

Université 20 Août 1955-Skikda

جامعة 20 أوت 1955 سكيكدة

Faculté des Sciences

كلية العلوم

Département : Chimie

قسم: الكيمياء.

Ref :.....



المرجع:

Thèse présentée en vue de l'obtention du diplôme de

Doctorat LMD

Filière Chimie

Spécialité : Chimie des matériaux

Titre :

**Etude du phénomène d'interdiffusion atomique dans des multicouches
nanométriques métal/métal et métal/ semi-conducteur induit par
irradiation aux ions lourds.**

Présenté par :

M^{elle} Imane BOUHAREB

Soutenue le : 14/07 /2022

Devant le jury :

Pr. Kabir Abdennour	Président	Université de Skikda
Pr. Chettah Abd Elhak	Directeur de thèse	Université de Skikda
Dr. Sedrati Charafeddine	Co-Directeur de thèse	Ecole Natio. polytech. Constantine
Pr. Derafa Achour	Examineur	Université de Sétif 1
Pr. Akkari Hocine	Examineur	Université de Batna 2
Pr. Chiha Mahdi	Examineur	Université de Skikda

REMERCIEMENTS

Mes remerciements vont tout premièrement à ALLAH le tout puissant pour la volonté, la santé et la patience qu'il m'a donné pour réaliser ce travail.

*J'exprime toute ma gratitude au **Pr. Abdelhak CHETTAH**, car il a été un excellent encadreur. J'ai bénéficié de ses grandes connaissances scientifiques et de sa rigueur. Il a toujours été disponible et très ouvert à toutes les discussions. Il a suivi attentivement et activement la progression de mon travail. Il a toujours su comment me diriger et me soutenir. Je le remercie vivement pour la confiance et la considération qu'il m'a donnée.*

*Je tiens aussi à exprimer ma profonde reconnaissance à mon Co-encadreur **Dr. Sedrati Charfeddine** de l'école polytechnique de Constantine, pour ses nombreux conseils et avoir suivi avec le plus grand soin la progression de ce travail*

*Je remercie l'ensemble des membres de jury qui ont étudié ce travail avec intérêt. Je remercie le président de jury le **Pr. Kabir Abdennour** et doyen de la faculté des sciences, vous nous avez fait le grand honneur d'accepter la présider ce jury.*

*Je tiens à remercier les Professeurs **Pr. Derafa Achour** de l'Université Ferhat ABBAS-Sétif 1 et le **Pr. Akkari Hocine** de l'Université Chahid Mostefa Ben Boulaid –Batna et le **Pr. Chiha Mahdi** de l'Université de Skikda pour l'honneur qu'ils m'ont fait de participer au jury et d'avoir consacré du temps pour examiner ce travail.*

*Je remercie encore tous nos collaborateurs indiens (**Prof. Pratap Kumar Sahoo, Dr. Vantari Siva** et **Dr. Bidyadhar Das**) pour leur aide et contribution dans le présent travail).*

Mes remerciements s'adressent aussi à toutes les personnes qui m'ont aidé de près ou de loin dans le cadre de cette thèse.

Dédicace

Je dédie ce projet :

A ma chère mère,

A mon cher père,

A ma fille

Qui ont jamais cessé, de formuler des prières à mon égard, de me soutenir

*A mon frère, A ma chère sœur, Pour ses soutiens moral et leurs conseils
précieux tout au long de mes études.*

A toute ma famille.

TABLE DES MATIERES

Introduction	I-III
---------------------------	-------

Chapitre I : Interaction ion avec matière condensée

I.1. Paramètres de l'interaction ion-matière.....	2
I.1.1. Le pouvoir d'arrêt et le parcours.....	2
I.1.1.1. Le pouvoir d'arrêt.....	2
I.1.1.2. Le parcours de l'ion dans la matière.....	3
I.1.1.3. Simulation par SRIM.....	4
I.1.2. Flux et fluence.....	5
A. Flux (Φ)	5
B. Fluence (F)	5
I.2. Régime à bases énergies (Les collisions élastiques)	5
I.2.1. Le pouvoir d'arrêt nucléaire.....	6
I.2.2. Défauts induits par les collisions nucléaires.....	7
A. Défaut ponctuels.....	7
B. Déplacements produits par un choc primaire (Une cascade de déplacement).....	8
C. Nombre d'atomes déplacés.....	8
D. Formation de pointe thermique élastique.....	10
I.3. Les collisions inélastiques	10
I.3.1. Le pouvoir d'arrêt électronique de la cible	11
I.3.2. Défauts induits par irradiation aux ions lourds.....	12
A. Création de défauts par excitation électronique.....	12
B. Modèle d'explosion de Coulomb.....	14
C. Le modèle de la pointe thermique.....	15
I.4. Les détails des calculs du modèle de pointe thermique.....	16

