_2/\text{Si}$ vierges et irradiés avec des ions^[Busc 92] Ni ($E=10 \text{ MeV/u}$; $S_e=5 \text{ keV/nm}$) et Xe ($E=5.9 \text{ MeV/u}$; $S_e=14.6 \text{ keV/nm}$).

Ces résultats traduisent à la fois la formation de défauts ponctuels et une distorsion locale du réseau amorphe.

Awazu et al.^[Awaz00] ont confirmé ces observations sur une gamme plus large de pertes électroniques (0.5 - 13 keV/nm). Le mode TO₃ diminue systématiquement en fréquence, indépendamment de la valeur exacte de S_e , ce qui suggère un mécanisme universel lié à la variation de l'angle Si–O–Si et à la formation de lacunes d'oxygène.

II.4.2.2 Défauts étendus dans l'a-SiO₂

Lorsque la densité d'énergie déposée par les ions lourds dépasse un certain seuil critique, les défauts ponctuels (centres E', lacunes d'oxygène, radicaux peroxydes) peuvent évoluer et s'organiser en défauts étendus, modifiant de façon plus globale la structure du dioxyde de silicium amorphe. Ces défauts incluent la densification locale, la formation de zones amorphes à l'échelle nanométrique, ainsi que la création de canaux ou de traces latentes.

II.4.2.2.1 Formation de zones densifiées

Plusieurs travaux ont montré que l'irradiation ionique induit une réduction de l'angle inter-tétraédrique Si–O–Si, accompagnée d'une réorganisation du réseau vitreux. Cette réorganisation conduit à une augmentation de la densité locale du matériau.

- Benyagoub et al.^[Beny92], à partir d'irradiations ioniques, ont quantifié une densification de l'ordre de 3 %, confirmant que les processus induits par irradiation reproduisent partiellement ceux observés sous pression.
- McMillan et al.^[McMi98] ont étudié la réponse du SiO₂ amorphe sous haute pression, montrant que la diminution de l'angle Si–O–Si est corrélée à une densification progressive.

Devine^[Devi93] a étudié la dépendance du mode TO₃ sous pression et température, montrant que sa variation est directement corrélée à la modification de l'angle Si–O–Si. Une diminution de cet angle entraîne une densification locale du réseau. Toutefois, les valeurs de densité obtenues par spectroscopie IR (variation ~12 %) diffèrent de celles mesurées par d'autres techniques (Benyagoub et al.^[Beny92] : ~3 % ; McMillan et al.^[McMi98] sous différentes pressions). Cela indique que le décalage du mode TO₃ résulte d'un processus complexe, combinant densification et réarrangements structuraux.

II.4.2.2.2 Formation de traces latentes amorphes

Au-delà d'un certain seuil de pouvoir d'arrêt électronique (Se), les ions lourds rapides induisent la formation de traces latentes cylindriques, caractérisées par des zones amorphes et densifiées. Meftah et al.^[Meft94] ont mis en évidence, par microscopie électronique en transmission (*TEM*), l'existence de telles traces amorphes dans le quartz (Fig. II.8), générées suite à l'irradiation par des ions Pb de 0.3 MeV/u ($Se \approx 14$ keV/nm). La région blanche observée sur l'image correspond à une zone amorphe de diamètre nanométrique (~5-10 nm) créée au cœur du réseau cristallin. Cette structure résulte d'un processus de fusion localisée suivi d'une trempe ultrarapide, tel que décrit par le modèle de la pointe thermique, et s'accompagne d'une variation de densité estimée à $\Delta\rho / \rho = 15\%$.

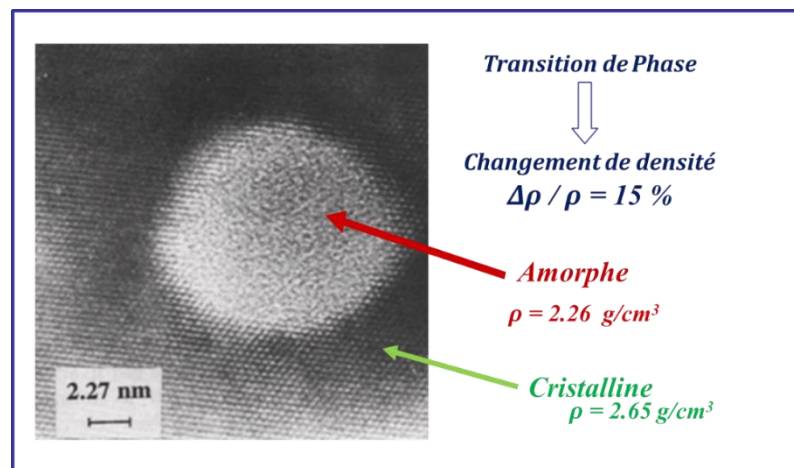


Fig. II.8 : Image de Microscopie Electronique à transmission de haute résolution^[Meft94] pour un fragment amorphe du SiO_2 cristallin après une irradiation avec des ions Pb ($E = 0.3$ MeV/u ($Se \approx 14$ keV/nm)).

La densité d'énergie électronique déposée D_e peut être estimée par la relation :

$$D_e = \frac{0.65 \left(\frac{dE}{dx} \right)}{N_a \pi R d^2}$$

N_a est la densité atomique

R : le rayon effectif de la zone excitée.

Cette approche permet de relier le rayon des traces observées à la densité locale d'énergie. Dans le cas de la silice amorphe, bien que le matériau soit déjà dépourvu d'ordre cristallin

à longue distance, des zones de désorganisation accrue (clusters de lacunes et distorsions structurales) ont été observées et associées à des traces latentes.

II.4.2.3.3 Synergie entre S_e et S_n dans la formation des défauts étendus

Des études récentes ont montré que la formation de défauts étendus n'est pas uniquement contrôlée par le dépôt d'énergie électronique, mais résulte également d'une synergie entre S_e et S_n :

- Toulmonde et al.^[Toul11] ont irradié des films de 104 nm par des ions Au (0.3-14.8 MeV) et observé que l'évolution des bandes IR caractéristiques (diminution de TO_3 à 1078 cm^{-1} et apparition d'un nouveau pic à 1044 cm^{-1}) ne pouvait être expliquée que par une interaction couplée entre excitations électroniques et déplacements atomiques nucléaires.
- Benyagoub^[Beny15] a confirmé que la présence d'un pouvoir d'arrêt nucléaire non négligeable amplifie la création de défauts étendus, suggérant un mécanisme de renforcement mutuel des deux processus de dissipation d'énergie (excitation électronique et déplacements atomiques nucléaires).

II.4.2.2.4 Conséquences des défauts étendus

La présence de défauts étendus dans l'a-SiO₂ a plusieurs conséquences :

- Propriétés optiques : apparition de nouvelles bandes d'absorption, réduction de la transparence dans l'UV et le visible, ce qui limite l'utilisation de la silice irradiée dans les fibres optiques et composants optoélectroniques.
- Propriétés mécaniques : fragilisation locale du matériau due à la densification hétérogène et aux zones amorphes.
- Propriétés électriques : modification de la permittivité locale et augmentation des courants de fuite dans les structures a-SiO₂/Si utilisées en microélectronique.

II.4.2.5 Problématique ouverte

Une question essentielle reste débattue dans la communauté scientifique :

- Existe-t-il un seuil critique de pouvoir d'arrêt nucléaire S_n et/ou électronique S_e au-delà duquel les défauts ponctuels évoluent vers des défauts étendus (zones amorphes, densification) ?
- Quel est le rôle exact de la synergie entre S_n et S_e dans cette transition ?

La réponse à ces questions est cruciale pour le développement de modèles prédictifs fiables et pour la conception de matériaux résistants aux environnements irradiants (technologies nucléaires, spatiales et microélectroniques avancées). La compréhension des mécanismes responsables de ces endommagements est essentielle pour interpréter les résultats expérimentaux et développer des modèles prédictifs. Les deux grandes approches traditionnellement proposées (le modèle de l'explosion coulombienne et le modèle de la pointe thermique) tentent d'expliquer comment l'énergie déposée par un ion lourd est convertie en chaleur, déplacements atomiques, défauts ponctuels et défauts étendus.

Conclusion du second chapitre

Ce chapitre a permis de dresser un panorama détaillé des connaissances actuelles sur les effets de l'irradiation dans la silice vitreuse. Nous avons tout d'abord mis en évidence la richesse structurale et fonctionnelle du dioxyde de silicium, en soulignant la spécificité de sa forme amorphe par rapport aux phases cristallines. Nous avons ensuite décrit les principaux procédés de modification des matériaux sous faisceau d'ions, depuis la pulvérisation jusqu'à la nanostructuration, en insistant sur leur intérêt scientifique et technologique.

L'étude des effets induits dans le SiO_2 a montré que l'irradiation engendre une diversité de défauts, allant des centres ponctuels (E' , lacunes d'oxygène, radicaux peroxydes) aux défauts étendus (densification locale, traces latentes). Ces modifications influencent profondément les propriétés optiques, mécaniques et électriques du matériau, et conditionnent son utilisation dans des environnements extrêmes tels que le spatial ou le nucléaire.

Enfin, nous avons souligné l'importance des interactions synergiques entre pertes d'énergie nucléaire et électronique, ainsi que les débats encore ouverts concernant l'existence de seuils critiques de dépôt d'énergie. Ces problématiques constituent un enjeu majeur pour la modélisation prédictive des dommages d'irradiation et pour le développement de matériaux résistants aux radiations.

Ces éléments fournissent le socle conceptuel nécessaire pour aborder, dans les chapitres suivants, nos propres investigations expérimentales et théoriques sur l'irradiation du dioxyde de silicium amorphe.

*Chapitre III : Dispositifs
expérimentaux*

Introduction du troisième chapitre

Dans ce chapitre, nous présentons les dispositifs expérimentaux mis en œuvre durant ce travail de recherche. L'objectif est de décrire, d'une part, les systèmes d'irradiation utilisés pour soumettre les échantillons aux faisceaux d'ions, et d'autre part, les techniques de caractérisation appliquées afin d'analyser les modifications induites. Une attention particulière sera accordée à la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR), méthode analytique privilégiée pour l'étude des matériaux irradiés. Cette technique, basée sur l'interférométrie de Michelson, permet d'examiner avec grande sensibilité les changements structuraux et chimiques provoqués par l'irradiation. La microscopie à force atomique (AFM) a également été utilisée pour suivre l'évolution de la rugosité des échantillons soumis à l'irradiation. Ainsi, après la présentation des dispositifs d'irradiation et des conditions expérimentales associées, nous aborderons en détail le principe et l'application de la spectroscopie (FTIR) et de la microscopie à force atomique (AFM) pour la caractérisation des échantillons étudiés.

III.1 Les dispositif d'irradiation

Les irradiations des échantillons ont été réalisées à l'aide du dispositif ARIBE (*Accélérateurs pour les Recherches avec les Ions de Basses Énergies*), intégré au GANIL (*Grand Accélérateur National d'Ions Lourds*), situé à Caen (France). Le GANIL, mis en service au début des années 1980, est reconnu comme l'un des plus grands laboratoires internationaux consacrés à l'étude de la physique des ions lourds. Il constitue une infrastructure scientifique de premier plan, gérée conjointement par le CEA (Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives) et le CNRS (Centre National de la Recherche Scientifique).

Les recherches menées au GANIL couvrent un spectre scientifique particulièrement vaste, allant de la physique atomique et nucléaire fondamentale à des applications sociétales comme l'hadronthérapie, la physique des matériaux ou l'astrophysique.

III.1.1 Les accélérateurs du GANIL

Cette installation (Figure III-1) unique en France permet d'explorer de manière systématique une large gamme de dépôts d'énergie, tant électroniques que nucléaires, grâce à ses quatre lignes de faisceaux complémentaires : ARIBE, IRRSUD, SME et HE.

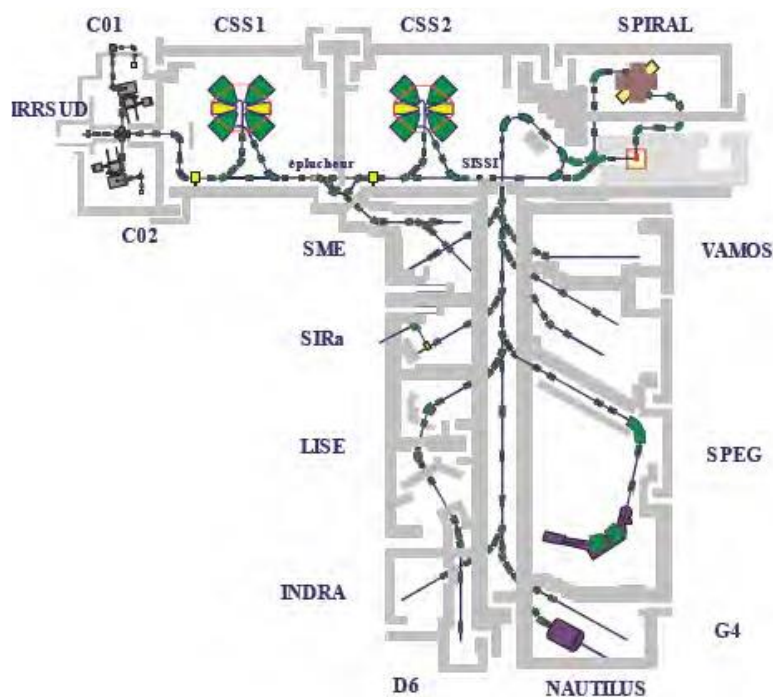


Fig. III.1 : Schéma de principe du GANIL.

Les faisceaux d'ions multichargés sont produits par des sources ECR (*Electron Cyclotron Resonance*), puis injectés dans les cyclotrons C01 ou C02. Après une première accélération, les ions sont envoyés dans le premier Cyclotron à Secteurs Séparés (CSS1), atteignant une énergie d'environ 10 MeV/u. Un éplucheur d'épaisseur contrôlée permet ensuite d'augmenter leur état de charge. Certains faisceaux sont extraits vers la salle D1 (Sortie Moyenne Énergie), tandis qu'un autre état de charge est dirigé vers le CSS2, où les ions atteignent jusqu'à 95 MeV/u.

Le GANIL produit ainsi des faisceaux d'ions allant du carbone à l'uranium, avec des énergies maximales de 95 MeV/u pour le carbone et de 29 MeV/u pour l'uranium. Cette flexibilité en fait une plateforme de référence internationale pour l'étude des interactions ions-matière.

III.1.2 ARIBE

Développé comme une extension stratégique du GANIL, La plateforme ARIBE a été installée au CIMAP (*Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique*) afin d'explorer le domaine des très basses énergies, complémentaire à celui couvert par les faisceaux traditionnels.

Le principe repose sur le ralentissement et l'extraction des faisceaux d'ions lourds produits par le GANIL, afin d'atteindre des énergies comprises entre quelques keV et quelques centaines de keV, bien inférieures aux gammes accessibles habituellement (MeV-GeV). Cette configuration ouvre la voie à l'investigation de processus élémentaires tels que :

- l'implantation contrôlée d'ions dans les solides, nanostructures et couches minces,
- la modification de surface et la fonctionnalisation de matériaux,
- la formation et l'évolution des défauts à l'échelle atomique,
- l'interaction d'ions lents avec des molécules complexes, dans des conditions pertinentes pour l'astrophysique (glaces interstellaires) ou la radiobiologie (dépôts d'énergie nanométriques).

L'installation est dotée de stations expérimentales modulaires, permettant de coupler le faisceau à divers dispositifs de caractérisation *in situ* et *ex situ* (spectroscopie, microscopie électronique, mesures optiques, etc.). Cette flexibilité rend ARIBE particulièrement adapté aux recherches interdisciplinaires, à l'interface entre physique fondamentale, science des matériaux, biophysique et sciences de l'environnement.

Ainsi, par son accès au régime des très basses énergies, ARIBE complète de manière originale l'offre expérimentale du GANIL et renforce les capacités du CIMAP à répondre aux enjeux actuels de la recherche internationale sur les interactions ion-matière.

III.1.3 La plateforme expérimentale

La plateforme ARIBE (*Fig. III.2*) délivre des faisceaux d'ions de basse énergie ($< 0,01$ MeV/u), typiquement de l'ordre de quelques dizaines de keV.



Fig. III.2 : Dispositif ARIBE avec les différentes lignes de faisceaux.

Les ions multichargés sont générés par une source ECR, avec une énergie $E_c = qV$ où V représente le potentiel d'extraction de la source et q la charge du projectile. Après une sélection en charge et en masse, les ions sont dirigés vers les lignes de faisceaux visibles sur la figure III.3. La ligne d'irradiation utilisée est équipée d'un système de balayage vertical et horizontal, ainsi que de fentes permettant à la fois d'homogénéiser spatialement le faisceau, de définir précisément la surface irradiée et d'en contrôler l'intensité.

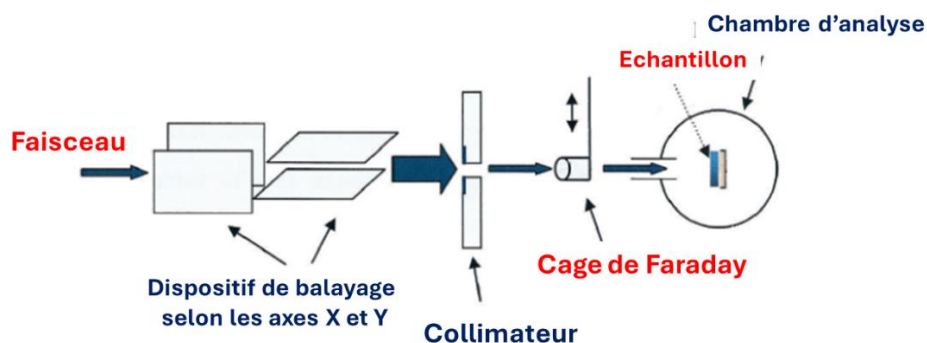


Fig. III.3 : Schéma du dispositif de balayage utilisé pour la normalisation de l'intensité du faisceau d'ions sur ARIBE.

La fluence Φ_{tot} , définie comme le nombre total d'ions incidents par unité de surface, est déterminée par normalisation de la charge accumulée dans le collimateur. Cette charge est mesurée à l'aide d'une cage de Faraday, ce qui permet une évaluation quantitative précise du flux ionique reçu par l'échantillon, selon la relation :

$$\Phi_{tot} = \frac{Q}{qS}$$

où Q représente la charge totale collectée, q la charge élémentaire de l'ion incident, et S la surface irradiée.

Dans le cadre de cette étude, nous avons procédé à l'irradiation de la silice vitreuse à l'aide d'ions des ions azote (N^{5+}) de 75 keV et argon (Ar^{11+}) de 165 keV. Les échantillons sont placés sur des plaques (Fig. III.4) qui peuvent pivoter, dans le but de réaliser des irradiations à différents angles.



Fig. III.4 : Photo du porte échantillon utilisé pour les irradiations.

III.2 La spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier

Après avoir présenté le dispositif d'irradiation, nous abordons dans cette section la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR, *Fourier Transform Infrared*), utilisée pour la caractérisation des échantillons étudiés. La FTIR constitue une technique puissante pour sonder les différents modes de vibration des liaisons chimiques au sein d'un matériau. Elle repose sur l'interaction entre un rayonnement électromagnétique situé dans

le domaine infrarouge et les atomes constituant le matériau étudié. Lorsque la fréquence du rayonnement incident coïncide avec la fréquence propre d'un mode vibratoire caractéristique d'une liaison chimique, une absorption se produit. Cette interaction se traduit dans le spectre infrarouge par l'apparition d'un pic d'absorption, dont la position (nombre d'onde), la largeur à mi-hauteur et l'intensité apportent des informations précieuses sur la nature et l'environnement structural de la liaison concernée.

Il est important de souligner que seules les liaisons hétéropolaires, c'est-à-dire présentant une variation du moment dipolaire au cours de la vibration, sont actives en spectroscopie infrarouge et génèrent des bandes d'absorption. En revanche, les liaisons homopolaires telles que Si-Si, ne modifiant pas le moment dipolaire, restent inactives dans ce domaine.

Les différents modes de vibration observables dépendent des mouvements atomiques relatifs lors de l'excitation vibratoire. Ils peuvent être classés comme suit :

- Élongation (stretching) : vibration le long de l'axe de la liaison, pouvant être *symétrique* ou *asymétrique* ;
- Balancement (wagging/rocking) : mouvement de va-et-vient latéral des atomes ;
- Déformation hors du plan (out-of-plane bending) : vibration perpendiculaire au plan formé par les atomes liés ;
- Cisaillement (scissoring) : mouvement de rapprochement ou d'éloignement latéral des atomes liés ;
- Respiration (breathing) : vibration collective d'un groupement atomique, caractérisée par une expansion et une contraction simultanées.

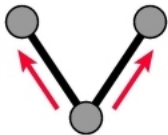
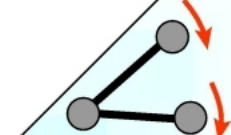
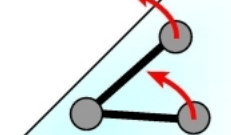
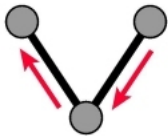
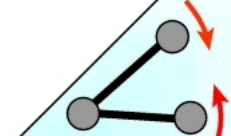
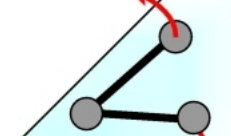
vibrations d'allongement (stretching)	vibrations de déformation (bending)	
	dans le plan	hors du plan
 <p><i>symétrique</i></p>	 <p><i>bascule (rocking)</i></p>	 <p><i>balancement (wagging)</i></p>
 <p><i>asymétrique</i></p>	 <p><i>cisaillement (scissoring)</i></p>	 <p><i>torsion (twisting)</i></p>

Fig. III.5 : Différents modes de vibration

Ainsi, l'analyse spectroscopique infrarouge permet non seulement d'identifier la nature des liaisons chimiques présentes dans un matériau, mais également d'obtenir des indications sur leur organisation structurale et leur évolution sous contrainte externe, telle qu'une irradiation ionique.