TABLE DES MATIERES

I.4.1. Description mathématique.....	16
I.4.2. A haute énergie.....	18
I.4.3. Basse énergie.....	19
I.4.4. Critère de transformation de phase.....	20
Bibliographie.....	21

Chapitre II : Mélange ionique

II.1. Le Mélange ionique (M.I)	24
II.2. Les configurations utilisées dans l'étude de mélange ionique.....	25
II.3. Les paramètres de mélange ionique.....	26
II.4. Mécanisme de mélange ionique	27
II.4.1. Le Mélange ionique à basse énergie.....	28
II.4.1.1. Régime athermique du mélange	28
II.4.1.1.1. Mélange balistique.....	28
a. Mélange par ions de recul.....	29
b. Mélange par déplacement en cascade.....	29
II.4.1.1.2. Mélange dépendant des propriétés thermochimiques.....	34
A. Modèle théorique de la pointe thermique locale.....	35
B. Modèle de la pointe thermique global.....	36
II.4.1.2. Le Mélange ionique à haute énergie.....	37
II.6. Calcul le taux de mélange expérimentalement.....	39
II.7. L'importance de système (Au-Ni)	40
II.8. Le but de ce travail.....	43
Bibliographie.....	44

TABLE DES MATIERES

Chapitre III : Dispositifs expérimentaux et Méthodes d'analyses

III.1. Technique de dépôt des couches minces.....	48
III.1.1. Procédés chimique.....	49
A. Sol -gel.....	49
B. ALD (Atomic Layer Deposition)	49
C. Les méthodes CVD (dépôt chimique en phase vapeur)	49
D. L'électrodéposition.....	50
III.1.2. Procédés Physique.....	50
A. Dépôt par pulvérisation.....	51
B. Dépôt par évaporation thermique.....	51
C. Evaporation par bombardement électronique.....	53
D. Evaporation par effet Joule.....	54
III.2. Elaboration des échantillons.....	55
III.2.1. Les propriétés des matériaux utilisés.....	55
III.2.2. Préparation du substrat.....	55
III.2.3. Dépôt des Couches minces.....	56
III.3. Irradiation des échantillons.....	56
III.3.1. Installation à faisceaux d'ions à faible énergie.....	57
III.3.2. Accélérateur d'ions lourd.....	58
III.4. Techniques d'analyse.....	60
III.4.1 Spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford (RBS)	60
III.4.1.1. Dispositif expérimental.....	60
III.4.1.2 Les concepts de bases.....	61
A. Facteur cinématique.....	62
B. La section efficace différentielle.....	62

TABLE DES MATIERES

III.4.1.3. Simulation du spectre.....	63
III.4.2. La diffraction des rayons X.....	64
III.4.2.1. Principe de la technique.....	64
III.4.2.2.Appareillage.....	65
III.4.2.3.Exploitation d'un spectre.....	66
A. Calcul des paramètres de maille.....	67
B. La taille des cristallites.....	67
III.4.3. La microscopie électronique à balayage d'émission de champ.....	68
III.4.3.1.Le principe	68
Bibliographies.....	69
Chapitre IV : Résultats et Discussion	
IV.1.Introduction.....	71
IV.2.Résultats et discussions.....	73
IV.2.1.Résultats de Microscopie électronique à balayage d'émission de champ (FESEM).....	73
IV.2.2. Les résultats de diffraction des rayons X (DRX)	78
A. Echantillon non irradiée.....	78
B.Echantillons irradiées avec des ions de Xe à 500 keV.....	79
C.Echantillons irradiées avec des ions de Au à 100 MeV.....	80
IV.2.3.Discussion des résultats de DRX.....	81
IV.2.4.Spectres de rétrodiffusion Rutherford (RBS)	86
A. Echantillon vierge.....	86
B. Echantillons irradiés.....	87
IV.3.Résultat du calcul avec le modèle de la pointe thermique.....	90
IV.3.1.Discussion des calculs avec le modèle de la pointe thermique.....	90
A. Irradiation avec des ions Au de 100 MeV (SHI)	90