III.2.1 Bandes d'absorption infrarouge dans les oxydes de silicium

La silice amorphe ($a\text{-SiO}_2$) présente un spectre infrarouge caractéristique résultant des vibrations internes des liaisons Si–O et des modes collectifs du réseau vitreux. Ces bandes, sensibles à la structure locale, à la présence d'impuretés et aux effets d'irradiation, constituent un outil d'analyse très puissant pour l'étude des modifications structurales

III.2.1.1 Vibrations de l'atome d'oxygène isolé dans le silicium amorphe

Dans la structure amorphe, chaque atome d'oxygène est lié à deux atomes de silicium voisins et peut se déplacer selon trois modes indépendants (Fig. III.6) :

- Élongation symétrique : mouvement simultané des deux atomes de Si par rapport à l'oxygène, dans le plan de symétrie de la liaison Si–O–Si.
- Élongation asymétrique : déplacement de l'oxygène parallèle à l'axe reliant les deux atomes de silicium.
- Balancement : mouvement perpendiculaire au plan formé par le groupement Si–O–Si.

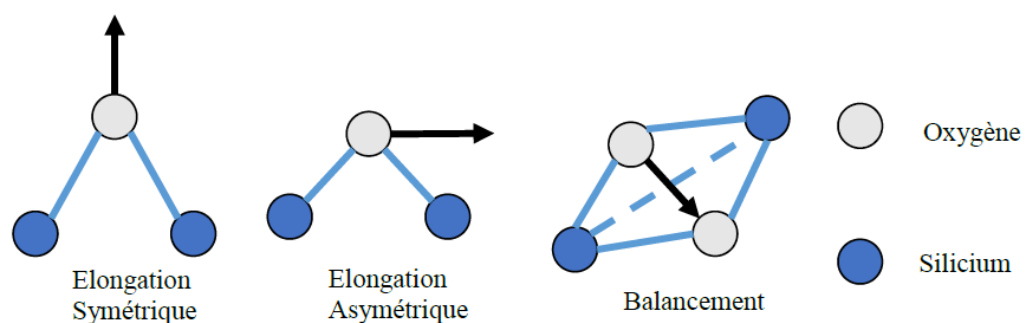


Fig. III.6 : Modes de vibration de l'atome d'oxygène dans la molécule de SiO_2 .

Les positions de ces bandes ont été déterminées expérimentalement dans le silicium amorphe obtenu par évaporation en présence d'un plasma oxygéné. Les bandes d'élongation symétrique et asymétrique apparaissent respectivement à 650 cm^{-1} et 940 cm^{-1} , tandis que le mode de balancement est observé autour de 500 cm^{-1} .

III.3.1.2 Vibrations des tétraèdres SiO₄

Chaque atome de silicium est entouré de quatre atomes d'oxygène formant un tétraèdre SiO₄. Les vibrations internes de ces unités structurales engendrent plusieurs bandes IR caractéristiques :

- Élongation asymétrique Si–O–Si : intense et large, centrée autour de 1100 cm⁻¹, considérée comme la bande la plus représentative du SiO₂ vitreux.
- Élongation symétrique Si–O : observée vers 800 cm⁻¹, traduisant les vibrations collectives du réseau.
- Mode de flexion O–Si–O : situé près de 470 cm⁻¹, lié au mouvement angulaire des oxygènes autour du silicium.

Ces bandes, bien connues et largement étudiées, servent souvent de référence spectroscopique pour identifier la présence et la nature des groupements SiO₄ dans les réseaux vitreux.

III.3.1.3 Modes collectifs du réseau vitreux

Au-delà des vibrations locales, des modes collectifs apparaissent en raison de la connectivité du réseau vitreux. Ils se traduisent par :

- L'élargissement des bandes principales (1100, 800, 470 cm⁻¹), conséquence directe de la distribution désordonnée des angles Si–O–Si.
- L'apparition de bandes secondaires, par exemple à 1230 cm⁻¹, attribuées aux vibrations d'oxygènes non pontants.

Ces caractéristiques spectrales constituent une signature de l'état amorphe de la silice.

III.3.1.4 Influence des impuretés et des dopants

La spectroscopie infrarouge est extrêmement sensible à la présence d'impuretés ou de dopants dans la matrice de silice. Ces éléments perturbent les vibrations locales et collectives du réseau vitreux et introduisent des bandes caractéristiques supplémentaires.

- **Hydrogène (H) :**

L'incorporation d'hydrogène, souvent sous forme de liaisons O–H ou Si–H, entraîne l'apparition de bandes intenses et bien définies.

- Les vibrations d'élongation O–H apparaissent typiquement vers 3500 cm^{-1} ,
- Tandis que les vibrations Si–H sont détectées autour de 2250 cm^{-1} . Ces signatures permettent de mettre en évidence l'hydrogénation des couches minces ou des verres de silice, particulièrement dans les procédés plasma.
- **Azote (N) :**
Le dopage à l'azote conduit à la formation de liaisons Si–N, qui se traduisent par des bandes dans la région de $850\text{--}950\text{ cm}^{-1}$. La substitution partielle des oxygènes par des atomes d'azote modifie également la position et l'intensité des bandes caractéristiques du Si–O–Si.
- **Gaz rares (Ar, He, Ne, etc.) :**
Bien qu'ils ne forment pas de liaisons chimiques directes, les gaz rares incorporés lors de dépôts ou d'irradiations peuvent induire des contraintes mécaniques locales dans le réseau vitreux, entraînant un élargissement ou un décalage des bandes principales (vers le haut ou vers le bas en fréquence).

Ainsi, l'IR permet non seulement d'identifier la structure de base du réseau vitreux, mais aussi de détecter la présence et la nature des impuretés introduites.

III.3.1.5 Effets de l'irradiation ionique

L'irradiation par ions lourds ou légers modifie la structure locale et la connectivité du réseau vitreux de la silice, ce qui se traduit par des changements mesurables dans les spectres IR. Les effets principaux sont :

- **Création de défauts structuraux :** L'irradiation peut rompre des liaisons Si–O–Si, générant des liaisons pendantes ou des groupes non pontants (Si–OH, Si–H). Ces défauts donnent lieu à l'apparition de nouvelles bandes (par ex. Si–H à $\sim 2250\text{ cm}^{-1}$, O–H à $\sim 3500\text{ cm}^{-1}$).
- **Décalages spectraux :** Les bandes principales (1100 cm^{-1} , 800 cm^{-1} , 470 cm^{-1}) peuvent être décalées vers les basses fréquences en raison d'un affaiblissement des liaisons Si–O ou de l'augmentation de la désorganisation locale.
- **Élargissement des bandes :** L'irradiation entraîne une distribution plus large des longueurs et des angles de liaisons Si–O–Si, ce qui se traduit par un élargissement significatif des bandes IR, reflet du désordre structural accru.

- **Formation de nouvelles structures locales :** Des clusters de silicium ou de petites phases cristallines (β -cristobalite, quartz métastable) peuvent se former, introduisant des bandes supplémentaires propres à ces structures.

Ainsi, l'analyse détaillée de l'évolution des spectres infrarouges avant et après irradiation permet de suivre finement les mécanismes d'endommagement, de relaxation et de réorganisation du réseau vitreux.

III.2.2 Principe de fonctionnement du FTIR

La Figure III.7 illustre le principe de fonctionnement d'un spectromètre infrarouge basé sur un interféromètre de Michelson, élément central de la spectroscopie FTIR.

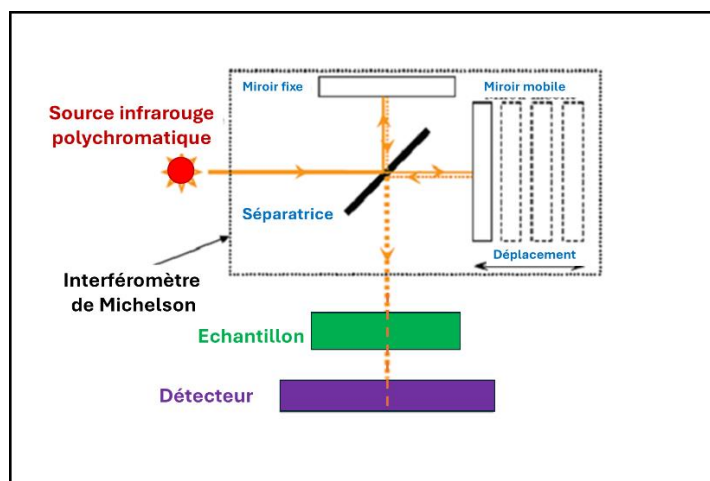


Fig. III.7 : Interféromètre de Michelson

Une source infrarouge polychromatique émet un rayonnement qui est dirigé vers une séparatrice de faisceau (miroir semi-réfléchissant). Celle-ci divise le faisceau incident en deux parties :

- une première partie est réfléchi vers un miroir fixe,
- la seconde est transmise vers un miroir mobile, dont la position peut varier par un système de déplacement contrôlé.

Après réflexion sur les miroirs, les deux faisceaux sont recombinés par la séparatrice et interfèrent, produisant un interférogramme. Ce signal dépend de la différence de chemin optique créée par le déplacement du miroir mobile.

Le faisceau recombinaison traverse ensuite l'échantillon, où certaines longueurs d'onde sont absorbées selon les vibrations moléculaires caractéristiques des liaisons chimiques présentes. Enfin, le signal est détecté par un détecteur infrarouge sensible, qui enregistre l'interférogramme transmis.

Par l'application de la transformée de Fourier, on convertit l'interférogramme en un spectre infrarouge représentant l'intensité absorbée en fonction du nombre d'ondes (cm^{-1}). Ce spectre constitue une véritable empreinte moléculaire du matériau, permettant d'identifier les liaisons chimiques, les groupes fonctionnels et l'organisation structurale du solide analysé.

III.2.3 Système expérimental d'acquisition FTIR

Les spectres d'absorption infrarouge sont acquis sur un spectromètre d'absorption infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) de type *NICOLET iS10* (Thermo Scientific) (Fig. III.8) du laboratoire LRPCS de l'Université de Skikda. Afin d'optimiser la qualité des données, chaque spectre a été enregistré avec une moyenne de 256 balayages, ce qui permet d'améliorer significativement le rapport signal/bruit. La résolution spectrale adoptée est de 1 cm^{-1} , et toutes les mesures ont été effectuées à température ambiante. Les films sont analysés en incidence normale par transmission directe. Les spectres sont enregistrés en mode absorbance, entre 400 et 4000 cm^{-1} .

Les échantillons ont été analysés en incidence normale, choix méthodologique visant à éviter l'apparition des modes longitudinaux susceptibles d'être excités à l'angle de Brewster. Les mesures ont été réalisées ex-situ, c'est-à-dire après irradiation des échantillons.



Fig. III.8 : Spectromètre à Transformée de Fourier de type *NICOLET iS10* de marque *thermo scientifique* (LRPCSI).

III.3 La microscopie à force atomique (AFM)

III.3.1 principe général

La microscopie à force atomique (AFM - Atomic Force Microscopy) constitue l'une des techniques de sonde locale les plus importantes développées au cours des dernières décennies. Dérivée de la microscopie à effet tunnel (STM - Scanning Tunneling Microscopy), cette technique a été inventée en 1986 par Binnig, Quate et Gerber^[Binn86] et s'est rapidement imposée comme un outil incontournable dans de nombreux domaines de recherche

Le succès remarquable de l'AFM s'explique par sa polyvalence exceptionnelle : contrairement aux techniques antérieures, elle permet l'observation d'échantillons conducteurs, semi-conducteurs ou isolants, dans diverses conditions environnementales (air, vide, milieu liquide, atmosphère contrôlée). Cette versatilité a suscité l'intérêt de spécialistes issus de domaines variés, faisant de l'AFM une technique de choix pour l'analyse morphologique détaillée des surfaces à l'échelle nanométrique.

Le principe de fonctionnement de l'AFM repose sur la détection des variations de forces d'interaction entre une sonde de dimensions très réduites et la surface étudiée. Une pointe fine (Fig. III.9), fixée à l'extrémité d'un microlevier flexible (cantilever), balaye méthodiquement la surface de l'échantillon. Les forces s'exerçant entre la pointe et la surface induisent des déflexions du microlevier, qui sont détectées avec une grande précision par un système optique.

L'échantillon est monté sur un tube piézo-électrique permettant des déplacements précis dans les trois directions spatiales. Les variations de force d'interaction, qui fluctuent de point en point, génèrent des variations correspondantes de la déflexion du microlevier. Un système de rétroaction maintient la position du microlevier constante en ajustant la tension appliquée au tube piézo-électrique. Ces variations de tension servent finalement à construire l'image topographique de la surface^[Pier00, Perr97].

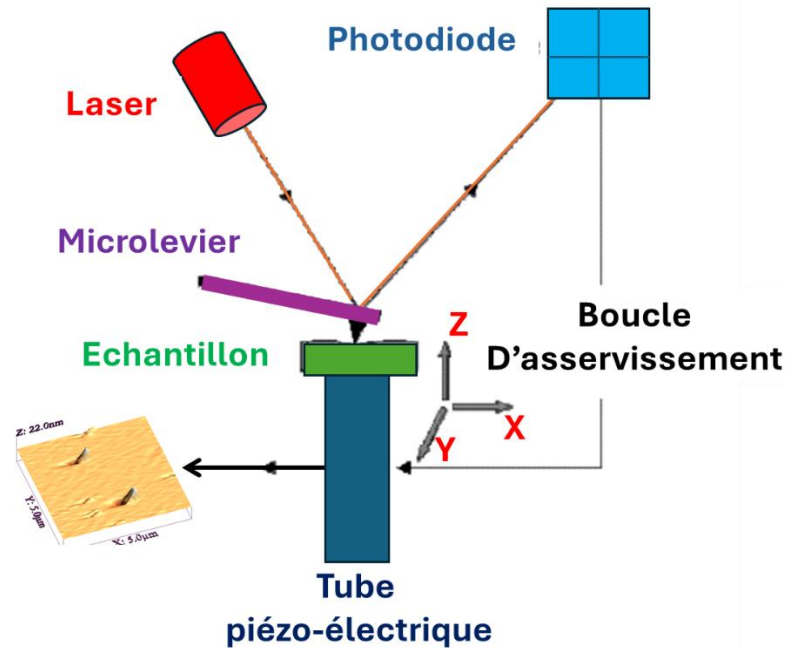


Fig. III.9. : Principe de fonctionnement du microscope à force atomique.

III.3.2 Les interactions pointe-échantillon

La compréhension des différentes forces d'interaction entre la pointe et l'échantillon est cruciale pour une interprétation correcte des données *AFM*. Ces interactions peuvent généralement être décrites à l'aide de potentiels empiriques tels que le potentiel de Lennard-Jones, qui combine une composante attractive à longue portée (proportionnelle à $1/r^6$) et une composante répulsive à courte portée (proportionnelle à $1/r^{12}$).

III.3.2.1 Forces de van der Waals

Les forces de van der Waals trouvent leur origine dans la formation de moments dipolaires instantanés au sein des atomes. Ces moments résultent du décalage entre le centre de gravité des charges positives du noyau et celui du nuage électronique. Dans un solide, les interactions entre ces dipôles électriques génèrent les forces de van der Waals.

Pour la géométrie sphère-plan, couramment utilisée pour approximer l'interaction pointe-échantillon, ces forces s'expriment selon ^[Isra91] :

$$F = -\frac{A R_c}{6 d^2} \quad (\text{III.11})$$

où :

- A représente la constante de Hamaker
- R_c désigne le rayon de courbure de la pointe
- d correspond à la distance de séparation pointe-échantillon

Ces forces attractives à longue portée demeurent efficaces sur une gamme étendue de distances, depuis quelques angströms jusqu'à plusieurs dizaines de nanomètres.

III.3.2.2 Forces répulsives interatomiques

Lorsque la distance pointe-échantillon devient inférieure à quelques angströms, les forces interatomiques deviennent répulsives. À cette échelle, le principe d'exclusion de Pauli interdit le recouvrement des nuages électroniques, empêchant ainsi la pénétration de la pointe dans l'échantillon.

III.3.2.3 Forces capillaires

En conditions ambiantes, la formation d'un microménisque liquide à la surface des échantillons génère des forces capillaires attractives. La pointe traverse cette couche liquide pour approcher la surface, créant un contact qui maintient les objets liés. En assimilant le contact à une géométrie sphère-plan, l'expression^[Wies94] de la force capillaire s'écrit:

$$F = 4 \pi R \gamma \cos\theta \quad (\text{III.12})$$

où :

- R représente le rayon de la sphère
- γ désigne la tension de surface du liquide
- θ correspond à l'angle de contact (nul lorsque la pointe quitte la surface)

Ces forces, pouvant atteindre des valeurs supérieures à 10^{-7} N, risquent de déformer les échantillons fragiles tels que les membranes biologiques. Elles peuvent être évitées en effectuant les mesures sous vide.

III.3.2.4 Forces de friction

Le déplacement relatif entre la pointe en contact et l'échantillon génère des forces de friction parallèles à la surface. Ces forces induisent une torsion du cantilever, mesurable par la déflexion latérale qu'elle provoque^[Mart90]. Particulièrement importantes, elles peuvent parfois dépasser la composante normale de la force et dépendent étroitement du potentiel de surface, permettant ainsi de différencier les matériaux selon leur structure et composition chimique.

III.3.2.5 Forces électromagnétiques

Les forces électrostatiques et magnétiques constituent des interactions à longue portée. Le piégeage de charges électrostatiques dans les matériaux isolants génère des forces électriques, tandis que la présence de matériaux magnétiques donne naissance à des forces magnétiques spécifiques.

III.3.4 Modes opératoires de l'AFM

L'analyse des courbes force-distance révèle l'existence de deux régimes distincts : un régime de forces répulsives (positives) à courte distance et un régime de forces attractives (négatives) à plus grande distance. Ces régimes, décrits par des potentiels de type Lennard-Jones, définissent trois modes opératoires principaux.

Le régime répulsif s'établit à des distances inférieures à 1 nm selon une loi en $1/r^7$, tandis que le régime attractif, dominant à des distances supérieures, suit une loi^[Kit83] en $1/r^{13}$. Cette dualité définit trois modes de fonctionnement : le mode Contact (zone répulsive), le mode Tapping (zone intermédiaire) et le mode Non-Contact (zone attractive).

III.3.4.1 Mode Contact

Dans ce mode, la pointe maintient un contact permanent avec la surface dans le domaine des forces répulsives. Le balayage génère des déflexions du cantilever proportionnelles aux variations topographiques, permettant la construction d'images par mesure de la position verticale de la pointe en fonction des coordonnées horizontales.

III.4.1.1.1 Imagerie à force constante

Ce mode représente la configuration opérationnelle la plus répandue. La déflexion du cantilever est maintenue constante ($F = kZ$, où k désigne la constante de raideur), impliquant une force constante. Le signal de correction verticale UZ , nécessaire pour maintenir cette condition, est enregistré en fonction des coordonnées (X,Y) déterminées par les tensions appliquées aux éléments piézo-électriques. La correspondance UZ (UX, UY) permet finalement de reconstituer la topographie $Z(X,Y)$.

III.4.1.1.2 Imagerie à déflexion variable

Cette configuration maintient la position verticale constante et mesure les variations de déflexion en fonction des déplacements latéraux. Elle s'avère particulièrement adaptée à l'obtention d'images atomiques ou moléculaires sur des échantillons cristallins.

III.4.1.1.3 Microscopie de force latérale

La force de friction latérale induit une torsion du cantilever, détectable par la déflexion latérale du faisceau laser. L'utilisation d'une photodiode à quatre quadrants permet la mesure simultanée des déflexions verticale et latérale, autorisant la cartographie conjointe de la topographie et des variations de friction pointe-surface.

III.3.4.2 Mode Non-Contact

Ce mode utilise des cantilevers caractérisés par une constante élastique élevée et opère dans le régime des forces attractives, avec des interactions significativement plus faibles que celles du mode contact. Cette configuration convient particulièrement aux matériaux fragiles.

La pointe vibre à proximité de la surface sans la toucher, à une fréquence légèrement supérieure à sa fréquence de résonance naturelle, avec une amplitude de quelques nanomètres (< 10 nm). Les forces d'interaction modifient la fréquence de résonance du cantilever. Un système de rétroaction ajuste la hauteur échantillon-pointe pour maintenir soit la fréquence soit l'amplitude de vibration constante, générant les données nécessaires à la reconstruction topographique.

L'imagerie s'effectue préférentiellement sous vide pour éviter les couches adsorbées susceptibles de perturber les mesures. Ce mode peut être étendu à la détection de forces magnétiques (avec des pointes magnétiques) ou à la mesure de capacité électrique (par application d'un potentiel entre pointe et surface).

III.3.4.3 Mode Tapping

Ce mode constitue une variante du mode non-contact utilisant des cantilevers de raideur intermédiaire (20-50 N/m) et des forces d'interaction de l'ordre de 10^{-9} N. La pointe vibre avec une fréquence proche de la résonance (20-400 kHz) et une amplitude importante (20-100 nm), touchant périodiquement la surface.

Le système de rétroaction maintient l'amplitude de vibration constante pendant le balayage. Cette configuration permet l'imagerie d'échantillons fragiles sans déformation significative, la force normale exercée étant estimée entre 10 et 40 nN d'après les calculs^[Khal03] du temps de contact effectif.

III.3.5 Composants instrumentaux

III.3.5.1 Système piézo-électrique

Le positionnement précis s'appuie sur des céramiques piézo-électriques constituées de titanate zirconate de plomb (PZT). Ces éléments permettent des déplacements dans les trois directions spatiales avec une résolution sub-nanométrique, présentant l'avantage d'une déformation proportionnelle à la différence de potentiel appliquée.

Les tubes piézo-électriques (Fig. III.10) développés par Binnig et Smith^[Binn86] intègrent cinq électrodes permettant un contrôle tridimensionnel. Ces systèmes autorisent des déplacements horizontaux de plusieurs dizaines de micromètres et des variations verticales d'une dizaine de micromètres.

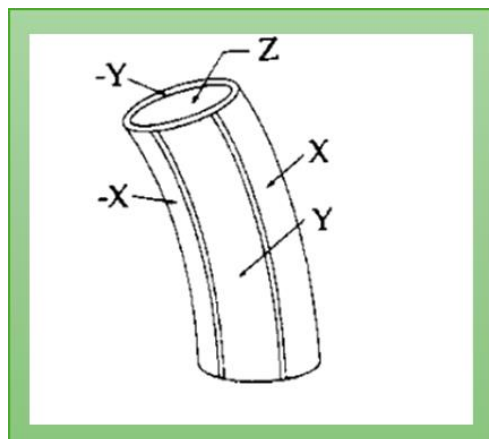


Fig. III.10 : Tube piézo-électrique

III.3.5.2 Pointes et cantilevers

Les performances de résolution dépendent étroitement des caractéristiques de la pointe, qui doit présenter une dureté suffisante pour éviter la déformation et un rayon de courbure minimal. Les cantilevers associés requièrent une fréquence de résonance élevée pour limiter la sensibilité aux vibrations externes.

Les pointes en nitrure de silicium (Si_3N_4), de forme pyramidale avec un angle d'ouverture de 35° et un rayon de courbure de 30-50 nm, conviennent au mode contact. Les pointes silicium, généralement dopées pour éviter les effets de charge, présentent une géométrie conique avec un angle d'ouverture inférieur à 20° et un rayon de courbure sub-décanométrique, optimisant la résolution latérale pour les modes vibrants.

Des pointes spécialisées existent pour des applications spécifiques : pointes métalliques conductrices pour la microscopie électrostatique, ou pointes magnétiques pour la microscopie de force magnétique.

III.3.5.3 Système de détection optique

La mesure de déflexion s'effectue par détection de la déviation d'un faisceau laser réfléchi par l'extrémité du cantilever. Une photodiode segmentée détermine la position de la tache laser : l'analyse de l'éclairement reçu par les différents quadrants, pour une géométrie définie, permet d'accéder aux angles de déflexion et de torsion du cantilever.

Les caractérisations par microscopie à force atomique ont été réalisées à l'aide d'un équipement de marque Herzan (Fig. III.11) du Laboratoire *Chimie ingénierie moléculaire et Nanostructures* (LCIMN) de l'Université Sétif-1.



Fig. III.11 : *Microscope à force atomique utilisé pour les mesures expérimentales réalisées dans cette étude (Laboratoire LCIMN, Université de Sétif-1)*

Conclusion du troisième chapitre

Dans ce chapitre, nous avons exposé l'ensemble des dispositifs expérimentaux mobilisés dans le cadre de cette recherche. Les systèmes d'irradiation décrits jouent un rôle fondamental en permettant d'induire de manière contrôlée des modifications structurales au sein des échantillons étudiés. Par ailleurs, la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) s'est avérée particulièrement adaptée pour analyser ces modifications à l'échelle atomique et moléculaire, grâce à sa grande sensibilité aux vibrations caractéristiques des liaisons chimiques. De plus, la microscopie à force atomique (AFM) a été utilisée pour suivre l'évolution morphologique de la rugosité des échantillons irradiés. La combinaison de ces techniques, alliant irradiation et caractérisation spectroscopique ainsi que morphologique, constitue une méthodologie parfaitement cohérente et complémentaire pour l'étude des matériaux soumis à l'irradiation. Cette approche expérimentale forme le socle solide sur lequel s'appuient les résultats et analyses présentés dans le chapitre suivant.

***Chapitre IV : Présentation et analyse
des résultats***

Introduction du quatrième chapitre

Ce chapitre expose et analyse les résultats expérimentaux et numériques obtenus sur la silice vitreuse (SiO_2) soumise à une irradiation ionique de basse énergie. L'objectif principal est de souligner l'influence distincte des pertes d'énergie nucléaire et électronique, et de relier les modifications observées aux mécanismes physiques sous-jacents.

Dans un premier temps, les conditions expérimentales d'irradiation ainsi que les techniques de caractérisation employées sont rappelées. Une attention particulière est portée à la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR), qui permet de suivre l'évolution des bandes vibrationnelles caractéristiques du réseau vitreux et d'identifier les altérations structurelles induites par les collisions ions-matière. La microscopie à force atomique (AFM) est également mobilisée pour quantifier les variations de rugosité de surface et analyser la morphologie des échantillons avant et après irradiation.

Dans un second temps, les résultats expérimentaux sont présentés puis discutés en détail, avant d'être confrontés aux simulations issues du modèle unifié de la pointe thermique (u -TSM). Cette confrontation favorise une meilleure compréhension des mécanismes de modification de la silice vitreuse et met en lumière le rôle respectif des processus nucléaires et électroniques dans la dynamique d'endommagement.

IV.1. Méthodologie expérimentale

Des films minces de silice vitreuse (SiO_2), d'une épaisseur moyenne de 104 nm et d'une densité massique de 2.2 g/cm³, ont été déposés par procédé thermique sur les deux faces de plaquettes de silicium monocristallin (orientation (100)) d'un diamètre de 5 cm. Les échantillons ont ensuite été découpés en pastilles d'environ 1 × 1 cm² puis irradiés par incidence normale avec des ions N⁵⁺ de 75 keV et Ar¹¹⁺ de 165 keV au sein de la plateforme ARIBE (Accélérateur pour la Recherche avec des Ions de Basse Énergie, CIMAP, GANIL, Caen, France). Le choix de ces ions et de ces énergies s'est appuyé sur des pertes d'énergie nucléaire et électronique comparables obtenues via le code **SRIM**^[Bies80], facilitant ainsi une analyse directe de leurs effets respectifs.

La figure IV.1 illustre l'évolution des pertes d'énergie nucléaire et électronique dans la silice vitreuse irradiée par des ions azote et argon, obtenue à partir de simulations réalisées avec le code SRIM^[Birs80]. La figure IV.2 montre l'évolution des parcours projetés de ces mêmes ions (N et Ar) dans la silice vitreuse, calculée également à l'aide du code SRIM^[Birs80].

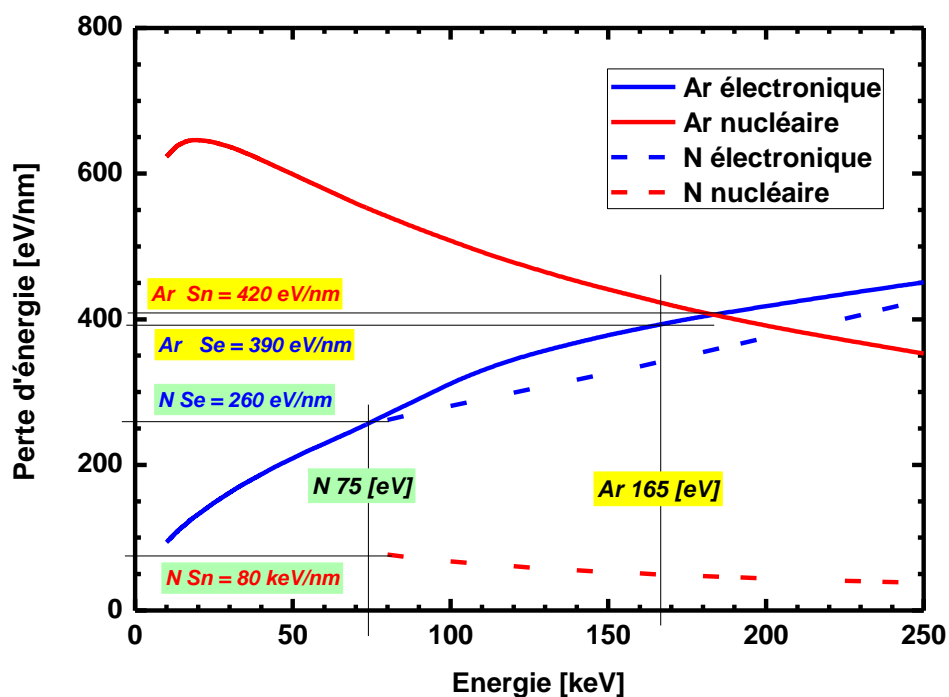


Fig. IV.1 : Variation des pertes d'énergie nucléaire et électronique dans la silice vitreuse irradiée par des ions azote et argon, simulée avec le code *SRIM*^[Birs80].

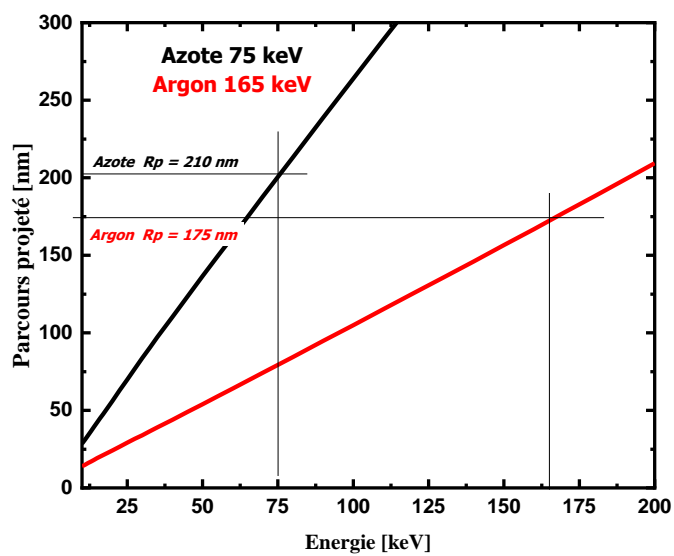


Fig. IV.2 : Variation des parcours projetés des ions azote et argon dans la silice vitreuse, obtenue par simulation avec le code **SRIM**^[Birs80].

Les valeurs estimées des pertes d'énergie sont les suivantes :

- Pour les ions N^{5+} à 75 keV, la perte d'énergie électronique (S_e) est de 260 eV/nm, la perte d'énergie nucléaire (S_n) s'élève à 80 eV/nm, et la portée projetée (R_p) est de 210 nm.
- Pour les ions Ar^{11+} à 165 keV, la perte d'énergie électronique (S_e) atteint 390 eV/nm, la perte nucléaire (S_n) 420 eV/nm, avec une portée projetée (R_p) de 175 nm.

Les flux d'ions variaient entre 1×10^{10} et 6×10^{10} ions/cm²/s, avec des fluences allant jusqu'à 3×10^{15} ions/cm². Les modifications structurales induites ont été suivies grâce à une spectroscopie FTIR réalisée à l'aide d'un spectromètre Nicolet iS10, fonctionnant à une résolution de 2 cm⁻¹ et moyennant 64 scans.

IV.2 Résultats et discussion

IV.2.1 Spectroscopie infrarouge

Les figures IV.3 et IV.4 présentent l'évolution des spectres infrarouges en fonction de la fluence ionique pour des échantillons de SiO₂ vitreux irradiés avec des ions N^{5+} (75 keV) et Ar^{11+} (165 keV) respectivement. L'analyse a porté principalement sur la bande d'absorption TO3 (1000 -1120 cm⁻¹) et sur la paire LO4–TO4 (1165-1200 cm⁻¹).

Les principales observations sont les suivantes :

- Une diminution de l'intensité de la bande TO3 à 1078 cm⁻¹, accompagnée de l'apparition d'un nouveau pic à 1044 cm⁻¹, traduisant une réduction de l'angle de liaison Si–O–Si et, par conséquent, une compaction du réseau vitreux.
- Une intensité globalement inchangée de la bande LO4–TO4.

Les valeurs de la largeur à mi-hauteur (FWHM) des bandes situées à 1078, 1197 et 1044 cm⁻¹ ont été déterminées par ajustement gaussien. Ces résultats sont en accord avec les données déjà rapportées dans la littérature^[Rota12, Tou11]. Les ajustements gaussiens sont présentés à la figure IV.5 pour les spectres infrarouges de l'échantillon non irradié, aux figures IV.6 et IV.7 pour ceux des échantillons irradiés par des ions N^{5+} , et aux figures IV.8 et IV.9 pour ceux irradiés par des ions Ar^{11+} , en fonction des différentes fluences.

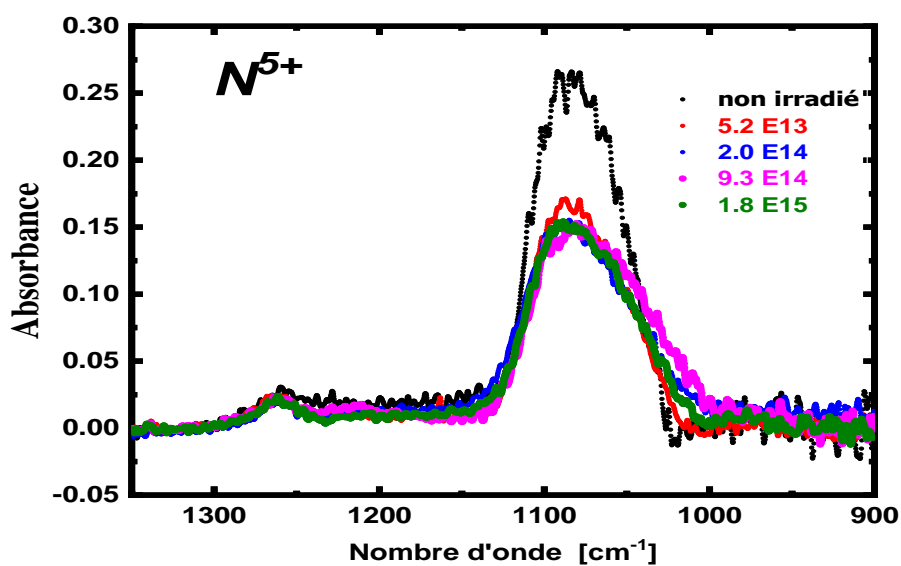


Fig. IV.3 : Évolution des spectres infrarouges de la silice vitreuse (SiO_2) dans l'intervalle $900\text{-}1350\text{ cm}^{-1}$, enregistrés après irradiation par des ions N^{5+} (75 keV), pour les différentes fluences indiquées sur les figures.

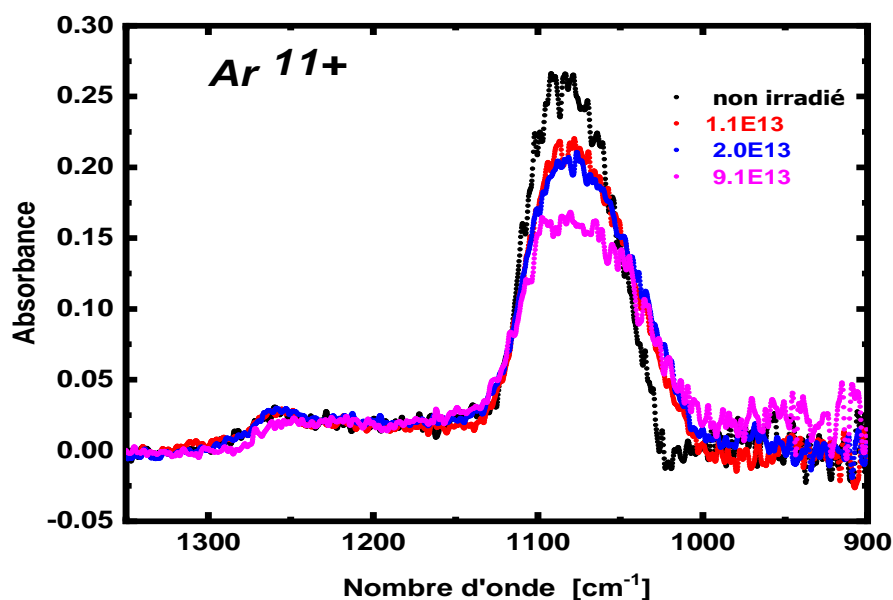


Fig. IV.4 : Évolution des spectres infrarouges de la silice vitreuse (SiO_2) dans l'intervalle $900\text{-}1350\text{ cm}^{-1}$, enregistrés après irradiation par des ions Ar^{11+} (165 keV) (b), pour les différentes fluences indiquées sur les figures.

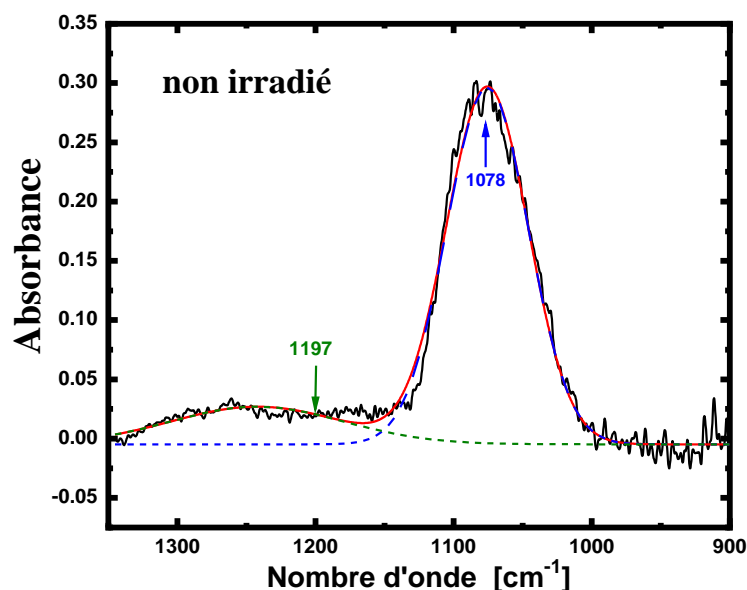


Fig. IV.5 : Ajustement du spectres infrarouges pour une cible non irradiée de la silice vitreuse (SiO_2) non irradiée dans la plage 900 -1350 cm^{-1} , avec deux gaussiennes situées à 1197 cm^{-1} et 1078 cm^{-1} .

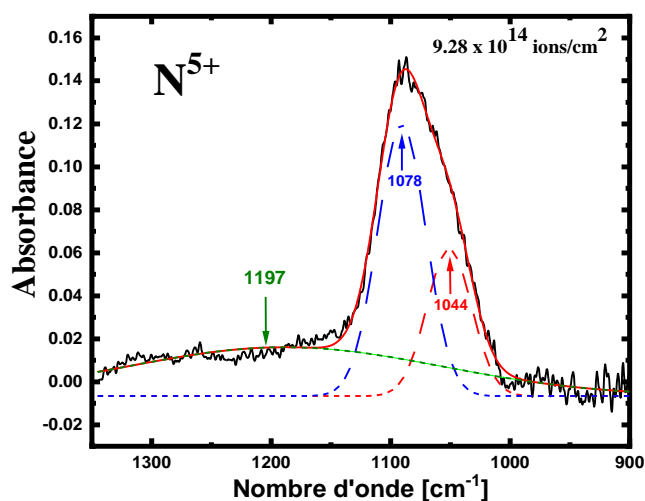


Fig. IV.6 : Spectres infrarouges de la silice vitreuse irradiée avec des ions N^{5+} de 75 keV, pour une fluence de 9.28×10^{14} ions/ cm^2 . Les lignes en pointillés correspondent aux contributions ajustées des bandes situées à 1044 cm^{-1} , 1078 cm^{-1} et 1197 cm^{-1} (mentionnées sur les figures). La courbe rouge continue représente la somme de ces bandes ajustées, superposée aux données expérimentales (points noirs).

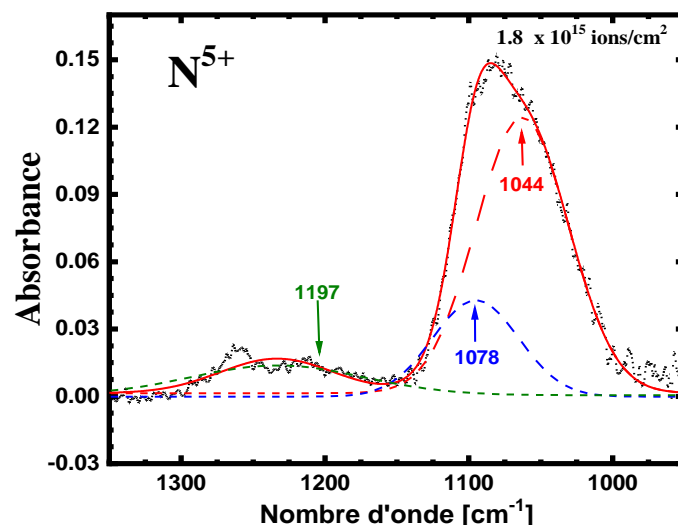


Fig. IV.7 : Spectres infrarouges de la silice vitreuse irradiée avec des ions N^{5+} de 75 keV, pour une fluence de 1.8×10^{15} ions/cm². Les lignes en pointillés correspondent aux contributions ajustées des bandes situées à 1044 cm⁻¹, 1078 cm⁻¹ et 1197 cm⁻¹ (mentionnées sur les figures). La courbe rouge continue représente la somme de ces bandes ajustées, superposée aux données expérimentales (points noirs).