TABLE DES MATIERES

B. Irradiation avec des ions de Xe à énergie de 500 keV.....	92
Bibliographies.....	98
Conclusion générale.....	101

Liste des figures

Chapitre I : Interaction ion avec la matière condensée

- Figure I.1** : Le parcours projeté R_p d'ion dans un solide3
- Figure I.2** : Pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire en fonction de l'énergie : cas d'un faisceau de l'ion lourds Xe dans (Au-Ni)4
- Figure I.3** : La collision élastique entre deux particules.....5
- Figure I.4** : Pouvoir d'arrêt nucléaire en fonction de l'énergie : cas d'un faisceau des ions Xe, Au, U, Pb dans la cible d' Au. (SRIM 2008).....7
- Figure I.5** : Représentation schématique d'une cascade de déplacements.....9
- Figure I.6** : Simulation des collisions par TRIM (les cascades) dans la couche d' Au irradiées avec des ions Ar et Xe d'énergie de 200 keV9
- Figure I.7** : Processus inélastiques pendant l'interaction projectile chargé – atome.....10
- Figure I.8** : Pouvoir d'arrêt électronique en fonction de l'énergie : cas d'un faisceau des ions Xe, Au, U, Pb dans la cible d' Au.....12
- Figure I.9** : Images MET montrant des coupes transversales enregistrées sur (a) $Gd_2Ti_2O_7$ et (b) $Nd_2Zr_2O_7$ irradié avec des ions de U d'énergie 120 MeV à $2 \times 10^{11} \text{ cm}^2$13
- Figure I.10** : Vue en plan avec TEM sur (a et b) $Gd_2Ti_2O_7$, (c et d) Gd_2ZrTiO_7 irradiés avec des ions de U de l'énergie 120 MeV à $2 \times 10^{11} \text{ cm}^2$ 14
- Figure I.11** : Images MET du zircon après l'irradiation aux ions Pb de 10 GeV pour une fluence de $5 \times 10^{10} \text{ ions/cm}^2$ 15
- Figure I.12** : Représentation schématique du modèle de pointe thermique et de la formation de trajectoire latente autour du trajet ionique dans le réseau atomique.....17

Chapitre II : Mélange ionique

- Figure II.1** : Les configurations typiques pour l'étude du mélange de faisceaux d'ions.....26
- Figure II.2** : Résultats RBS du mélange des deux systèmes W-Cu et Au-Cu.....29
- Figure II.3** : L'influence de l'énergie de cohésion sur le taux de mélange pour différents systèmes.....32
- Figure II.4** : Le nombre $N(\Phi)$, d'atomes de Cu de recul dans le substrat A1 irradiées avec des ions Xe de 500 keV.....34
- Figure II.5** : La détermination de la variation de la concentration avec la profondeur..... 40

Chapitre III : Dispositifs expérimentales et Méthodes d'analyse

- Figure III.1** : Schéma de la classification des procédés de dépôt de couches minces.....48
- Figure III.2** : Schéma de principe des systèmes d'évaporation thermique.....54