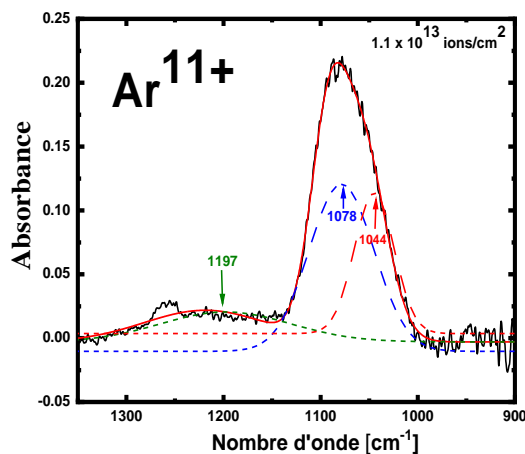


Fig. IV.8 : Spectres infrarouges de la silice vitreuse irradiée avec ions Ar^{11+} de 165 keV, pour une fluence de 1.1×10^{13} ions/cm². Les lignes en pointillés correspondent aux contributions ajustées des bandes situées à 1044 cm⁻¹, 1078 cm⁻¹ et 1197 cm⁻¹ (mentionnées sur les figures). La courbe rouge continue représente la somme de ces bandes ajustées, superposée aux données expérimentales (points noirs).

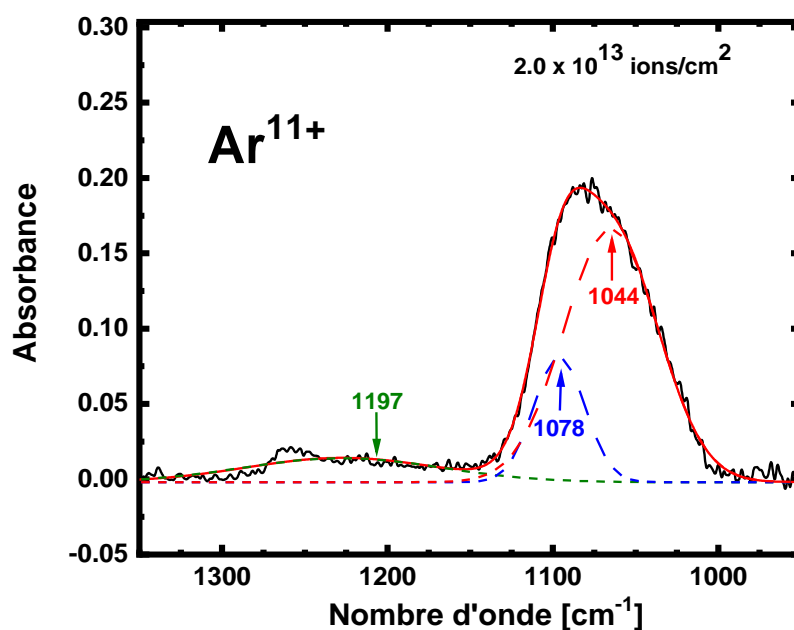


Fig. IV.9 : Spectres infrarouges de la silice vitreuse irradiée avec ions Ar^{11+} de 165 keV, pour une fluence de 2×10^{13} ions/cm². Les lignes en pointillés correspondent aux contributions ajustées des bandes situées à 1044 cm⁻¹, 1078 cm⁻¹ et 1197 cm⁻¹ (mentionnées sur les figures). La courbe rouge continue représente la somme de ces bandes ajustées, superposée aux données expérimentales (points noirs).

La diminution de l'aire de la bande à 1078 cm⁻¹ et l'augmentation de celle de la bande à 1044 cm⁻¹, en fonction de la fluence ionique lors de l'irradiation par des ions N⁵⁺ à 75 keV et Ar¹¹⁺ à 165 keV, sont présentées dans les figures IV.10 et IV.11 respectivement. L'évolution des aires en fonction de la fluence a été ajustée selon la loi de Poisson, les résultats étant représentés par des courbes continues rouge (pour le pic à 1044 cm⁻¹) et noires (pour le pic à 1078 cm⁻¹). La somme des deux aires est également tracée (courbe bleue en pointillés), montrant que la diminution de l'intensité de la bande à 1044 cm⁻¹ est compensée par l'augmentation de celle à 1078 cm⁻¹. Les courbes pleines et pointillées correspondent aux ajustements des données expérimentales par la loi de Poisson^[Thev77].

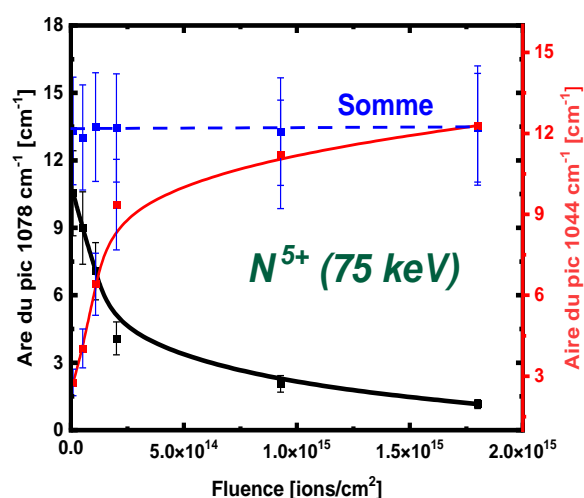


Fig. IV.10 Évolution des aires de la bande à 1078 cm^{-1} (courbe noire) et de la bande à 1044 cm^{-1} (courbe rouge) en fonction de la fluence ionique pour les ions N^{5+} d'énergie 75 keV . La somme des deux aires est également représentée (courbe bleue en pointillés), mettant en évidence que la diminution de l'aire de la bande à 1044 cm^{-1} est compensée par l'augmentation de celle de la bande à 1078 cm^{-1} . Les courbes pleines et en pointillés correspondent aux ajustements des données expérimentales selon la loi de Poisson^[Thev77].

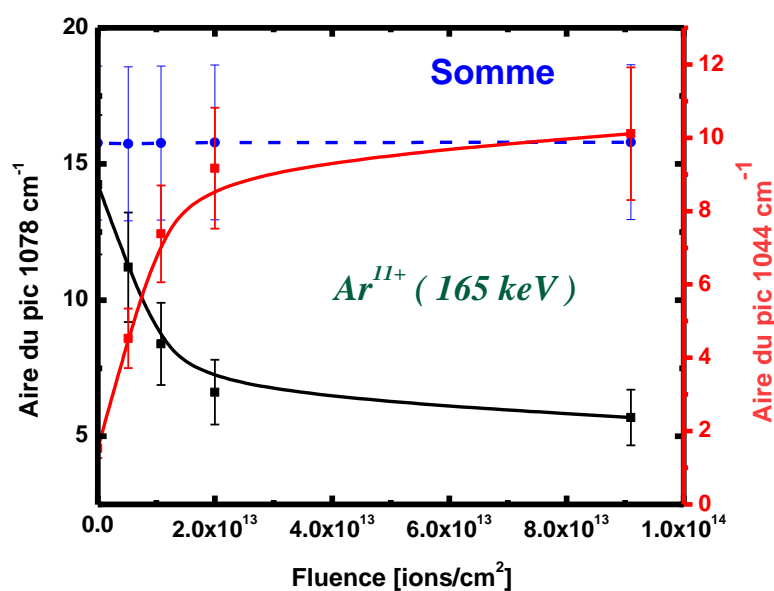


Fig. IV.11 : Évolution des aires de la bande à 1078 cm^{-1} (courbe noire) et de la bande à 1044 cm^{-1} (courbe rouge) en fonction de la fluence ionique pour les ions Ar^{11+} d'énergie 165 keV . La somme des deux aires est également représentée (courbe bleue en pointillés), mettant en évidence que la diminution de l'aire de la bande à 1044 cm^{-1} est compensée par

l'augmentation de celle de la bande à 1078 cm^{-1} . Les courbes pleines et en pointillés correspondent aux ajustements des données expérimentales selon la loi de Poisson^[Thev77].

IV.2.2. Section efficace de la transformation structurale et détermination du rayon

Les augmentations de la surface du pic à 1044 cm^{-1} en fonction de la fluence ionique (pour les ions N^{5+} à 75 keV et Ar^{11+} à 165 keV) sont présentées dans la figure 3. À fortes fluences, un comportement de saturation est observé : la bande à 1044 cm^{-1} atteint un maximum. À faibles fluences, l'augmentation de cette bande (associée au SiO_2 désordonné) est proportionnelle à la dose absorbée.

L'évolution de la surface de la bande en fonction de la fluence ϕ est tracée dans la figure 3 et ajustée à l'aide de la loi de Poisson^[Thev77] :

$$F_d = 1 - \exp(-\sigma \cdot \phi) \quad (\text{IV.1})$$

où F_d représente la fraction de matériau endommagé et σ la section efficace de dommage pour la transformation structurale.

F_d est défini par $F_d = N/N_0$, où N est le nombre d'oscillateurs associés à la nouvelle bande d'absorption induite par l'irradiation, et N_0 correspond au nombre d'oscillateurs à l'état de dommage complet. Comme le nombre d'oscillateurs est proportionnel à la surface de la bande d'absorption, F_d peut être directement relié au rapport des surfaces des bandes.

Ainsi, F_d peut aussi s'exprimer par $F_d = S/S_0$ où S est la surface de la bande d'absorption induite par l'irradiation à une fluence donnée, et S_0 la valeur de saturation correspondant au dommage complet du matériau. L'évolution du pic induit par irradiation est analysée à l'aide de la relation suivante :

$$S = S_0 (1 - \exp(-\sigma \cdot \phi)) \quad (\text{IV.2})$$

La variation de la surface du pic induit en fonction de la fluence permet d'estimer la pente initiale ainsi que la section efficace de dommage, et par conséquent, le rayon effectif du dommage. La pente initiale de cette courbe (voir figures IV.12 et IV.13) donne une indication de l'efficacité du dommage dans le régime de faible fluence, où le recouvrement des traces ioniques est négligeable. Elle est déterminée en calculant la dérivée de la fonction dépendant de la fluence en fluence nulle.

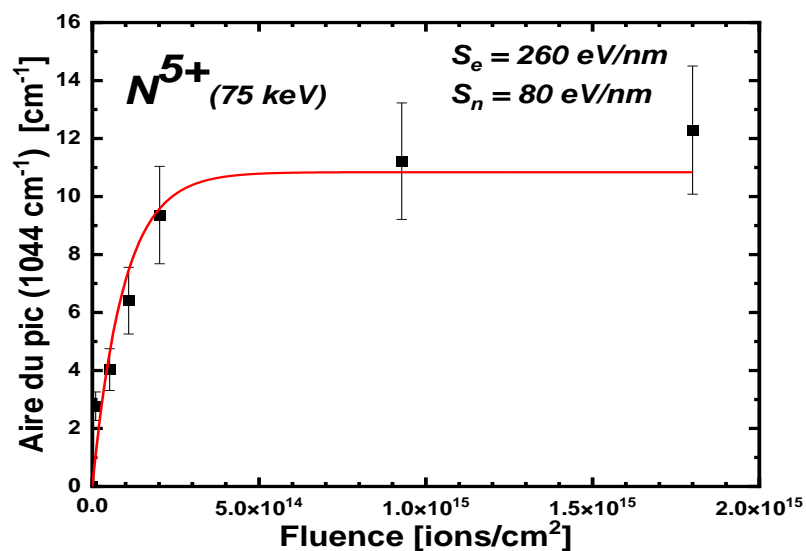


Fig. IV.12 : Évolution de l'aire du pic de la bande d'absorption à 1044 cm^{-1} en fonction de la fluence, pour des irradiations avec des ions N^{5+} à 75 keV. Les courbes continues correspondent aux ajustements des données expérimentales selon la loi de Poisson^[Thev77]

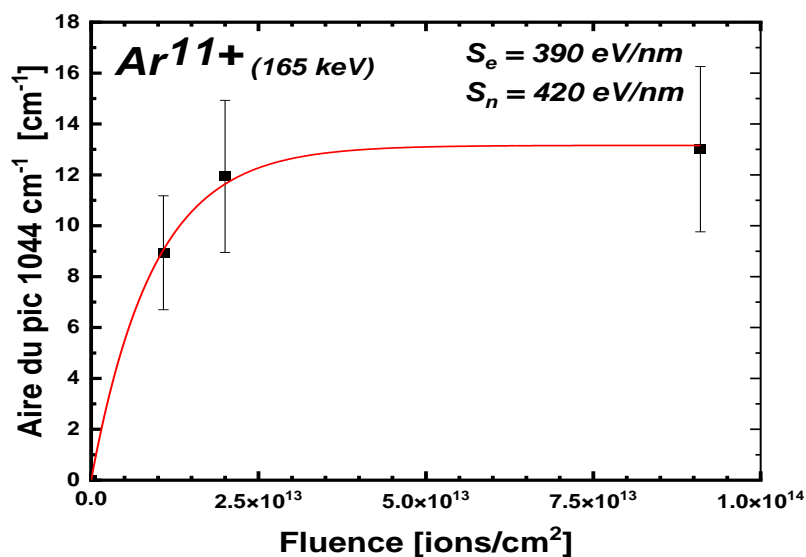


Fig. IV.13 : Évolution de l'aire du pic de la bande d'absorption à 1044 cm^{-1} en fonction de la fluence, pour des irradiations avec des ions Ar^{11+} à 165 keV. Les courbes continues correspondent aux ajustements des données expérimentales selon la loi de Poisson^[Thev77]

En supposant que chaque ion crée une trace de dommage de forme circulaire, le rayon effectif du dommage R peut être calculé à partir de la relation $\sigma = \pi R^2$. Les sections efficaces de dommage σ et les rayons R calculés pour les irradiations par ions N^{5+} et Ar^{11+} sont présentés dans le tableau IV.I.

Tableau IV.1 : Rayons de dommage expérimentaux et modélisés pour l'irradiation par des ions N et Ar . Ce tableau indique : l'énergie des ions (E), les pertes d'énergie électronique (S_e) et nucléaire (S_n) obtenues à partir du code **SRIM**^[Bier80], le rayon de dommage mesuré expérimentalement (R_{exper}), ainsi que le rayon de dommage (R_{model}) estimé selon le modèle unifié de la pointe thermique.

Paramètre	Ion	
	N^{5+}	Ar^{11+}
E [keV]	75	165
S_e [eV/nm]	260	390
S_n [eV/nm]	80	420
σ [cm ²]	$(1.1 \pm 0.4) \times 10^{-14}$	$(1.1 \pm 0.7) \times 10^{-13}$
R_{exper} [nm]	0.6 ± 0.2	1.9 ± 0.4
R_{model} [nm]	0.6	1.6

IV.2.3 Caractérisation morphologique par microscopie à force atomique

La microscopie à force atomique (AFM) occupe une place essentielle dans ce travail, en complément de la spectroscopie infrarouge (FTIR). Alors que la FTIR met en évidence les modifications structurales internes du réseau vitreux, l'AFM apporte une information directe et quantitative sur l'état de surface et son évolution sous irradiation. Cette dualité permet de relier la compaction du réseau (observée par FTIR) aux conséquences morphologiques visibles en surface (quantifiées par AFM).

L'AFM constitue en effet un outil privilégié pour analyser les modifications topographiques induites par l'irradiation ionique. Grâce à sa résolution verticale sub-nanométrique, cette technique permet de détecter et de quantifier les plus faibles variations de rugosité. Les mesures ont été effectuées en mode Tapping sur une zone de $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$,

assurant un compromis entre résolution locale et représentativité statistique des valeurs de rugosité.

Dans ce contexte, la rugosité quadratique moyenne (**RMS**) a été choisie comme paramètre principal pour quantifier l'évolution de l'état de surface. Bien que cette grandeur ne décrive pas à elle seule l'intégralité de la morphologie (car dépendante de la zone balayée), elle constitue un indicateur fiable de l'impact de l'irradiation sur la stabilité topographique du matériau.

L'AFM permet donc :

- de caractériser l'échantillon vierge et d'établir une référence topographique stable et homogène,
- d'identifier les modifications progressives induites par les irradiations successives (redistribution locale de matière, apparition de reliefs nanométriques),
- de distinguer les effets respectifs des ions légers (N^{4+}) et lourds (Ar^{11+}), en montrant une stabilité morphologique relative dans le premier cas et une forte augmentation de la rugosité dans le second.

Ainsi, l'AFM vient compléter l'approche spectroscopique et fournit une base quantitative solide pour relier les processus microscopiques de déplacement atomique aux modifications macroscopiques de la surface.

IV.2.3.1 Analyse quantitative de la rugosité

La rugosité quadratique moyenne (RMS) constitue le paramètre principal pour quantifier l'état de surface. Ce paramètre ne définit pas entièrement l'échantillon analysé, car il est limité à la taille de la zone balayée. Il correspond à l'écart-type des valeurs de hauteur z dans une surface donnée et se calcule selon l'expression :

$$RMS = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (Z_i - Z_m)^2}{N}} \quad (IV.3)$$

où :

- Z_m représente la valeur moyenne de hauteur sur la surface analysée
- Z_i correspond à la valeur de hauteur au point i
- N désigne le nombre total de points de mesure

IV.2.3.2 Résultats et discussion

IV.2.3.2.1 État de référence : silice vitreuse non irradiée

La figure IV.14 illustre la cartographie de la topographie de surface d'un échantillon de silice vitreuse vierge (non irradié), obtenue par microscopie à force atomique (AFM) en Mode Tapping, représentée en deux dimensions et en trois dimensions. Le niveau de hauteur pour différentes positions est donné par la couleur (selon l'échelle de gris).

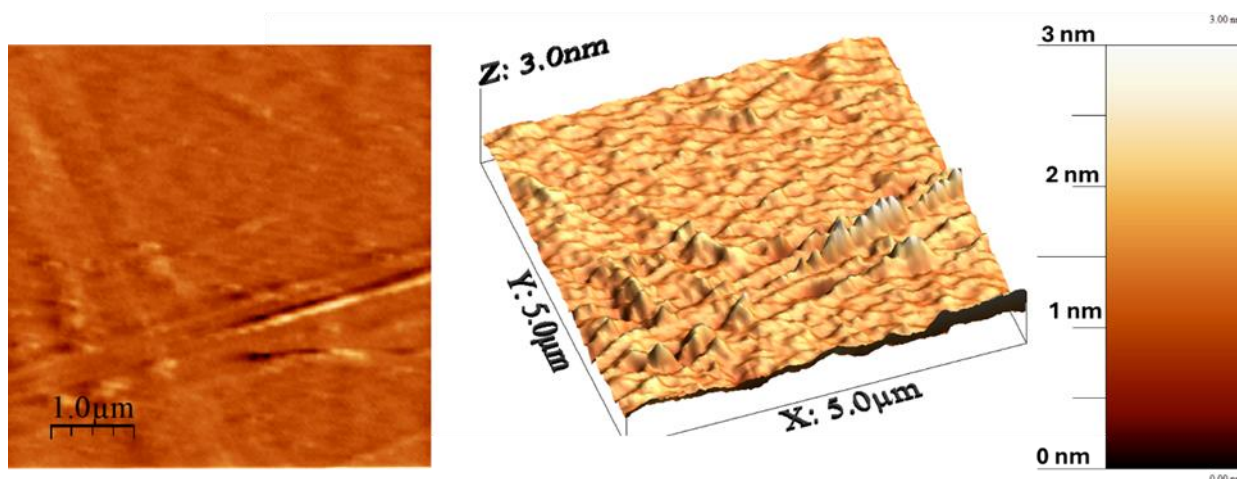


Fig. IV.14 : Images AFM ($5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$) en (a) deux dimensions et en (b) trois dimensions d'un échantillon de silice vitreuse vierge (non irradié).

La caractérisation *AFM* de la silice vitreuse vierge révèle une surface remarquablement lisse et homogène, dépourvue de structures marquées ou de défauts notables.

L'analyse quantitative montre :

Paramètres de rugosité :

- RMS = 182,9 pm ($\approx 0,18 \text{ nm}$)
- Déviation moyenne = 146,6 pm
- Variations extrêmes = $\pm 0,7 \text{ nm}$
- Coefficient d'asymétrie (skew) = -0,313
- Coefficient d'aplatissement (kurtosis) = 0,143

Ces valeurs traduisent une distribution quasi-gaussienne des hauteurs de surface, caractéristique d'une surface non perturbée. La faible valeur *RMS* confirme l'excellente

qualité de surface du matériau de départ, établissant une ligne de base fiable pour l'évaluation des effets d'irradiation.

La morphologie observée présente uniquement des ondulations de faible amplitude, attribuables aux fluctuations thermodynamiques intrinsèques de la surface vitreuse amorphe. Cette référence constitue un état idéal pour l'étude comparative des modifications induites par bombardement ionique.

IV.2.3.2.2 Modifications induites par irradiation aux ions N^{5+} (75 keV)

La figure IV.15 illustre la cartographie de la topographie de surface d'un échantillon de silice vitreuse irradié par des ions N^{5+} à une énergie de 75 keV et avec une fluence de 2×10^{14} ions/cm², obtenue par microscopie à force atomique (AFM), représentée en deux dimensions et en trois dimensions. Le niveau de hauteur pour différentes positions est donné par la couleur (selon l'échelle de gris).

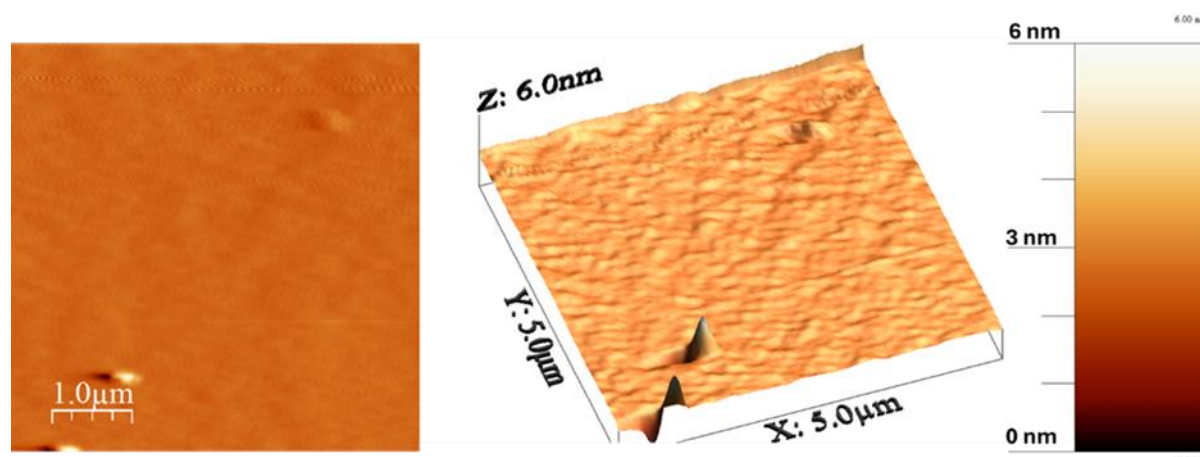


Fig. IV.15 : Images AFM ($5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$) en deux dimensions et en trois dimensions d'un échantillon de silice vitreuse irradié par des ions N^{5+} à une énergie de 75 keV et avec une fluence de 2×10^{14} ions/cm².

L'irradiation par des ions azote N^{5+} à 75 keV avec une fluence de 2×10^{14} ions/cm² induit des modifications morphologiques mesurables mais modérées :

Évolution des paramètres de rugosité :

- RMS = 180,3 pm (comparable à l'état vierge)

- Déviation standard = 180,3 pm
- Variations extrêmes = +1,88 nm / -0,90 nm
- Skew = 0,134 (distribution légèrement asymétrique)
- Kurtosis = 5,79 (distribution plus piquée)

La stabilité relative de la rugosité **RMS** suggère que l'irradiation N^{4+} induit principalement une redistribution locale de matière sans création significative de reliefs macroscopiques. La rugosité **RMS** reste comparable à l'état vierge, mais L'augmentation du kurtosis (5.79 vs 0.143) indique cependant l'apparition de points singuliers (pics et vallées) plus marqués, révélant une redistribution atomique ponctuelle sans dégradation majeure de l'homogénéité de surface.

IV.2.3.2.3 Modifications induites par irradiation aux ions Ar^{11+} (165 MeV)

La figure IV.16 illustre la cartographie de la topographie de surface d'un échantillon de silice vitreuse irradié par des ions Ar^{11+} à une énergie de 165 keV et avec une fluence de 2×10^{15} ions/cm², obtenue par microscopie à force atomique (**AFM**), représentée en deux dimensions et en trois dimensions. Le niveau de hauteur pour différentes positions est donné par la couleur (selon l'échelle de gris).

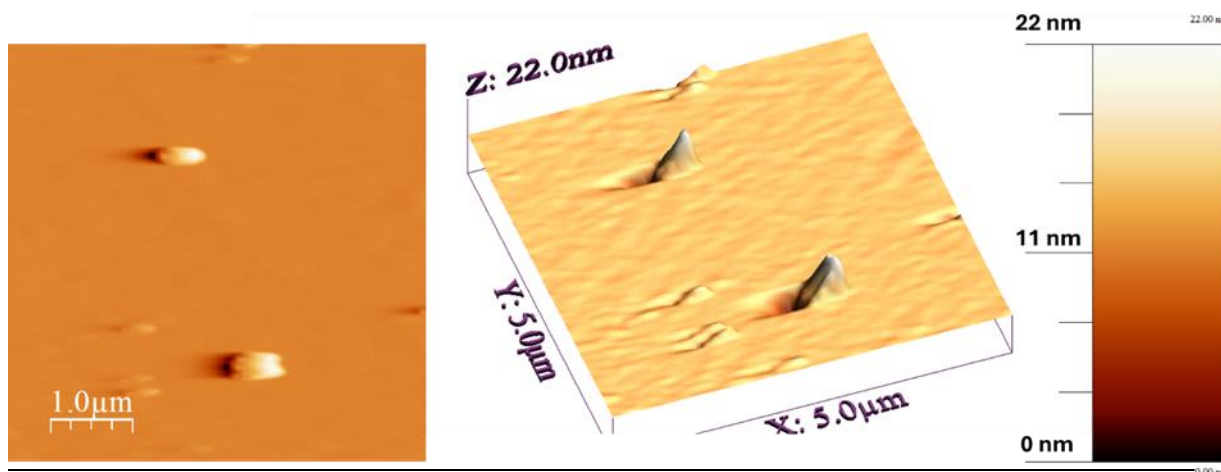


Fig. IV.16 : Images **AFM** ($5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$) en deux dimensions et en trois dimensions d'un échantillon de silice vitreuse irradié par des ions Ar^{11+} à une énergie de 165 keV et avec une fluence de 2×10^{15} ions/cm².

L'irradiation par des ions argon Ar^{11+} à une énergie (165 keV) avec une fluence de 2×10^{15} ions/cm² provoque des modifications morphologiques drastiques :

Évolution significative des paramètres :

- RMS = 539,7 pm (augmentation de 300% par rapport à l'état vierge)
- Déviation standard = 539,7 pm
- Variations extrêmes = +7,07 nm / -3,90 nm (amplification d'un facteur 10)
- Skew = 3,54 (forte asymétrie positive)
- Kurtosis = 43 (distribution très piquée)

L'augmentation drastique de la rugosité **RMS** (≈ 0.54 nm, soit +300 %) témoigne d'une restructuration profonde de la surface. La forte asymétrie positive (skew = 3.54) indique une prédominance de structures élevées (bosses), suggérant des mécanismes de gonflement local de la matière (swelling) le long des traces ioniques.

Le kurtosis extrêmement élevé (43) révèle une distribution très hétérogène des hauteurs, caractéristique de l'émergence de structures localisées de grande amplitude. Ce comportement est typique de l'intersection des traces ioniques avec la surface, créant des reliefs cylindriques de quelques nanomètres de diamètre.

Ainsi, les résultats **AFM** montrent que l'irradiation par ions légers (N^{5+}) conserve globalement la stabilité topographique de la surface, tandis que les ions plus lourds (Ar^{11+}) induisent une modification morphologique nette, traduite par une augmentation significative de la rugosité et l'apparition de reliefs localisés.

La microscopie à force atomique a permis de quantifier avec précision l'impact de l'irradiation ionique sur la topographie de surface de la silice vitreuse. L'état vierge fournit une référence stable, caractérisée par une surface lisse et homogène. Après irradiation, les ions N^{5+} n'engendrent que des perturbations limitées, tandis que les ions Ar^{11+} provoquent une restructuration profonde de la surface, traduite par une augmentation marquée de la rugosité et une hétérogénéité topographique accrue. Ces observations confirment le rôle déterminant de la masse et de l'énergie des ions dans les mécanismes de modification de surface, et établissent un lien direct entre la nature du projectile et l'évolution morphologique du matériau vitreux.

IV.2.4 Analyse selon le modèle (u-TSM)

Le modèle de la pointe thermique unifié (*u-TSM*) a été utilisé pour interpréter les résultats expérimentaux. Ce modèle, décrit en détail par Mieskes et al.^[Mies03] et Toulemonde et al.^[Toul11], combine les approches *de la pointe thermique élastique* et *de la pointe thermique inélastique* afin de prendre en compte à la fois les pertes d'énergie nucléaire et électronique.

Il décrit la diffusion de l'énergie perdue par voie électronique à travers les interactions électron-électron, ainsi que son transfert ultérieur au réseau cristallin par couplage électron-phonon. À l'inverse, l'énergie nucléaire est directement déposée sur les atomes, entraînant un échauffement transitoire, tel que proposé par Ollerhead et al.^[Oll80].

Le code de calcul de la pointe thermique^[Tou98, Beny98, Dall08, Toul06] constitue un outil largement utilisé et performant pour décrire les dommages induits par les ions lourds rapides dans divers matériaux, notamment les métaux^[Wang94], les semi-conducteurs^[Toul92] et les isolants^[Meft04, Meft08, Toul96]. Ce modèle est régi par les équations différentielles couplées suivantes^[Meft04, Meft08, Toul96] :

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r}) - g(T_e - T_a) + A_e(r, t) \quad (IV.4)$$

$$C_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial r}) + g(T_e - T_a) + B_n(r, t) \quad (IV.5)$$

T_e et T_a représentent respectivement les températures électronique et atomique, tandis que C_e et C_a correspondent à leurs chaleurs spécifiques. K_e et K_a désignent les conductivités thermiques associées, et g est la constante de couplage électron-phonon.

$A_e(r, t)$ représente l'énergie transférée au sous-système électronique par l'ion incident, via des collisions balistiques, à une distance radiale r . L'intégration spatiale de $A_e(r, t)$ donne la perte d'énergie électronique (S_e). À l'inverse, $B_n(r, t)$ correspond à l'apport énergétique supplémentaire issu du dépôt d'énergie nucléaire^[Sigm81]. Ce terme joue un rôle important dans la formation d'une zone fondue^[Nord01], car il traduit l'énergie injectée dans le système atomique.

L'établissement des deux équations différentielles couplées du Modèle de la Pointe Thermique est présenté en détail dans l'Annexe. Ces deux équations sont résolues numériquement afin de

décrire l'évolution de l'ensemble des paramètres en fonction de T_e et T_a . La constante de couplage électron-phonon, g l'unique paramètre libre du modèle est reliée au libre parcours moyen électron-phonon, λ , par la relation $\lambda^2 = D_e C_e/g$, telle que proposée pour les isolants^[Toul00]. D_e et C_e représentent respectivement la diffusivité thermique électronique et la chaleur spécifique électronique, considérées comme constantes pour les isolants ($C_e = 1 \text{ J}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ [Dufo93] ; $D_e = 2 \text{ cm}^2\cdot\text{s}^{-1}$ [Dufo93, Mart83]). Le paramètre λ caractérise l'expansion radiale de l'énergie initiale avant son transfert vers les atomes. Ce modèle est pertinent dans notre cas, car la forte charge de l'ion incident est neutralisée sur une profondeur^[Dufo17] inférieure à 5 nm. Les paramètres requis par le programme sont rassemblés dans le tableau IV.2.

Tableau IV.2. : Paramètres utilisés pour la simulation par le code *u-STM*.

<i>La chaleur latente de fusion</i>	<i>142 J/g</i>
<i>La chaleur latente de vaporisation</i>	<i>4715 J/g</i>
<i>La température de fusion</i>	<i>1950 K</i>
<i>La température de vaporisation</i>	<i>3223 K</i>
<i>Le potentiel d'ionisation</i>	<i>10 eV</i>
<i>La masse molaire moyenne</i>	<i>20 g/mole</i>
<i>Masse volumique du solide</i>	<i>2.62 g/cm³</i>
<i>Masse volumique du liquide</i>	<i>2.32 g/cm³</i>

La figure IV.17 montre l'évolution de la chaleur spécifique en fonction de la température, tandis que la figure IV.18 présente la variation de la conductivité thermique avec la température, paramètres utilisés dans nos simulations à l'aide du code *u-TSM*.

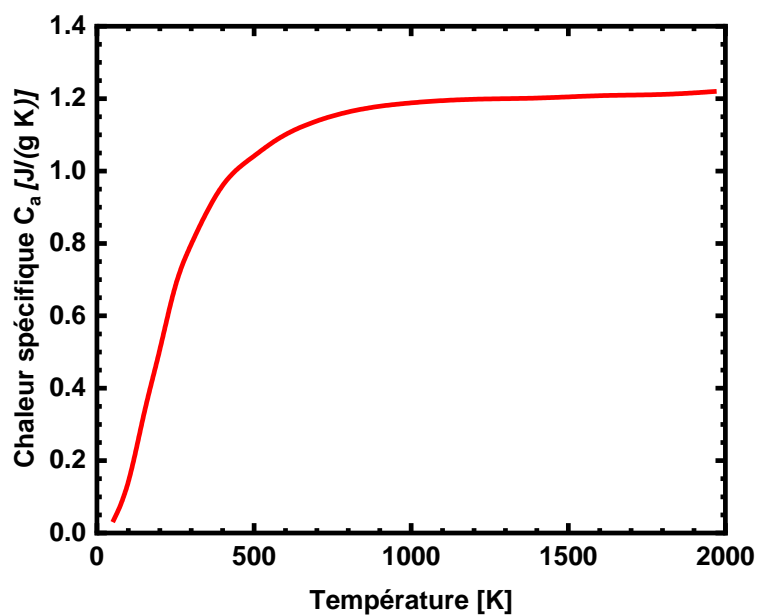


Fig. IV.17 : Variation de la chaleur spécifique atomique en fonction de la température.

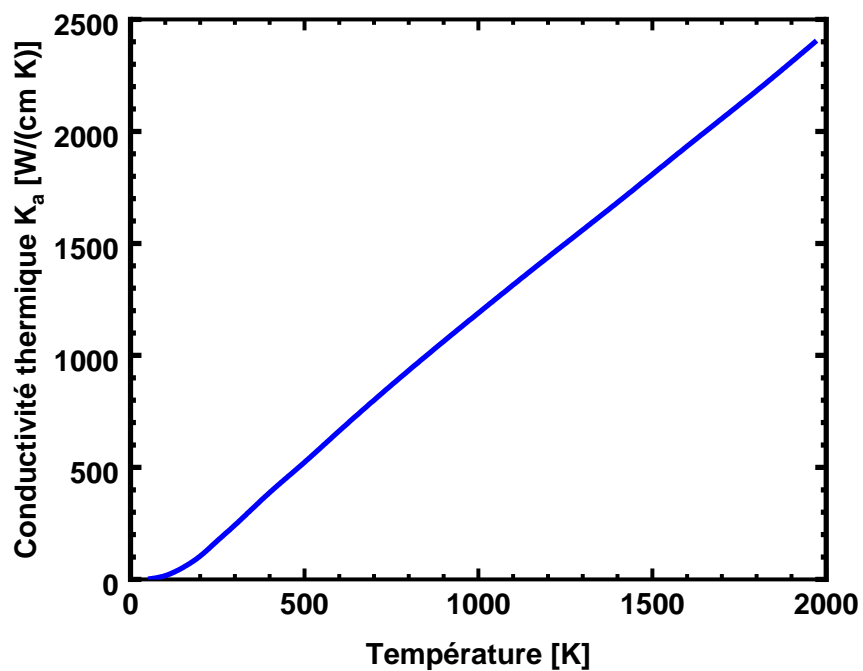


Fig. IV.18 : Évolution de la conductivité thermique atomique en fonction de la température

Des expériences d'irradiation par lasers pulsés ont mis en évidence la possibilité d'un phénomène de surchauffe (superheating) lors de dépôts ultrarapides d'énergie dans le réseau atomique. Concrètement, la durée du palier associé à la transformation de phase solide-liquide diminue fortement avec l'augmentation de la vitesse de dépôt d'énergie, jusqu'à ce que la fusion puisse se produire sans plateau thermique intermédiaire.

Dans le cadre des simulations numériques, ce scénario de surchauffe a été pris en compte conformément aux approches proposées dans la littérature^[Dall08, Toul02]. Pour ce faire, des valeurs artificiellement élevées des températures de fusion et d'évaporation sont introduites, de manière à s'assurer qu'aucun test de changement de phase ne soit déclenché. En pratique, on adopte généralement $T_{\text{fusion}} = T_{\text{évaporation}} = 1000000$ K, bien que les températures atomiques réellement atteintes restent de l'ordre de quelques milliers de kelvins. Dans ce contexte, les rayons de traces sont définis comme les zones où l'énergie déposée excède le seuil de fusion, fixé pour la silice vitreuse (a-SiO₂) à $E_m = 0.38$ eV/atome.

Un libre parcours moyen électron-phonon $\lambda = 2.5$ nm a été adopté dans le modèle. Ce paramètre correspond à la distance radiale caractéristique sur laquelle l'énergie électronique, initialement déposée par l'ion incident, se diffuse avant d'être transférée au réseau par les interactions électron-phonon. La valeur retenue de 25 nm représente le meilleur ajustement proposé par Toulemonde et al.^[Toul16] (Fig. IV.19). Toutefois, des travaux antérieurs réalisés sur d'autres matériaux ont mis en évidence une corrélation entre ce paramètre et l'énergie de la bande interdite, comme l'illustre la figure IV-20.

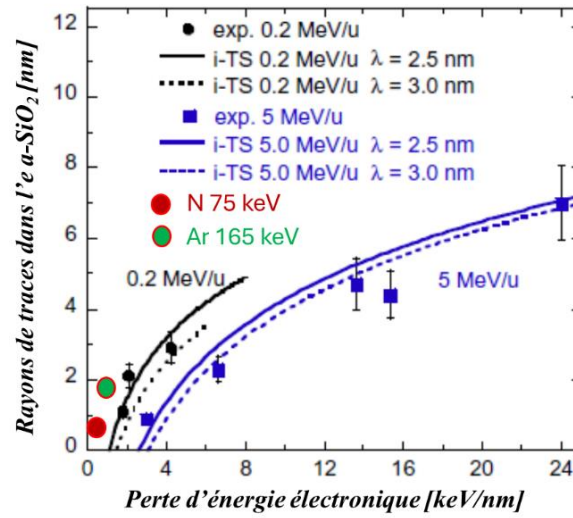


Fig. IV.19 : Évolution des rayons de traces en fonction de la perte d'énergie^[Toul86] dans l'a-SiO₂, à partir des données publiées (points noirs)^[Yuan83, Sugd92, Mats02, Mats03, Arno03, Chau97] et des résultats obtenus pour des irradiations à 0.2 MeV/u^[Toul11] et 5 MeV/u^[Rota12]. Les courbes pleines représentent les calculs du modèle de la pointe thermique avec $\lambda = 2.5$ nm, tandis que les courbes pointillées correspondent à $\lambda = 3$ nm. Les points rouge et vert indiquent respectivement nos résultats expérimentaux pour les irradiations à l'azote (75 keV) et à l'argon (165 MeV).

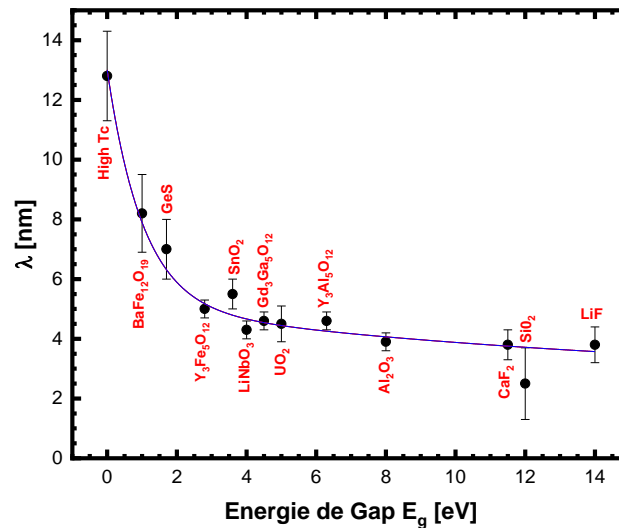


Fig. IV.20 : Évolution du libre parcours moyen λ en fonction de l'énergie de gap E_g pour différents matériaux. La courbe en bleu représente un ajustement servant de guide visuel pour mieux suivre l'évolution des données.

IV.2.4.1 Résultat des analyses avec le code (u-TSM)

Les figures IV.21 et IV.22 illustrent l'évolution temporelle du dépôt d'énergie atomique respectives par des ions azote et argon à différentes distances radiales.

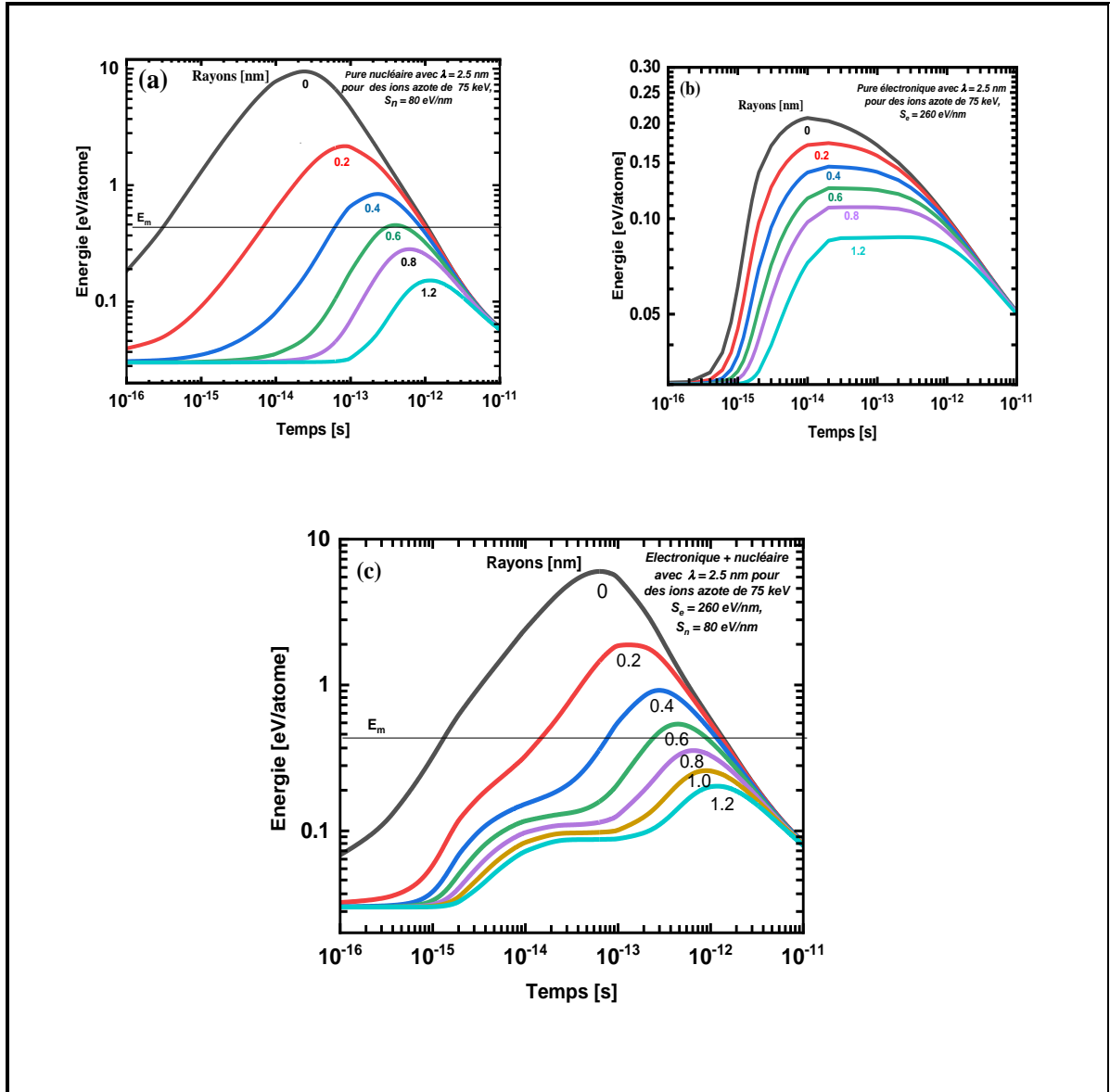


Fig. IV.21 : Évolution temporelle de l'énergie transférée aux atomes à différentes distances radiales [nm] par rapport à la trajectoire ionique, pour les ions N^{5+} . Les courbes représentent les contributions issues uniquement de la perte d'énergie nucléaire (S_n), uniquement de la perte d'énergie électronique (S_e), ainsi que leur combinaison (S_{total}), comme indiqué. Les calculs selon le modèle *u-TSM* ont été effectués avec $\lambda = 2.5$ nm. Pour l'irradiation à l'azote (a, c), le seuil d'énergie de fusion ($E_m = 0.38$ eV/atome) est dépassé dans un rayon de 0.6 nm.