Liste des figures

Figure III.3 : Schéma de principe d'un système de chauffage par un faisceau d'électrons.....	56
Figure III.4 Représentation schématique des multicouches préparées [Au/Ni] _{x5} /Si.....	59
Figure III.5 : Schéma représentative d'un accélérateur tandem à pellets de 15 UD.....	60
Figure III.6 : Schéma d'un accélérateur tandem à pellets de 15 UD.....	60
Figure III.7 : Dispositif expérimentale de RBS.....	61
Figure III.8 : Installation de spectrométrie de rétrodiffusion Rutherford à l'IUAC, New Delhi	64
Figure III.9 : Représentation schématique de la réflexion de Bragg à partir d'un seul cristal.....	65
Figure III.10 : Représentation géométrique de la diffraction des rayons X configurée.....	66
Figure III.11 : la photographie de l'appareil du microscope électronique à balayage.....	69
Chapitre IV : Résultats et Discussion	
Figure IV.1 : Diagramme de phase Au – Ni.	71
Figure IV.2 : Des images au microscope électronique à balayage (FEMEB) de l'échantillon non-irradié (a) et des échantillons irradiés avec des ions Xe de 500 keV ((b) 5×10^{14} Xe/cm ² , (c) 5×10^{15} Xe/cm ² et (d) 1×10^{16} Xe/cm ²	74
Figure IV.3 : L'évolution de la taille des grains en fonction de la fluence des ions.	75
Figure IV.4 : Des images au microscope électronique à balayage (FESEM) de l'échantillon non-irradié (a) et des échantillons irradiés avec des ions Au 100 MeV, ((b) 5×10^{12} Au/cm ² , (c) 5×10^{13} Au/cm ²) et (d) 5×10^{14} Au/cm ²	77
Figure IV.5 : Les spectres DRX des multicouches obtenus avant et après irradiation avec 500 keV Xe à différentes fluences.....	79
Figure IV.6 : le spectre de diffraction des rayons X des films obtenus avant l'irradiation.....	80
Figure IV.7 : Les spectres de diffraction des rayons X des films obtenus avant et après l'irradiation avec des ions de Au de 100 MeV à différentes fluences.....	81
Figure IV.8 : Séparation des pics de DRX de multicouches irradiées à 5×10^{14} Xe / cm ²	83

Liste des figures

Figure IV.9 : Séparation des pics de DRX de multicouches irradiées à 5×10^{15} Xe/cm ²	83
Figure IV.10 : Séparation des pics de DRX de multicouches irradiées à 1×10^{16} Xe / cm ²	84
Figure IV.11 : Le spectre énergétique RBS de l'échantillon [Au/Ni] _{x5} /Si non irradié	86
Figure IV.12 : Le spectre énergétique RBS d'un [Au/Ni] _{x5} /Si irradiés à une fluence de 5×10^{14} Xe/cm ²	88
Figure IV.13 : Spectre énergétique RBS d'un [Au/Ni] _{x5} /Si irradiés à une fluence ionique de 1×10^{16} Xe/cm ²	88
Figure IV.14 : Spectres de RBS superposés pour les échantillons non irradiés et irradiés pour faire une comparaison entre différents signaux.....	89
Figure IV.15 : Simulation des collisions dans la multicouche [Au/Ni] _{x5} /Si irradiées avec des ions Xe d'énergie de 500 keV.....	90
Figure IV.16 : L'évolution de l'énergie maximale par atome en fonction de la profondeur pour différentes distances radiales dans le [Au (20nm)/Ni (20nm)] ₅ /Si irradié avec (a) 100 MeV d'ions Au	91
Figure IV.17 : L'évolution de l'énergie maximale par atome en fonction de la profondeur pour différentes distances radiales dans le [Au (20nm)/Ni(20nm)] ₅ /Si irradié avec 500 keV d'ions Xe.....	92
Figure IV.18 : La variation de F_D sur la profondeur de l'échantillon.....	94