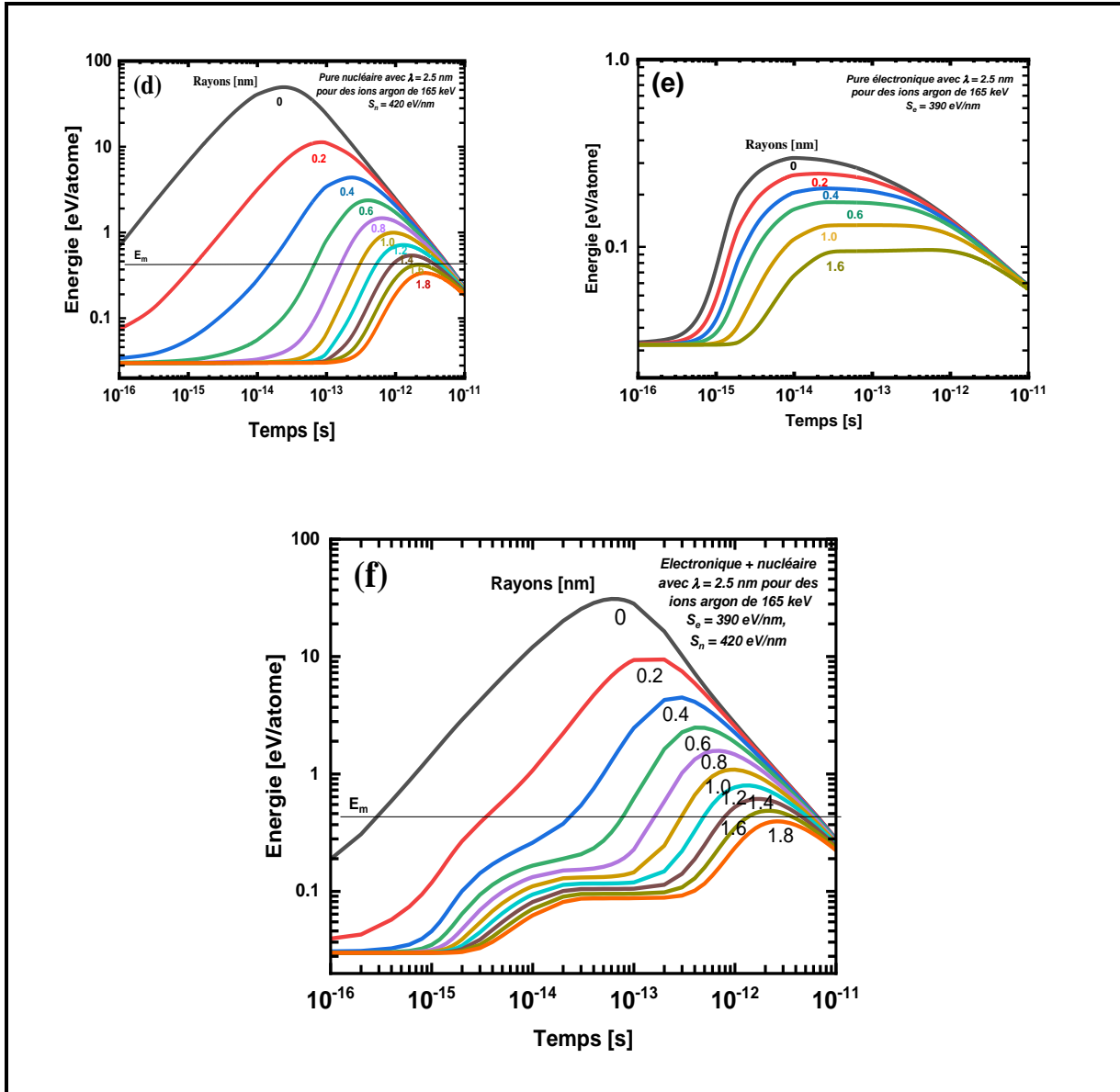


Fig. IV.22 : Évolution temporelle de l'énergie transférée aux atomes à différentes distances radiales [nm] par rapport à la trajectoire ionique, pour les ions Ar^{11+} . Les courbes représentent les contributions issues uniquement de la perte d'énergie nucléaire (S_n), uniquement de la perte d'énergie électronique (S_e), ainsi que leur combinaison (S_{total}), comme indiqué. Les calculs selon le modèle u-TSM ont été effectués avec $\lambda = 2.5$ nm. Pour l'irradiation à l'azote (d, f), le seuil d'énergie de fusion ($E_m = 0.38$ eV/atome) est dépassé dans un rayon de 1.6 nm.

Les principaux résultats peuvent être résumés comme suit :

- Pour les ions N^{5+} à 75 keV, bien que la perte d'énergie nucléaire soit environ trois fois inférieure à la perte d'énergie électronique, l'effet thermique issu des collisions nucléaires est au moins dix fois supérieur à celui généré par les collisions électroniques.
- Pour les ions Ar^{11+} à 165 keV, où les pertes d'énergie nucléaire et électronique sont comparables, la perte d'énergie nucléaire demeure le facteur prédominant dans les modifications structurales.
- Ces observations confirment qu'à faible énergie d'irradiation, les modifications structurales de la silice vitreuse (SiO_2) sont essentiellement dues à la perte d'énergie nucléaire, l'excitation électronique n'apportant qu'une contribution négligeable, même pour des ions incidents légers.

IV.2.4.2 Simulation numérique de la pulvérisation

Le modèle unifié de la pointe thermique (*u-TSM*) a été appliqué afin de décrire le phénomène de pulvérisation en surface dans le domaine des énergies de l'ordre du keV, en considérant un libre parcours moyen λ fixé à 2.5 nm. Contrairement aux processus de création de défauts ou de formation de traces latentes, généralement associés à la fusion locale du matériau, le critère déterminant la pulvérisation d'atomes de surface est ici lié à l'énergie de sublimation.

Dans le cas de la silice vitreuse (*a-SiO₂*), l'énergie de sublimation correspond à la somme :

- de l'énergie nécessaire pour atteindre la phase de fusion, soit 0.38 eV/atome ;
- de l'énergie thermique permettant d'élever le matériau de la température de fusion T_m jusqu'à la température d'ébullition $T_b = 3223$ K, donnée par l'expression $C_a(T_b - T_m)$ où $C_a \approx 1.3$ J g⁻¹ K⁻¹ représente la capacité calorifique spécifique^[Weeb] de l'a-SiO₂;
- enfin, de la chaleur latente de vaporisation, égale à 4715 J.g⁻¹.

Le calcul conduit à une énergie de sublimation de l'ordre de 1.8 eV/atome pour l'a-SiO₂, une valeur légèrement inférieure à celle obtenue pour la silice cristalline (c-SiO₂), estimée à 1.9 eV/atome^[Toul16].

Une fois la distribution spatio-temporelle de l'énergie déposée $T_a(t,r)$ connue, le rendement total de pulvérisation en surface Y_{tot} est évalué par intégration numérique du flux d'évaporation $\Phi(T_a(t,r))$, dépendant de la température, du temps et de la position radiale :

$$Y_{tot}(\text{at./ion}) = \int_0^{\infty} dt \int_0^{\infty} \Phi(T_a(r,t)) 2\pi r dr \quad (\text{IV.6})$$

où le flux d'évaporation est donné par la distribution de Maxwell-Boltzmann^[Toul02, Toul03] :

$$\Phi(T_a(r,t)) = N \sqrt{\frac{k_b T_a(r,t)}{2\pi M}} \exp\left(\frac{-U_s}{k_b T_a(r,t)}\right) \quad (\text{IV.7})$$

$k_b = 8.6173 \times 10^{-5}$ eV/K° est la constante de Boltzmann, $N = 7.9 \times 10^{22}$ at/cm³ la densité atomique de la cible, $M = 20$ g/mol la masse moléculaire moyenne de la cible et $U_s = 1.83$ eV/at l'énergie de surface assimilée à l'énergie de sublimation par molécule évaporée.

Le rendement de pulvérisation est fortement influencé par la durée de dissipation de l'énergie déposée, elle-même régie par la conductivité thermique K_a du matériau. Pour la silice vitreuse, et pour des températures comprises entre l'ambiante et l'ébullition, K_a est supposée constante, avec une valeur de $0.01 \text{ J}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$. Au-delà de cette limite, K_a est estimée suivant la description de Sigmund et Claussen^[Sigm81], adaptée à la dynamique des collisions élastiques. Pour comparaison, dans le cas du c-SiO₂, la conductivité thermique a été définie par Meftah et al.^[Meft94] comme variant en $14/T^{0.9}$ entre la température ambiante et la fusion (2150 K), atteignant à cette température la même valeur limite de $0.01 \text{ J}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$. Cette approximation a été étendue aux températures supérieures pour l'a-SiO₂.

L'évolution temporelle du rendement de pulvérisation simulé, obtenue par le modèle u-TSM, pour des intervalles radiaux de 1 nm, dans le cas d'irradiations de la silice par des ions azote (75 keV) et argon (165 keV) est illustrée dans les figures IV.23 et IV.24 respectivement. Les résultats mettent clairement en évidence que le rendement de pulvérisation est non nul lorsque seul le pouvoir d'arrêt nucléaire (S_n) est pris en compte, alors qu'il est nul dans le cas d'un apport énergétique exclusivement électronique (S_e). Ces résultats confirment de manière quantitative que, dans le régime étudié, la pulvérisation de surface de l'a-SiO₂ est gouvernée exclusivement par le transfert d'énergie nucléaire, en cohérence avec les observations expérimentales et les prédictions du modèle unifié de la pointe thermique dans la première partie de ce chapitre.

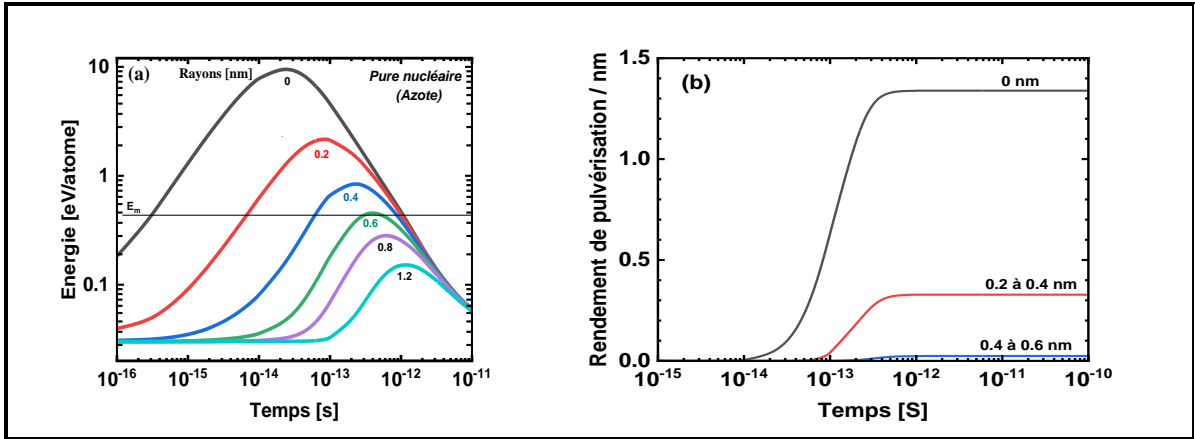


Fig. IV.23 : Calculs effectués avec le modèle u-TSM pour une énergie de faisceau d'azote de 75 keV, un pouvoir d'arrêt nucléaire $S_n = 80$ eV/nm et un libre parcours $\lambda = 2.5$ nm. (a) évolution de l'énergie par atome en fonction du temps pour différents rayons de trace ; la ligne horizontale indique l'énergie correspondant à la température de fusion ; (b) évolution temporelle du rendement de pulvérisation, calculé par intervalles radiaux de 0.4 nm.

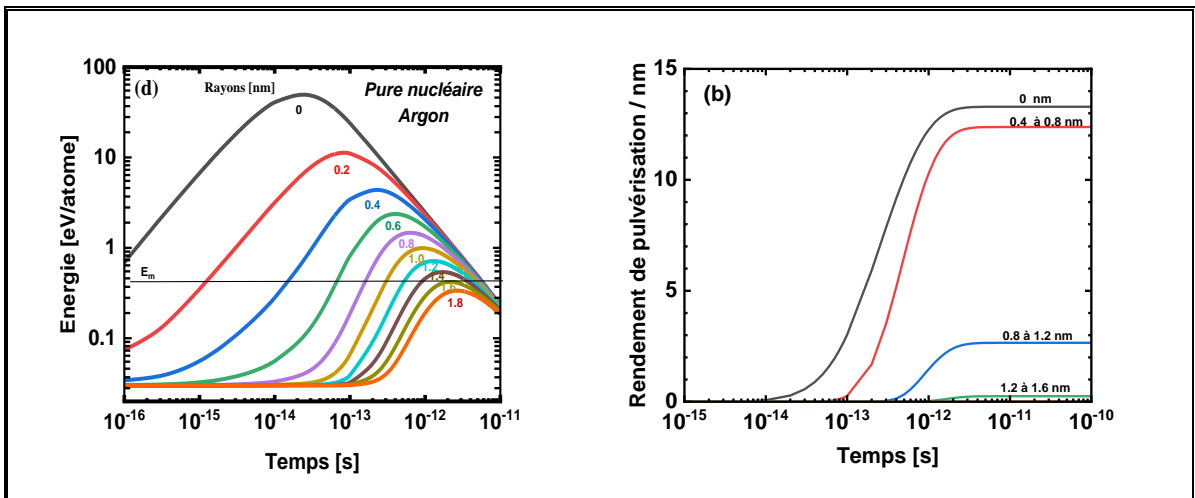


Fig. IV.24 : Calculs effectués avec le modèle u-TSM pour une énergie de faisceau d'argon de 165 keV, un pouvoir d'arrêt nucléaire $S_n = 420$ keV/nm et un libre parcours $\lambda = 2.5$ nm. (a) évolution de l'énergie par atome en fonction du temps pour différents rayons de trace ; la ligne horizontale indique l'énergie correspondant à la température de fusion ; (b) évolution temporelle du rendement de pulvérisation, calculé par intervalles radiaux de 0.2 nm.

Conclusion du quatrième chapitre

Les résultats présentés dans ce chapitre conduisent aux conclusions suivantes

- *Les analyses **FTIR** révèlent une compaction progressive du réseau vitreux sous irradiation, caractérisée par la diminution de l'intensité de la bande à 1078 cm^{-1} et l'apparition d'un nouveau pic à 1044 cm^{-1} . Ces évolutions traduisent une réorganisation des liaisons Si–O et confirment l'effet structurant des collisions ions-matière.*
- *Les mesures **AFM** montrent que l'irradiation par ions légers (N^{5+} , 75 keV) modifie faiblement la topographie de surface, maintenant une rugosité proche de celle de l'échantillon non irradié. En revanche, l'irradiation par ions lourds (Ar^{11+} , 165 keV) induit une augmentation significative de la rugosité (facteur d'environ 3), accompagnée de l'apparition de reliefs nanométriques prononcés, soulignant le rôle déterminant de la masse et de l'énergie des ions dans les transformations morphologiques.*
- *La confrontation avec le modèle unifié de la pointe thermique (**u-TSM**) valide cette interprétation en reproduisant précisément l'évolution temporelle du rendement de pulvérisation et en confirmant que les pertes d'énergie nucléaire dominent les modifications structurales et morphologiques observées*

*En résumé, la combinaison des approches spectroscopique (**FTIR**), morphologique (**AFM**) et numérique (**u-TSM**) offre une compréhension cohérente des effets de l'irradiation ionique basse énergie sur la silice vitreuse, en établissant un lien direct entre les mécanismes élémentaires d'interaction ion-matière et les altérations structurelles et topographiques caractérisées.*

Conclusion générale

Conclusion générale

Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse ont clarifié le rôle des différents mécanismes physiques impliqués dans la modification de la silice vitreuse soumise à une irradiation ionique de basse énergie.

Les analyses FTIR ont mis en évidence une compaction progressive du réseau vitreux, traduite par l'atténuation de la bande vibratoire à 1078 cm^{-1} et l'apparition d'un nouveau pic à 1044 cm^{-1} , témoignant d'une réduction de l'angle Si–O–Si et d'une densification du matériau.

L'analyse morphologique par microscopie à force atomique (AFM) a révélé que les faibles dépôts d'énergie nucléaire, tels que 80 eV/nm pour les ions N^{5+} , entraînent des modifications mineures de la rugosité de surface, tandis que des dépôts plus élevés, de l'ordre de 420 eV/nm pour les ions Ar^{11+} , provoquent une augmentation significative de la rugosité accompagnée de l'apparition de reliefs nanométriques marqués.

La confrontation des résultats aux simulations avec le modèle unifié de la pointe thermique (u-TSM) a validé l'hypothèse que les pertes d'énergie nucléaire dominent les modifications structurales et morphologiques observées, alors que les pertes électroniques jouent un rôle marginal. Ce point est particulièrement important dans le régime de faible énergie ionique étudié.

Au-delà des avancées fondamentales, ces conclusions ont des implications pratiques pour le développement de matériaux résistants aux environnements radiatifs, avec un impact potentiel pour le confinement des déchets nucléaires et la durabilité des systèmes spatiaux.

Enfin, ce travail ouvre des perspectives pour étendre l'étude à d'autres ions, de basses énergies et matériaux amorphes, en vue de généraliser la compréhension des processus induits par irradiation ionique.

Références

- [Arno03] W.M. Arnoldbik, T. Tomazeiu, F.H.P.M. Habraken, Nucl. Instr. Meth. B 203, 151 (2003).
- [Awaz00] K. Awazu, S. Ishii, K. Shima, S. Roorda, and J. L. Brebner, Phys. Rev. B**62**, 3689 (2000).
- [Bala92] E. Balanzat and S. Bouffard, Materials under irradiation, summer shool, Giens, France, (1992).
- [Ball86] B. Balland, G. Barbottin, Defects in silica films, their nature.their properties tire de instabilités in silicone devices, G.Barbottin et A.Vapaille, Vol.1, p.104 - 149, Elsevier éditions (1986).
- [Bark63] H. BARKas, Nuclear Research Emulsions, Vol. 1, Chapter 9, 371, Academic Press New York (1963).
- [Beny15] A. Benyagoub and M. Toulemonde, J. Mater. Res. **30**, 1529 (2015).
- [Beny92] A. Benyagoub, S. Löffler, M. Rammensee, S. Klaumünzer, and G. Saemann-Ischenko, Nucl. Instrum. Methods **65**, 228 (1992).
- [Beny98] A. Benyagoub, S. Klaumünzer, and M. Toulemonde, Nucl. Instrum. Methods B **146**, 454 (1998).
- [Berr63] D. W. Berreman Phys. Rev. 130 2193, (1963).
- [Beth33] H. Bethe, Handbuch der Physik 14, 491 (1933).
- [Bier80] J. P. Biersack and L. G. Haggmark, Nucl. Instrum. Methods **174**, 257 (1980).
- [Binn86] G. Binning, D.P.E. Smith, Rev. Sci. Instrum. 57, 1688, (1986)
- [Bite87] I.S. Bitensky, E.S. Parilis, Nucl. Instr. and Meth. B 21, 26 (1987).
- [Bran82] W. Brandt, M. Kitagawa, Phys. Rev. B**26**, 3968 (1982).
- [Brow72] M.D. Brown and C. D. Moak, Phys. Rev. B, 6 (1972) 90.
- [Busc92] M. C. Busch, A. Slaoui, P. Siffert, E. Dooryhee, and M. Toulemonde, J. Appl. Phys. **71**, 2596 (1992).
- [Canu98] B. Canut, N. Bonardi, S. M. M. Ramos, S. Della-Negra, Nucl.Instr. and Meth.in Phys. Res.B 146 296, (1998).