Liste des figures

Chapitre I : Interaction ion avec la matière condensée

- Figure I.1** : Le parcours projeté R_p d'ion dans un solide3
- Figure I.2** : Pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire en fonction de l'énergie : cas d'un faisceau de l'ion lourds Xe dans (Au-Ni)4
- Figure I.3** : La collision élastique entre deux particules.....5
- Figure I.4** : Pouvoir d'arrêt nucléaire en fonction de l'énergie : cas d'un faisceau des ions Xe, Au, U, Pb dans la cible d' Au. (SRIM 2008).....7
- Figure I.5** : Représentation schématique d'une cascade de déplacements.....9
- Figure I.6** : Simulation des collisions par TRIM (les cascades) dans la couche d' Au irradiées avec des ions Ar et Xe d'énergie de 200 keV9
- Figure I.7** : Processus inélastiques pendant l'interaction projectile chargé – atome.....10
- Figure I.8** : Pouvoir d'arrêt électronique en fonction de l'énergie : cas d'un faisceau des ions Xe, Au, U, Pb dans la cible d' Au.....12
- Figure I.9** : Images MET montrant des coupes transversales enregistrées sur (a) $Gd_2Ti_2O_7$ et (b) $Nd_2Zr_2O_7$ irradié avec des ions de U d'énergie 120 MeV à $2 \times 10^{11} \text{ cm}^2$13
- Figure I.10** : Vue en plan avec TEM sur (a et b) $Gd_2Ti_2O_7$, (c et d) Gd_2ZrTiO_7 irradiés avec des ions de U de l'énergie 120 MeV à $2 \times 10^{11} \text{ cm}^2$ 14
- Figure I.11** : Images MET du zircon après l'irradiation aux ions Pb de 10 GeV pour une fluence de $5 \times 10^{10} \text{ ions/cm}^2$ 15
- Figure I.12** : Représentation schématique du modèle de pointe thermique et de la formation de trajectoire latente autour du trajet ionique dans le réseau atomique.....17

Chapitre II : Mélange ionique

- Figure II.1** : Les configurations typiques pour l'étude du mélange de faisceaux d'ions.....26
- Figure II.2** : Résultats RBS du mélange des deux systèmes W-Cu et Au-Cu.....29
- Figure II.3** : L'influence de l'énergie de cohésion sur le taux de mélange pour différents systèmes.....32
- Figure II.4** : Le nombre $N(\Phi)$, d'atomes de Cu de recul dans le substrat A1 irradiées avec des ions Xe de 500 keV.....34
- Figure II.5** : La détermination de la variation de la concentration avec la profondeur..... 40

Chapitre III : Dispositifs expérimentales et Méthodes d'analyse

- Figure III.1** : Schéma de la classification des procédés de dépôt de couches minces.....48
- Figure III.2** : Schéma de principe des systèmes d'évaporation thermique.....54

Liste des figures

Figure III.3 : Schéma de principe d'un système de chauffage par un faisceau d'électrons.....	56
Figure III.4 Représentation schématique des multicouches préparées [Au/Ni] _{x5} /Si.....	59
Figure III.5 : Schéma représentative d'un accélérateur tandem à pellets de 15 UD.....	60
Figure III.6 : Schéma d'un accélérateur tandem à pellets de 15 UD.....	60
Figure III.7 : Dispositif expérimentale de RBS.....	61
Figure III.8 : Installation de spectrométrie de rétrodiffusion Rutherford à l'IUAC, New Delhi	64
Figure III.9 : Représentation schématique de la réflexion de Bragg à partir d'un seul cristal.....	65
Figure III.10 : Représentation géométrique de la diffraction des rayons X configurée.....	66
Figure III.11 : la photographie de l'appareil du microscope électronique à balayage.....	69
Chapitre IV : Résultats et Discussion	
Figure IV.1 : Diagramme de phase Au – Ni.	71
Figure IV.2 : Des images au microscope électronique à balayage (FEMEB) de l'échantillon non-irradié (a) et des échantillons irradiés avec des ions Xe de 500 keV ((b) 5×10^{14} Xe/cm ² , (c) 5×10^{15} Xe/cm ² et (d) 1×10^{16} Xe/cm ²	74
Figure IV.3 : L'évolution de la taille des grains en fonction de la fluence des ions.	75
Figure IV.4 : Des images au microscope électronique à balayage (FESEM) de l'échantillon non-irradié (a) et des échantillons irradiés avec des ions Au 100 MeV, ((b) 5×10^{12} Au/cm ² , (c) 5×10^{13} Au/cm ²) et (d) 5×10^{14} Au/cm ²	77
Figure IV.5 : Les spectres DRX des multicouches obtenus avant et après irradiation avec 500 keV Xe à différentes fluences.....	79
Figure IV.6 : le spectre de diffraction des rayons X des films obtenus avant l'irradiation.....	80
Figure IV.7 : Les spectres de diffraction des rayons X des films obtenus avant et après l'irradiation avec des ions de Au de 100 MeV à différentes fluences.....	81
Figure IV.8 : Séparation des pics de DRX de multicouches irradiées à 5×10^{14} Xe / cm ²	83

Liste des figures

Figure IV.9 : Séparation des pics de DRX de multicouches irradiées à 5×10^{15} Xe/cm ²	83
Figure IV.10 : Séparation des pics de DRX de multicouches irradiées à 1×10^{16} Xe / cm ²	84
Figure IV.11 : Le spectre énergétique RBS de l'échantillon [Au/Ni] _{x5} /Si non irradié	86
Figure IV.12 : Le spectre énergétique RBS d'un [Au/Ni] _{x5} /Si irradiés à une fluence de 5×10^{14} Xe/cm ²	88
Figure IV.13 : Spectre énergétique RBS d'un [Au/Ni] _{x5} /Si irradiés à une fluence ionique de 1×10^{16} Xe/cm ²	88
Figure IV.14 : Spectres de RBS superposés pour les échantillons non irradiés et irradiés pour faire une comparaison entre différents signaux.....	89
Figure IV.15 : Simulation des collisions dans la multicouche [Au/Ni] _{x5} /Si irradiées avec des ions Xe d'énergie de 500 keV.....	90
Figure IV.16 : L'évolution de l'énergie maximale par atome en fonction de la profondeur pour différentes distances radiales dans le [Au (20nm)/Ni (20nm)] ₅ /Si irradié avec (a) 100 MeV d'ions Au	91
Figure IV.17 : L'évolution de l'énergie maximale par atome en fonction de la profondeur pour différentes distances radiales dans le [Au (20nm)/Ni(20nm)] ₅ /Si irradié avec 500 keV d'ions Xe.....	92
Figure IV.18 : La variation de F_D sur la profondeur de l'échantillon.....	94

Chapitre I

Interaction ion avec matière condensée

Dans ce chapitre, nous allons introduire les paramètres de base qui décrivent les phénomènes créés par les interactions entre projectiles (ions chargés) et une cible. Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéresserons à la notion de perte d'énergie et le pouvoir d'arrêt nucléaire et électronique qui permettent de décrire le ralentissement d'un projectile dans un matériau donné. Nous nous intéressons également aux mécanismes fondamentaux de perte d'énergie des collisions élastiques et inélastiques et aux effets des interactions (création de défauts), et nous rappellerons les deux principaux modèles décrivant la création de la trace latente.

I.1. Paramètres de l'interaction ion-matière

Les paramètres adaptés de l'interaction ion-matière permettant de quantifier le dépôt d'énergie dans la matière sont :

- Le pouvoir d'arrêt (dE/dx) qui dépend des sections efficaces des collisions élastiques et inélastiques.
- Le parcours de l'ion dans la matière (R_p) qui dépend de la vitesse de l'ion.
- Le flux (Φ).
- La fluence (F).

I.1.1. Le pouvoir d'arrêt et le parcours

I.1.1.1. Le pouvoir d'arrêt

C'est une grandeur qui détermine l'énergie perdue d'une particule d'énergie E par unité de son parcours dans la cible. L'ion énergétique subit une série d'événements : (i) des collisions élastiques avec les noyaux des atomes (pouvoir d'arrêt nucléaire $S_n(E)$) ;(ii) des collisions inélastique avec des électrons des atomes cibles (pouvoir d'arrêt électronique S_e), en perdant son énergie jusqu'à ce qu'il vient enfin d'être implanter dans le solide [1].

Le pouvoir d'arrêt total par unité de longueur dans la cible, est obtenu par la sommation de deux pouvoirs d'arrêt :

$$S(E)_{total} = S_n(E) + S_e(E) \quad (\mathbf{I.1})$$

Il s'exprime en MeVcm^2/mg que l'on peut transformer en keV/nm , si on connaît la densité massique du matériau. Dans le cas de haute énergie $S(E)_{total} = S_e(E)$ avec $S_n=0$; et dans le cas de faible énergie $S(E)_{total} = S_n(E)$ avec $S_e(E)=0$.

I.1.1.2. Le parcours de l'ion dans la matière

C'est la distance totale parcourue par l'ion projectile ou bien la profondeur dans la cible. On peut le déterminer à partir du pouvoir d'arrêt total. Il est donné par la relation :

$$R = \int_0^{E_1} \left(\frac{dE}{dx}\right)^{-1} dE \tag{I.2}$$

Où :

- E_1 : représente l'énergie cinétique initiale de la particule à son entrée dans le matériau.
- dE/dx : le signe de dE/dx est négative, car il représente la perte d'énergie par incrément de trajectoire.