- [Chad69] L.T. Chadderton, I.M.C. Torrens, Fission Damage in Crystals, Methuen (1969).
- [Chau97] J. Chaumont, H. Bernas, A. Kusnetsov, C. Clerc, L. Dumoulin, Nucl. Instr. Meth. B129, 436 (1997).
- [Dall08] A. Dallanora, T. L. Marcondes, G. G. Bermudez, P. F. P. Fichtner, C. Trautmann, M. Toulemonde, and R. M. Papaléo, J. Appl. Phys. **104**, 024307 (2008).
- [Dess23] Dessauer, F. Über einige Wirkungen von Strahlen. IV. Z. Physik 20, 288–298 (1923).
- [Devi83] R. A. B. Devine and A. Golanski, J. Appl. Phys.54 3833, (1983).
- [Dian18] Diana Bachiller Perea, Ion-IrradiationInduced Damage in NuclearMaterials Case Study of a-SiO₂ and MgO, these de doctorat, Université Paris-Sud, Orsay, France et University Autonomy de Madrid, Madrid, Spain, (2018).
- [Dian18] Diana Bachiller Perea, Ion-IrradiationInduced Damage in Nuclear Materials Case Study of a-SiO₂and MgO, these de doctorat , Université Paris-Sud, Orsay, France et University Autonomy de Madrid, Madrid, Spain,(2018).
- [Dufo17] C. Dufour, V. Khomrenkov, Y. Y. Wang, Z. G. Wang, F. Aumayr, and M. Toulemonde, J. Phys.: Condens. Matter **29**, 095001 (2017).
- [Dufo93] C. Dufour, A. Audouard, F. Beuneu, J. Dural, J. P. Girard, A. Hairie, M. Levalois, E. Paumier, and M. Toulemonde, J. Phys.: Condens. Matter **5**, 4573 (1993).
- [Dunl98] A.Dunlop, G.Jaskierowicz, S.Della-Negra, Nucl.Instr. and Meth.in Phys.Res.B 146 302, (1998).
- [Endo73] K. Endo and T. Doke, Jap. J. Appl. Phys., 12, No.9, 1403, (1973).
- [Firs59] O.B. Firsov, Soviet Physics JETP 9, 1076-1080. (1959).
- [Flei65] RL Fleischer, PB Price, RM Walker - Ann. Rev. Nuc. Sci, (1965).
- [Flei75] R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, Nuclear Tracks in Solids (University of California Press, Berkeley (1975).
- [Furu96] S. Furuno, H. Otsu, K. Hojou, K. Izui, Nucl. Instrum. Methods B 107, 223. (1996).

- [Gale87] F.L. Galeener. The physics and technology of amorphous SiO₂, pp. 1–13. Proceedings of a symposium on the Physics and Technology of Amorphous SiO₂, (1987).
- [Gerv93] B. Gervais, Thèse de Doctorat de l'Université de Caen (1993).
- [Goor12] M. Goorsky (ed.), Ion Implantation. InTech (2012).
<http://www.intechopen.com/books/ionimplantation>
- [Harr77] N. J. Harrick, Transmission spectra without interference fringes, Applied Spectroscopy. 31, 548 (1977).
- [Hube89] F. Huber, R. Bimbot, and H. Gauvin, Nucl. Instr. and Meth. **B** 36, 357 (1989).
- [Isra91] J.N. Israelachvili, Intermolecular and surface forces, 2nd Ed, Academic Press, London (1991).
- [Jens98] J. Jensen, A. Dunlop, S. Della Negra, M. Toulemonde, Nucl. Instr. and Meth. B 146, 412 (1998).
- [Khal03] N. Khalfaoui, Thèse de l'Université de Caen (2003).
- [Kinc55] G.H. Kinchin, R.S. Pease, Rep. Prog. Phys. 18, 111(1955).
- [Kirk88] C. T. Kirk Phys. Rev B 38 1255, (1988).
- [Klau04] S. Klaumünzer, Nucl. Instrum. Methods. B **225**, 136 (2004).
- [Klau86] S. Klaumünzer, M. Hou, G. Schumacher, Phys. Rev. Lett. 57-7,850 (1986).
- [Kobe68] E. J. Kobetich, R. Katz, Rays. Phys. Rev 170, 391, (1968)
- [Lang09] M. Lang, F.X. Zhang, R.C. Ewing, J. Lian, C. Trautmann, Z. Wang, J. Mater. Res. 24, 1322–1334 (2009).
- [Legr02] C. Legrand-buscema, c. Malibert and s. Bach, thin solid films, 418, 79-84, (2002).
- [Lehm77] C. Lehmann, Interaction of irradiation with solids and elementary defect production. Series Defects in crystalline Solids Vol. 10 North Holland Publishing Company (1977).
- [Lero96] C. Leroy, Thèse de l'Université de Caen (1996).
- [Lesu93] D. Lesueur, A. Dunlop, Radiat. Eff. and Def. in Solids 126,163 (1993)

- [Leva92] M. Levalois, P. Bogdanski, M. Toulemonde, Nucl. Instrum. Methods B 63, 14. (1992).
- [Lifs60] I.M. Lifshitz, M.I. Kaganov, L.V. Tanatarov, Journal Nucl. Energy Part A Reactor Science 12, 69 (1960).
- [Lind63] J. Lindhard, M. Scharff and H. E. Schott, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selk. 33 (14) (1963).
- [Mart83] Yu. V. Martynenko and Yu. N. Yavlinskii, Sov. Phys. Dokl. 2 (8), 391 (1983).
- [Mart88] Yu. V. Martinenko, S. O. Tsepelevitch, Yu. N Yavlinskii, Sov. Phys. Usp. 31, 1015 (1988).
- [Mart90] O. Marti, J. Colchero, J. Mlynek, Nanotech, 1, 141, (1990).
- [Mats02] M. Matsunami, N. Sataka, A. Iwase, Nucl. Instr. Meth. B 193, 830 (2002).
- [Mats03] M. Matsunami, N. Sataka, A. Iwase, S. Okayasu, Nucl. Instr. Meth. B209, 288 (2003).
- [McMi98] P. McMillan, The Physics and Technology of Amorphous SiO₂, edité par Roderick A. B. Devine, Plenum Press, New York and London (1998).
- [Meft05] A. Meftah, J. M. Costantini, N. Khalfaoui, S. Boudjadar, J. P. Stoquert, F. Studer, and M. Toulemonde, Nucl. Instrum. Methods B 237, 563 (2005).
- [Meft93] A. Meftah, F. Brisard, J.M. Constantini, M. Hage Ali, J.P. Stoquert, F. Studer and M. Toulemonde, Phys. Rev. B 48, 920 (1993).
- [Meft94] A. Meftah, F. Brisard, J.M. Costantini, E. Dooryhee, M. Hage-Ali, M. Hervieu, J.P. Stoquert, F. Studer, and M. Toulemonde, Phys. Rev. B 49, 12457 (1994).
- [Meft97] A. Meftah, M. Djebara, N. Khalfaoui, J.P. Stoquert, F. Studer, M. Toulemonde, Mat. Sci. Forum 248–249 (1997) 53.
- [Meft98] A. Meftah, M. Djebara, N. Khalfaoui, and M. Toulemonde, Nucl. Instrum. Methods. B 146, 431(1998).
- [Mies03] H. D. Mieskes, W. Assmann, F. Grüner, H. Kucal, Z. G. Wang, and M. Toulemonde, Phys. Rev. B 67, 155414 (2003).
- [Morr87] R. T. Morrison and Boyd R. N., Organic Chemistry, Boston, Allyn and Bacon, Inc, (1987)
- [Nagu75] H.M. Naguib, R. Kelly, Radiat. Eff. 25, 1, (1975)

- [Nord01] K. Nordlund, J. Peltola, J. Nord, J. Keinone, and R. S. Averback, *J. Appl. Phys.* **90**, 1710 (2001).
- [Nort60] L.C. Northcliffe, *Phys. Rev.* **120**, 1744 (1960).
- [Noug87] J. P. Nougier, *Méthode de calcul numérique*, ed. Masson, p237 à 241 (1987).
- [Novi91] C. H. Novion, A. Barbu, Ecole d'été "Matériaux sous irradiation", Giens, 16-25 septembre, (1991).
- [Olle80] J. P. Ollerhead, J. Bottiger, J. A. Davies, J L'ecuyer, HK Haugen, and N Matsunami, *Radiat. Eff.* **49**, 203 (1980).
- [Peie56] R. E. Peierls, *Quantum Theory of Solids* (Clarendon Press, Oxford) page.54, (1956).
- [Perr97] A. Perrin, *La microscopie à force atomique appliquée comme méthode de quantification pour la mise au point d'un nouvel immunoessai*. Thèse, Université Claude Bernard Lyon, p 191,(1997).
- [Pier00] O. Pierement, *Imagerie et Caractérisation Nanomécanique des Surfaces par Microscopie à Force Atomique*. Thèse Physique. Reims : Université de Reims Champagne-Ardenne, p 191, (2000).
- [Pier68] T.E. Pierce and M. Blann, *Phys. Rev.*, **173**,390 (1968).
- [Ritch82] R.H. Ritchie, C. Claussen, *Nucl. Instr. And Meth.* **198**,133 (1982).
- [Rota12] C. Rotaru, F. Pawlak, N. Khalifaoui, C. Dufour, J. Périère, A. Laurent, J.P. Stoquert, H. Lebius, and M. Toulemonde, *Nucl. Instrum. Methods. B* **272**, 9 (2012).
- [Rout04] C. Rotaru: PhD Dissertation, University of Caen, France, (2004). http://tel.archives_ouvertes.fr/docs/00/04/65/00/PDF/tel00005399.pdf
- [Schi01] G. Schiwietz, E. Luderer, G. Xiao, P.L. Grande, *Nucl. Instr. and Meth. B* **175-177**, 1 (2001).
- [Schw98] K. Schwartz, C. Trautmann, T. Steckenreiter, O. Geiß, and M. Krämer, *Phys. Rev. B* **58**, 11232 (1998).
- [Seit56] F. Seitz, J. S. Kohler, *Sol. St. Phys* **2**, 305 (1956).
- [Sigm74] P. Sigmund, *Appl. Phys. Lett* **25**, 169 (1974).
- [Sigm75] P. Sigmund, *Appl. Phys. Lett* **27**, 52 (1975).

- [Sigm81] P. Sigmund and C. Claussen, *J. Appl. Phys.* **52**, 990 (1981).
- [Skuj05] L. Skuja, M. Hirano, H. Hosono, and K. Kajihara. Defects in oxide glasses, *Physica Status Solidi (c)*, 2(1):15-24, (2005).
- [Stam90] P. Stampfli, K.H. Bennemann, *Phys. Rev. B* **42**, 7163 (1990).
- [Stam96] P. Stampfli, *Nucl. Instr. and Meth. B* **107**,138 (1996).
- [Stua04] B. Stuart, *Infrared Spectroscopy: Fundamentals and Applications*: John Wiley & Sons, (2004).
- [Sugd92] S. Sugden, C.J. Sofield, M.P. Murrell, *Nucl. Instr. Meth. B* **67**, 569 (1992).
- [Szen95] G. Szenes, *Phys. Rev. B* **51**, 8026 (1995).
- [Thev77] P. Thévenard, G. Guiraud, C. H. S. Dupuy, and B. Delaunay, *Rad. Eff.* **32**, 83 (1977).
- [Toul00] M. Toulemonde, C. Dufour, A. Meftah, and E. Paumier, *Nucl. Instrum. Methods B* **166**, 903 (2000).
- [Toul02] M. Toulemonde, W. Assmann, C. Trautmann, and F. Grüner, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 057602 (2002).
- [Toul03] M. Toulemonde, W. Assmann, C. Trautmann, F. Grüner, H.D. Mieskes, H. Kucal, Z.G. Wang, *Nucl. Instr. Meth. B* **212** (2003) 346.
- [Toul06] M. Toulemonde, W. Assmann, C. Dufour, A. Meftah, F. Studer, and C. Trautmann, *Mat. Fys. Medd.* **52**, 263 (2006).
- [Toul11] M. Toulemonde, W.J. Weber, G.S. Li, V. Shutthanandan, P. Kluth, T.F. Yang, Y.G. Wang, and Y. Zhang, *Phys. Rev. B* **83**, 054106 (2011).
- [Toul12] M. Toulemonde, W. Assmann, C. Dufour, A. Meftah, and C. Trautmann, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **277**, 28 (2012).
- [Toul16] M. Toulemonde, W. Assmann, and C. Trautmann, *Nucl. Instrum. Methods. B* **379**, 2 (2016).
- [Toul92] M. Toulemonde, C. Dufour, and E. Paumier, *Phys. Rev. B* **46**, 14362 (1992).
- [Toul93a] M. Toulemonde, Ch. Dufour, E. Paumier, *Phys. Rev. B* **46**, 14362 (1993).
- [Toul93b] M. Toulemonde, E. Paumier, Ch. Dufour, *Rad. Eff. Def. Sol.* **126**, 201 (1993).

- [**Toul96**] M. Toulemonde, J.M. Costantini, C. Dufour, A. Meftah, E. Paumier, and F. Studer, Nucl. Instrum. Methods B **116**, 37 (1996).
- [**Toul98**] M. Toulemonde, C. Dufour, E. Paumier, and F. Pawlak, MRS Proc. **504**, 99 (1998).
- [**Vech79**] J.A. Van Vechten, R. Tsu, F.W. Saris, Phys. Lett. 74A 6,422 (1979).
- [**Wali86**] M.P. R. Waligorski, R.N. Hamm, R. Katz, Nucl. Track. Radiat. Meas. 11, 309 (1986).
- [**Wang94**] Z. G. Wang, C. Dufour, E. Paumier, and M. Toulemonde, J. Phys. : Condens Matter **6**, 6733 (1994).
- [**Wats85**] C.C. Watson, T.A. Tombrello, Radiation Effects 89,263 (1985).
- [**Waut85**] M. Wautelet, P.B. Legrand, P.M. Petropoulos, Surf. Sci. 163, 230 (1985).
- [**Webb**] <<http://webbook.nist.gov>>.
- [**Wies94**] R. Wiesendanger, Scanning Probe Microscopy and spectroscopy Methods and Applications, Cambridge University Press, (1994).
- [**Yuan83**] Yuanxun Qiu, J.E. Griffith, Wen Jin Meng, T.A. Tombrello, Rad. Eff. 70, 231 (1983).
- [**Zieg85**] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark, "The Stopping and Range of Ions in Solids", vol. 1, Pergamon Press, UK, 1985.

Annexe : Établissement des deux équations différentielles couplées du modèle de la Pointe Thermique

Dans la modélisation de la pointe thermique, le matériau cible est conceptualisé comme étant constitué de deux systèmes physiques continus et interdépendants : Le système électronique (électrons excités) et le réseau atomique (phonons). L'hypothèse fondamentale de ce modèle est que des températures distinctes peuvent être définies pour chacun de ces systèmes.

- Le système électronique : Décrit par la distribution de Fermi-Dirac :

$$f(\varepsilon) = \frac{1}{\exp\left(\frac{\varepsilon - \mu}{k_B T_e}\right) + 1} \quad (\text{eq.1})$$

ε est l'énergie d'un électron, μ le potentiel chimique dont la valeur à 0 K est égale à l'énergie de Fermi et T_e la température des électrons.

Ce système reçoit initialement toute l'énergie cinétique déposée par le projectile incident.

- Le système du réseau atomique : Conceptualisé comme un ensemble de phonons et régi par la statistique de Bose-Einstein.

$$f(\varepsilon) = \frac{1}{\exp\left(\frac{h\omega}{k_B T_a}\right) - 1} \quad (\text{eq. 2})$$

$h\omega$ est l'énergie d'un phonon dont la valeur maximale est définie par l'énergie de Debye $h\omega_D$, T_a la température du réseau atomique.

A la suite du dépôt d'énergie sur les électrons, ces derniers se thermalisent à travers l'interaction électron – électron. L'énergie est ensuite transmise au réseau via l'interaction électron – phonon. Dans ce cas, la température du réseau peut atteindre une valeur importante pour permettre un endommagement. L'élévation de température du réseau va dépendre des coefficients de diffusion de la chaleur sur les électrons et du temps d'interaction électron – phonon.

On découpe la phase amorphe sous forme de couches cylindriques d'épaisseur dr . Chaque couche cylindrique des deux systèmes (électronique et réseau) à la distance r de la trajectoire du projectile est caractérisée par sa chaleur spécifique C_v et sa conductivité

thermique K à la température T . L'équation générale définissant la répartition des températures en chaque point de la couche cylindrique s'obtient en écrivant le principe de la conservation de l'énergie pour l'élément considéré.

La quantité de chaleur dQ échangée est donnée par l'expression :

$$dQ = C_v dT + l dV = C_p dT + h dP$$

à volume constant : $dQ = C_v dT$

Suite à l'augmentation de la chaleur, l'énergie d'une tranche cylindrique i varie de dQ pendant l'intervalle de temps dt .

Soient l'axe (Ox) porté par la trajectoire de l'ion incident et r la distance par rapport à cette trajectoire (voir figure 1 (annexe)). Suite à l'échauffement, la variation d'énergie s'écrit alors :

$dQ_i = C_i dT (2\pi r dr dx)$ C_i est définie par unité de volume

$$\frac{dQ_i}{dt} = C_i \frac{dT}{dt} 2\pi r dr dx \quad (\text{eq. 3})$$

Cette variation d'énergie est due à la variation du flux de chaleur, pour la tranche cylindrique i , donnée par la première loi de Fourier.

$$j = -K \text{grad}T = \frac{dQ}{dS dt} \quad (\text{eq. 4})$$

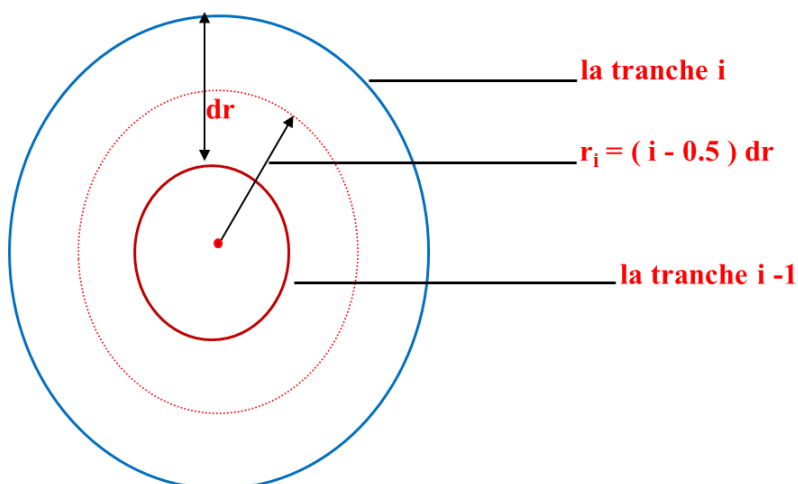


Figure 1 (Annexe) : représentation des tranches cylindriques.

Pour déterminer la variation d'énergie au point r_i défini par $r_i = (i - 0.5) dr$, nous calculons la variation du flux aux points $r_i + \frac{dr}{2}$ et $r_i - \frac{dr}{2}$. La quantité de chaleur qui entre par unité de temps à travers la surface dS_1 dans la direction Ox est égale à :

$$-K_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial r} \right)_{r_i - dr/2} dS_1 = -K_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial r} \right)_{r_i - dr/2} 2\pi(r_i - dr/2) dx \quad (a)$$

La quantité de chaleur qui sort de la surface dS_2 est

$$-K_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial r} \right)_{r_i + dr/2} dS_2 = -K_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial r} \right)_{r_i + dr/2} 2\pi(r_i + dr/2) dx \quad (b)$$

En utilisant le théorème de la moyenne :

$$f(x \pm \Delta x) = f(x) \pm \frac{\partial f}{\partial x} \Delta x$$

Le bilan de cette conduction s'écrit par unité de volume :

$$(a) - (b) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_i \frac{\partial T_i}{\partial r} \right)_{r_i}$$

Soit $A_e(r, t)$ l'énergie déposée sur le système électronique par le projectile et $B_n(r, t)$ l'apport énergétique supplémentaire issu du dépôt d'énergie nucléaire, le bilan d'énergie s'écrira pour les deux systèmes comme :

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r}) - g(T_e - T_a) + A_e(r, t) \quad (\text{eq. 5})$$

$$C_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial r}) + g(T_e - T_a) + B_n(r, t) \quad (\text{eq. 6.})$$

$g(T_e - T_a)$ représente l'énergie d'interaction électron-phonon. L'élévation de la température des deux systèmes est régie par le système d'équations différentielles couplées et non linéaires du fait de la dépendance en température de tous les coefficients.

Du point de vue de la pointe thermique, le transfert d'énergie des ions incidents vers le matériau se fait en deux n deux étapes distinctes :

1. **Dépôt d'énergie** : L'énergie des ions incidents est déposée sur les électrons en un temps extrêmement court, de l'ordre de 10^{-15} s. Les électrons se **thermalisent** ensuite par l'interaction électron-électron.

2. **Transfert Inter-systèmes** : L'énergie est ensuite transmise du gaz d'électrons au réseau via l'**interaction électron-phonon**. Ce processus de couplage est plus lent, se déroulant sur une période variant de 10^{-13} s à 10^{-10} s.

Au cours de ce processus, l'énergie diffuse radialement dans les deux sous-systèmes. Le bilan de transfert d'énergie se traduit par l'écriture des deux équations (eq. 5 et eq. 6) et s'établit dans une géométrie cylindrique dont l'axe (Ox) est l'axe de passage des ions ; r la distance à cet axe et t le temps comme illustré sur la figure 2 (annexe).