Le parcours projeté R_p représente la projection du parcours de l'ion sur la direction initiale de la particule.

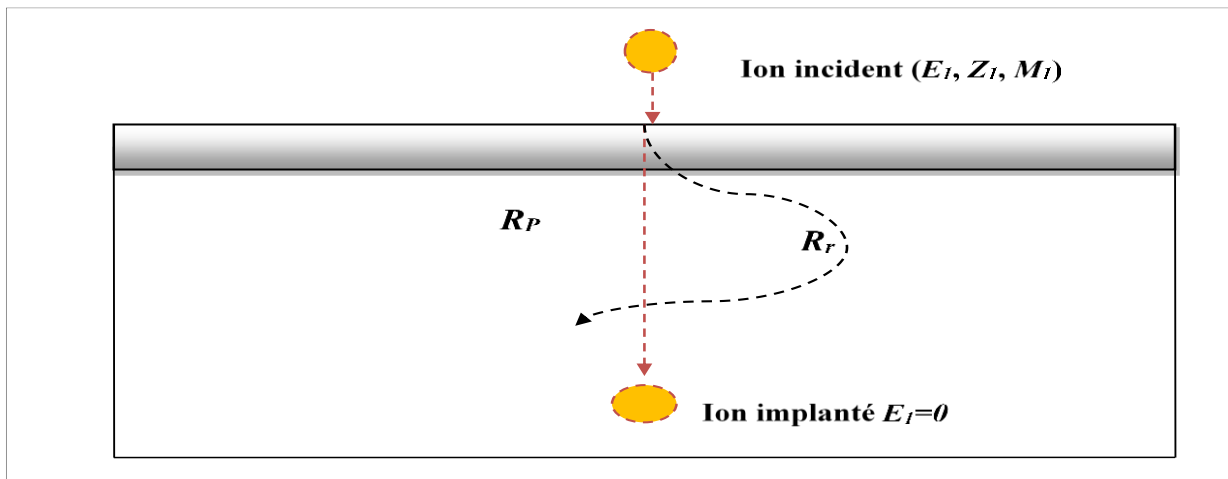


Figure. I.1 : Le parcours projeté R_p d'ion dans un solide.

I.1.1.3. Simulation par SRIM

Le logiciel SRIM permet de calculer les valeurs des paramètres essentiels qui décrivent l'interaction : les pouvoirs d'arrêts électronique et nucléaire ainsi que la profondeur de

pénétration. Ce logiciel est basé sur la méthode de Monte-Carlo, la méthode est décrite par Ziegler, Biersack et Littmark, dans leur livre « *the Stopping and Range of Ions in Matter* ».

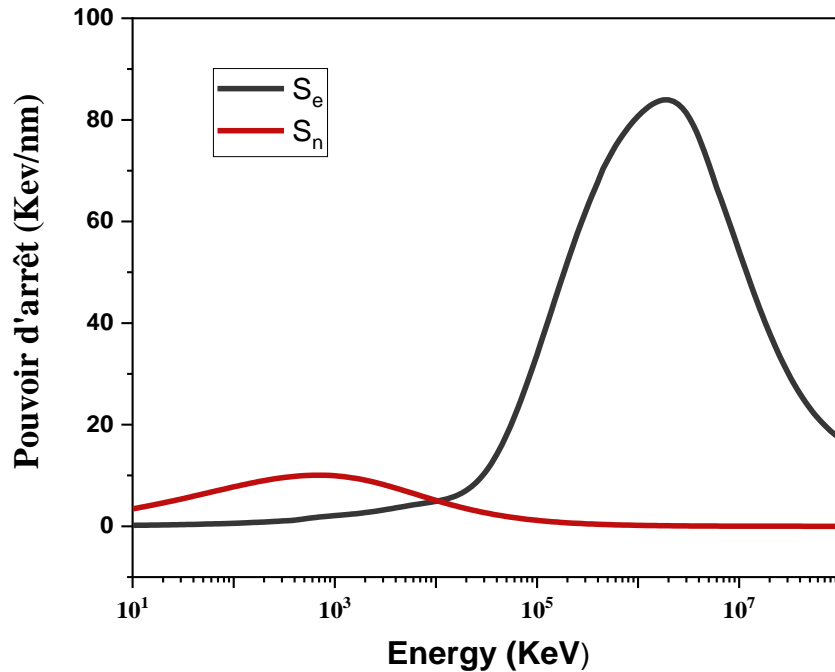


Figure I.2 : Pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire en fonction de l'énergie : cas d'un faisceau de l'ion lourds Au dans (Au) .(SRIM 2012)