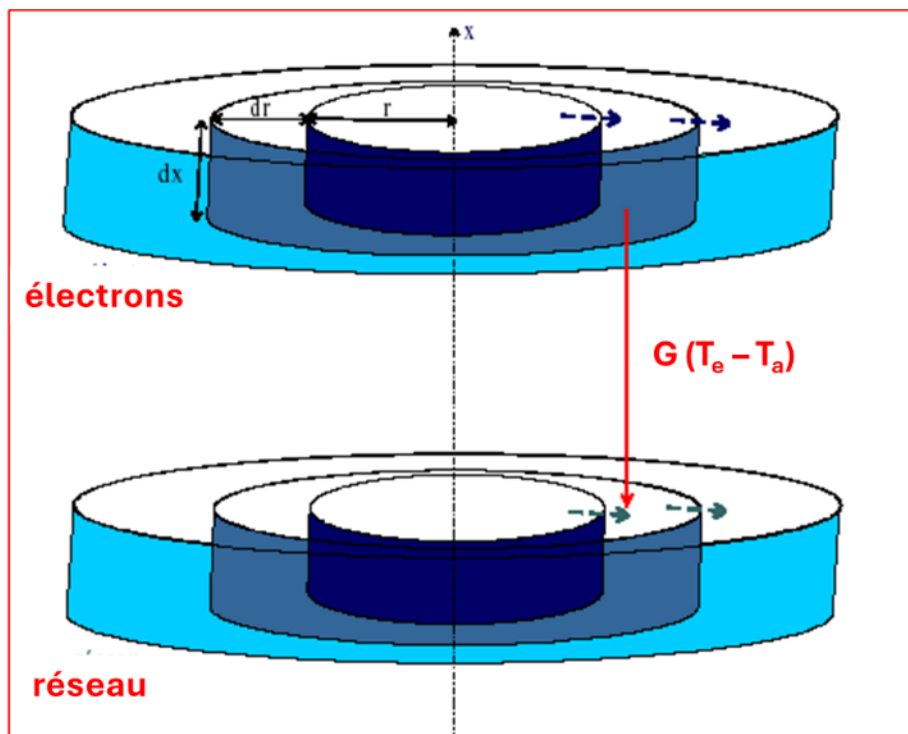


Figure 2 (annexe) : Transfert d'énergie entre le gaz d'électrons et le réseau, en géométrie cylindrique. Les flèches en pointillés représentent la diffusion d'énergie dans les deux sous-systèmes.

Liste des figures

Fig. I.1	<i>Schéma présentant le pouvoir d'arrêt en fonction de l'énergie des projectiles. A basse énergie, le pouvoir d'arrêt nucléaire est dominant.</i>	9
Fig. I.2	<i>Le potentiel d'ionisation moyen I en fonction de la charge Z_2 de plusieurs atomes^[Zieg80]. La droite correspond à $\hat{I} = 10 Z_2$.</i>	10
Fig. I.3	<i>Charge efficace en fonction de l'énergie des ions dans une cible d'aluminium^[Bala92]. Les cercles ouverts représentent les ions Pb et les cercles pleins les ions Xe. Les courbes épaisses correspondent à la formule de Barkas^[Bark63], tandis que les courbes fines suivent l'expression de Huber et al.^[Hube89] (lignes continues pour les ions Xe et discontinues pour les ions Pb).</i>	11
Fig. I.4	<i>Comparaison entre la perte d'énergie nucléaire et électronique dans le cas des ions Uranium sur α-SiO₂, calculée avec le code SRIM^[Birs80].</i>	13
Fig. I.5	<i>Parcours projeté R_p d'un ion-projectile dans une cible solide.</i>	13
Fig. I.6	<i>Variation du parcours projeté en fonction de l'énergie pour différents ions incidents dans une cible de silice vitreuse, calculée à l'aide du code SRIM^[Birs80].</i>	14
Fig. I.7	<i>Critère d'ionocité déterminant l'amorphisation des isolants soumis à une irradiation par ions lourds de basse énergie^[Nagu75].</i>	17
Fig. I.8	<i>Rayons de trace pour deux vitesses différentes^[Mef93] dans l'oxyde magnétique Y₃Fe₅O₁₂ (grenat d'yttrium-fer) et morphologie des traces correspondantes (A représente la section efficace mesurée).</i>	19
Fig. I.9	<i>Énergie déposée radialement autour de la trajectoire d'un ion incident par les électrons δ émis dans le quartz, en fonction du rayon r (d'après Kobetich et al.^[Kobe68]). Les courbes sont obtenues pour différentes vitesses réduites du projectile, $\beta = V_1/c$, avec c la vitesse de la lumière.</i>	20
Fig. I.10	<i>Schéma illustrant le mécanisme de formation des traces latentes selon le modèle de l'explosion coulombienne dans les matériaux inorganiques^[Flei75].</i>	21
Fig. I.11	<i>Représentation schématique des étapes successives dans un matériau solide soumis à une irradiation, illustrant le modèle de la pointe thermique^[Tou192].</i>	22
Fig. II.1	<i>Représentation schématique des différentes formes allotropiques de la silice.</i>	28
Fig. II.2	<i>Structure cristallographique de la maille élémentaire de la silice.</i>	30
Fig. II.3	<i>Représentation schématique de deux tétraèdres [SiO₄] mettant en évidence les angles θ et ϕ définis entre les liaisons interatomiques.</i>	30
Fig. II.4	<i>Diagramme de bandes du système Si-SiO₂, obtenu par Williams^[Will65] à partir de mesures de photoémission.</i>	31
Fig. II.5	<i>Différents procédés de modification des matériaux en fonction de l'énergie du faisceau^[Dian18].</i>	35

Fig. II.6	<i>Images MET haute résolution de deux traces voisines créées dans le silicium par irradiation avec des agrégats C₆₀ de 30 MeV, en incidence normale^[Dun198].</i>	37
Fig. II.7	<i>Spectre IR des échantillons a-SiO₂/Si vierges et irradiés avec des ions^[Busc 92] Ni (E=10 MeV/u ; S_e =5 keV/nm) et Xe (E=5.9 MeV/u ; S_e =14.6 keV/nm).</i>	39
Fig. II.8	<i>Image de Microscopie Electronique à transmission de haute résolution^[Mef94] pour un fragment amorphe du SiO₂ cristallin après une irradiation avec des ions Pb (E = 0.3 MeV/u (S_e ≈ 14 keV/nm).</i>	41
Fig. III.1	<i>Schéma de principe du GANIL.</i>	46
Fig. III.2	<i>Dispositif ARIBE avec les différentes lignes de faisceaux.</i>	48
Fig. III.3	<i>Schéma du dispositif de balayage utilisé pour la normalisation de l'intensité du faisceau d'ions sur ARIBE.</i>	48
Fig. III.4	<i>Photo du porte échantillon utilisé pour les irradiations.</i>	49
Fig. III.5	<i>Différents modes de vibration.</i>	50
Fig. III.6	<i>Modes de vibration de l'atome d'oxygène dans la molécule de SiO₂.</i>	51
Fig. III.7	<i>Interféromètre de Michelson.</i>	54
Fig. III.8	<i>Spectromètre à Transformée de Fourier de type NICOLET iS10 de marque thermo scientifique (LRPCSI).</i>	55
Fig. III.9	<i>Principe de fonctionnement du microscope à force atomique.</i>	57
Fig. III.10	<i>Tube piézo-électrique.</i>	62
Fig. III.11	<i>Microscope à force atomique utilisé pour les mesures expérimentales réalisées dans cette étude (Laboratoire LCIMN, Université de Sétif-1) ?</i>	63
Fig. IV.1	<i>Variation des pertes d'énergie nucléaire et électronique dans la silice vitreuse irradiée par des ions azote et argon, simulée avec le code SRIM^[Birs80].</i>	66
Fig. IV.2	<i>Variation des parcours projetés des ions azote et argon dans la silice vitreuse, obtenue par simulation avec le code SRIM^[Birs80].</i>	66
Fig. IV.3	<i>Évolution des spectres infrarouges de la silice vitreuse (SiO₂) dans l'intervalle 900-1350 cm⁻¹, enregistrés après irradiation par des ions N⁵⁺ (75 keV), pour les différentes fluences indiquées sur les figures.</i>	68
Fig. IV.4	<i>Évolution des spectres infrarouges de la silice vitreuse (SiO₂) dans l'intervalle 900-1350 cm⁻¹, enregistrés après irradiation par des ions Ar¹¹⁺ (165 keV) (b), pour les différentes fluences indiquées sur les figures.</i>	68
Fig. IV.5	<i>Ajustement du spectres infrarouges pour une cible non irradiée de la silice vitreuse (SiO₂) non irradiée dans la plage 900 -1350 cm⁻¹, avec deux gaussiennes situées à 1197 cm⁻¹ et 1078 cm⁻¹.</i>	69
Fig. IV.6	<i>Spectres infrarouges de la silice vitreuse irradiée avec des ions N⁵⁺ de 75 keV, pour une fluence de 9.28 x 10¹⁴ ions/cm². Les lignes en pointillés correspondent aux contributions ajustées des bandes situées à 1044 cm⁻¹, 1078 cm⁻¹ et 1197 cm⁻¹ (mentionnées sur les figures). La courbe rouge continue représente la somme de ces bandes ajustées, superposée aux données expérimentales (points noirs).</i>	69
Fig. IV.7	<i>Spectres infrarouges de la silice vitreuse irradiée avec des ions N⁵⁺ de 75 keV, pour une fluence de 1.8 x 10¹⁵ ions/cm². Les lignes en pointillés correspondent aux contributions ajustées des bandes situées à 1044</i>	70

	cm^{-1} , 1078 cm^{-1} et 1197 cm^{-1} (mentionnées sur les figures). La courbe rouge continue représente la somme de ces bandes ajustées, superposée aux données expérimentales (points noirs).	
Fig. IV.8	Spectres infrarouges de la silice vitreuse irradiée avec ions Ar^{11+} de 165 keV, pour une fluence de 1.1×10^{13} ions/cm ² . Les lignes en pointillés correspondent aux contributions ajustées des bandes situées à 1044 cm^{-1} , 1078 cm^{-1} et 1197 cm^{-1} (mentionnées sur les figures). La courbe rouge continue représente la somme de ces bandes ajustées, superposée aux données expérimentales (points noirs).	70
Fig. IV.9	Spectres infrarouges de la silice vitreuse irradiée avec ions Ar^{11+} de 165 keV, pour une fluence de 2×10^{13} ions/cm ² . Les lignes en pointillés correspondent aux contributions ajustées des bandes situées à 1044 cm^{-1} , 1078 cm^{-1} et 1197 cm^{-1} (mentionnées sur les figures). La courbe rouge continue représente la somme de ces bandes ajustées, superposée aux données expérimentales (points noirs).	71
Fig. IV.10	Évolution des aires de la bande à 1078 cm^{-1} (courbe noire) et de la bande à 1044 cm^{-1} (courbe rouge) en fonction de la fluence ionique pour les ions N^{5+} d'énergie 75 keV. La somme des deux aires est également représentée (courbe bleue en pointillés), mettant en évidence que la diminution de l'aire de la bande à 1044 cm^{-1} est compensée par l'augmentation de celle de la bande à 1078 cm^{-1} . Les courbes pleines et en pointillés correspondent aux ajustements des données expérimentales selon la loi de Poisson ^[Thev77] .	72
Fig. IV.11	Évolution des aires de la bande à 1078 cm^{-1} (courbe noire) et de la bande à 1044 cm^{-1} (courbe rouge) en fonction de la fluence ionique pour les ions Ar^{11+} d'énergie 165 keV. La somme des deux aires est également représentée (courbe bleue en pointillés), mettant en évidence que la diminution de l'aire de la bande à 1044 cm^{-1} est compensée par l'augmentation de celle de la bande à 1078 cm^{-1} . Les courbes pleines et en pointillés correspondent aux ajustements des données expérimentales selon la loi de Poisson ^[Thev77] .	72
Fig. IV.12	Évolution de l'aire du pic de la bande d'absorption à 1044 cm^{-1} en fonction de la fluence, pour des irradiations avec des ions N^{5+} à 75 keV. Les courbes continues correspondent aux ajustements des données expérimentales selon la loi de Poisson ^[Thev77] .	74
Fig. IV.13	Évolution de l'aire du pic de la bande d'absorption à 1044 cm^{-1} en fonction de la fluence, pour des irradiations avec des ions Ar^{11+} à 165 keV. Les courbes continues correspondent aux ajustements des données expérimentales selon la loi de Poisson ^[Thev77] .	74
Fig. IV.14	Images AFM ($5\text{ }\mu\text{m} \times 5\text{ }\mu\text{m}$) en (a) deux dimensions et en (b) trois dimensions d'un échantillon de silice vitreuse vierge (non irradié).	77
Fig. IV.15	Images AFM ($5\text{ }\mu\text{m} \times 5\text{ }\mu\text{m}$) en deux dimensions et en trois dimensions d'un échantillon de silice vitreuse irradié par des ions N^{5+} à une énergie de 75 keV et avec une fluence de 2×10^{14} ions/cm ² .	78
Fig. IV.16	Images AFM ($5\text{ }\mu\text{m} \times 5\text{ }\mu\text{m}$) en deux dimensions et en trois dimensions d'un échantillon de silice vitreuse irradié par des ions Ar^{11+} à une énergie de 165 keV et avec une fluence de 2×10^{15} ions/cm ² .	79

Fig. IV.17	Variation de la chaleur spécifique atomique en fonction de la température	83
Fig. IV.18	Évolution de la conductivité thermique atomique en fonction de la température.	83
Fig. IV.19	Évolution des rayons de traces en fonction de la perte d'énergie ^[Toul86] dans l' α -SiO ₂ , à partir des données publiées (points noirs) ^[Yuan83, Sugd92, Mats02, Mats03, Arno03, Chau97] et des résultats obtenus pour des irradiations à 0.2 MeV/u ^[Toul11] et 5 MeV/u ^[Rota12] . Les courbes pleines représentent les calculs du modèle de la pointe thermique avec $\lambda = 2.5$ nm, tandis que les courbes pointillées correspondent à $\lambda = 3$ nm. Les points rouge et vert indiquent respectivement nos résultats expérimentaux pour les irradiations à l'azote (75 keV) et à l'argon (165 MeV).	85
Fig. IV.20	Évolution du libre parcours moyen λ en fonction de l'énergie de gap E_g pour différents matériaux. La courbe en bleu représente un ajustement servant de guide visuel pour mieux suivre l'évolution des données.	85
Fig. IV.21	Évolution temporelle de l'énergie transférée aux atomes à différentes distances radiales [nm] par rapport à la trajectoire ionique, pour les ions N ⁵⁺ . Les courbes représentent les contributions issues uniquement de la perte d'énergie nucléaire (S_n), uniquement de la perte d'énergie électronique (S_e), ainsi que leur combinaison (S_{total}), comme indiqué. Les calculs selon le modèle u-TSM ont été effectués avec $\lambda = 2.5$ nm. Pour l'irradiation à l'azote (a, c), le seuil d'énergie de fusion ($E_m = 0.38$ eV/atome) est dépassé dans un rayon de 0.6 nm.	86
Fig. IV.22	Évolution temporelle de l'énergie transférée aux atomes à différentes distances radiales [nm] par rapport à la trajectoire ionique, pour les ions Ar ¹¹⁺ . Les courbes représentent les contributions issues uniquement de la perte d'énergie nucléaire (S_n), uniquement de la perte d'énergie électronique (S_e), ainsi que leur combinaison (S_{total}), comme indiqué. Les calculs selon le modèle u-TSM ont été effectués avec $\lambda = 2.5$ nm. Pour l'irradiation à l'azote (d, f), le seuil d'énergie de fusion ($E_m = 0.38$ eV/atome) est dépassé dans un rayon de 1.6 nm.	87
Fig. IV.23	Calculs effectués avec le modèle u-TSM pour une énergie de faisceau d'azote de 75 keV, un pouvoir d'arrêt nucléaire $S_n = 80$ eV/nm et un libre parcours $\lambda = 2.5$ nm. (a) évolution de l'énergie par atome en fonction du temps pour différents rayons de trace ; la ligne horizontale indique l'énergie correspondant à la température de fusion ; (b) évolution temporelle du rendement de pulvérisation, calculé par intervalles radiaux de 0.4 nm.	90
Fig. IV.24	Calculs effectués avec le modèle u-TSM pour une énergie de faisceau d'argon de 165 keV, un pouvoir d'arrêt nucléaire $S_n = 420$ keV/nm et un libre parcours $\lambda = 2.5$ nm.	90

Liste des tableaux

Tableau II.1	<i>Caractéristiques comparatives de la silice cristalline et de la silice amorphe</i>	27
Tableau IV.1	<i>Rayons de dommage expérimentaux et modélisés pour l'irradiation par des ions N et Ar. Ce tableau indique : l'énergie des ions (E), les pertes d'énergie électronique (S_e) et nucléaire (S_n) obtenues à partir du code SRIM^[Bier80], le rayon de dommage mesuré expérimentalement (R_{exper}), ainsi que le rayon de dommage (R_{model}) estimé selon le modèle unifié de la pointe thermique.</i>	75
Tableau IV.2	<i>Paramètres utilisés pour la simulation par le code u-STM.</i>	82

Résumé : Cette thèse a étudié les modifications structurales induites dans la silice vitreuse (SiO_2) par irradiation ionique à basse énergie, en utilisant des ions N^{5+} à 75 keV et Ar^{11+} à 165 keV. L'objectif principal était de discerner la contribution respective des pertes d'énergie nucléaire et électronique aux transformations observées. La spectroscopie infrarouge par transformée de Fourier (FTIR) a révélé une diminution de l'intensité de la bande TO3 à 1078 cm^{-1} , accompagnée de l'apparition d'un pic à 1044 cm^{-1} , traduisant une distorsion des angles de liaison Si–O–Si et une compaction du réseau vitreux. Les mesures par microscopie à force atomique (AFM) ont montré que les faibles dépôts d'énergie nucléaire, tels que 80 eV/nm pour les ions N^{5+} , n'entraînent que des modifications mineures de la rugosité de surface, tandis que les dépôts plus importants, de l'ordre de 420 eV/nm pour les ions Ar^{11+} , provoquent une augmentation significative de la rugosité et l'émergence de reliefs nanométriques marqués. L'analyse comparative avec le modèle unifié de la pointe thermique (u-TSM) a confirmé que la perte d'énergie nucléaire est le mécanisme dominant responsable de ces changements structuraux et morphologiques, tandis que la perte d'énergie électronique a un rôle secondaire. Cette étude approfondit la compréhension des mécanismes d'irradiation à basse énergie dans la silice vitreuse, avec des perspectives pour le développement de matériaux plus résistants aux environnements radiatifs extrêmes.

Mots clés : Silice vitreuse, Irradiation ionique, Modifications structurales, Spectroscopie Infrarouge, Modèle de la pointe thermique.

Summary: This thesis investigates structural changes induced in vitreous silica (SiO_2) by low-energy ion irradiation using N^{5+} ions at 75 keV and Ar^{11+} ions at 165 keV. The study aims to distinguish the respective roles of nuclear and electronic energy losses in these transformations. Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) revealed a decrease in the TO3 band at 1078 cm^{-1} alongside the emergence of a new peak at 1044 cm^{-1} , indicating network compaction and distortion of Si–O–Si bond angles. Atomic force microscopy (AFM) measurements showed that low nuclear energy deposits, such as 80 eV/nm for N^{5+} ions, cause only minor surface roughness changes, whereas higher deposits around 420 eV/nm for Ar^{11+} ions lead to significant roughness increase and the formation of pronounced nanoscale surface features. Comparison with the unified thermal spike model (u-TSM) confirmed that nuclear energy loss predominantly drives the observed structural and morphological modifications, with electronic losses playing a secondary role. This work advances understanding of low-energy ion irradiation effects on vitreous silica and provides insights valuable for designing radiation-resistant materials in nuclear, space, and microelectronic applications.

Keywords: Vitreous silica, Ion irradiation, Structural modifications, Infrared spectroscopy, Thermal spike model.

ملخص: درست هذه الأطروحة التغيرات الهيكلية التي تحدث في السليكا الزجاجية (SiO_2) نتيجة للإشعاع الأيوني منخفض الطاقة باستخدام أيونات N^{5+} بطاقة 75 keV وأيونات Ar^{11+} بطاقة 165 keV. كان الهدف الرئيسي هو تمييز الأدوار النسبية لفقدان الطاقة النووية والإلكترونية في التحولات الملحوظة. كشفت التحليلات الطيفية بالأشعة تحت الحمراء بتحويل فورييه (FTIR) عن انخفاض في شدة النطاق TO3 عند 1078 cm^{-1} سم⁻¹ مع ظهور ذروة جديدة عند 1044 cm^{-1} ، مما يدل على تشويه زوايا الرابطة Si–O–Si وانضغاط الشبكة الزجاجية. أظهرت قياسات المجهر القوة الذرية (AFM) أن الترسيبات المنخفضة للطاقة النووية مثل 80 eV/nm لأيونات N^{5+} تسبب تغييرات طفيفة في خشونة السطح، في حين أن الترسيبات الأكبر حوال 420 eV/nm لأيونات Ar^{11+} تؤدي إلى زيادة ملحوظة في الخشونة وظهور تضاريس نانوية واضحة. أكدت المقارنة مع نموذج قمة الحرارة الموحد (u-TSM) أن فقدان الطاقة النووية هو الآلية الرئيسية المسؤولة عن هذه التغيرات الهيكلية والشكلية، بينما يلعب فقدان الطاقة الإلكترونية دورًا ثانويًا. تعمق هذه الدراسة فهم آليات الإشعاع منخفض الطاقة في السليكا الزجاجية مع آفاق لتطوير مواد أكثر مقاومة للبيئات الإشعاعية القاسية.

الكلمات المفتاحية: السليكا الزجاجية، الإشعاع الأيوني، التعديلات الهيكلية، الطيفية تحت الحمراء، نموذج الذروة الحرارية.