La figure I.2 présente le pouvoir d'arrêt nucléaire et électronique d'une cible Au en fonction de l'énergie du projectile Au, par le programme SRIM. Elle montre clairement que le pouvoir d'arrêt nucléaire est largement dominant à basse énergie ; tandis que le pouvoir d'arrêt électronique domine à haute énergie.

I.1.2. Flux et fluence

A. Flux (Φ)

Représente le nombre de particules incidentes envoyées sur la cible, par unité de surface et par unité de temps (nbr atomes / $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^1$).

B. Fluence (F)

Correspond au nombre total de particules reçues par la cible par unité de surface (nbr particules / cm^2) [2].

I.2. Régime à bases énergies (Les collisions élastiques)

Les interactions entre l'ion incident et les atomes de la cible, sont traitées, en général, comme des chocs élastiques de deux particules. Cette interaction conduit à des déplacements d'atomes, et la nature de cette l'interaction est purement coulombienne. À basse énergie l'interaction dominant entre deux corps, qui ne subissent aucun changement dans leur structures interne, c'est à-dire il y a une conservation de l'énergie cinétique totale des particules entrant en collision, et, l'énergie interne individuelle de chaque particule est inchangée. Les interactions entre l'ion incident et les atomes de la cible sont traitées comme des chocs élastiques de deux particules (binaires), régis par les lois de la mécanique classique.

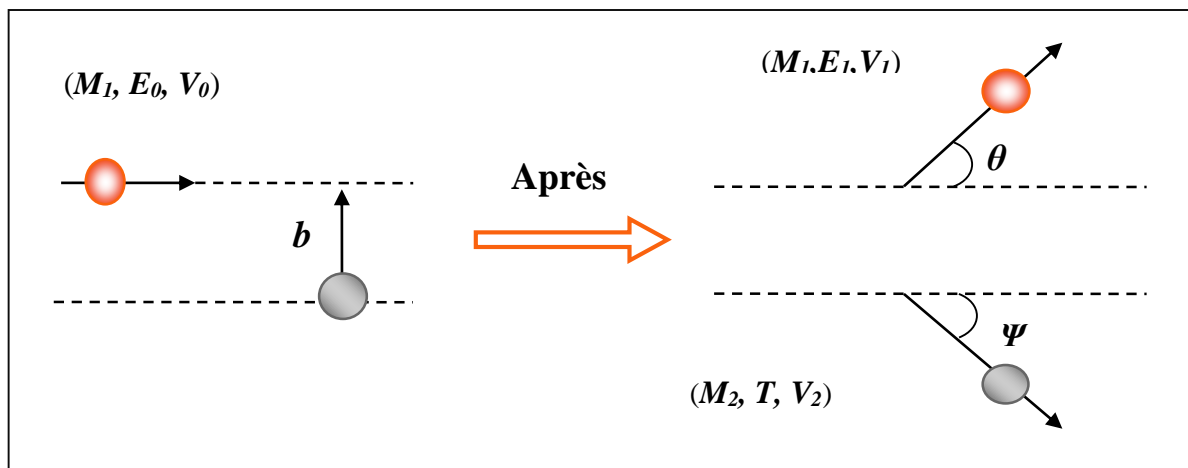


Figure I.3 : La collision élastique entre deux particules.

- (M_1, E_0, V_0) et (M_1, E_1, V_1) : représentent la masse, l'énergie et la vitesse de l'ion incident avant et après l'interaction, respectivement.
- (M_2, T, V_2) : représentent la masse, l'énergie et la vitesse de recul de l'atome cible après la collision.
- θ et Ψ : sont des angles de diffusion et de recul de l'atome cible.
- b : le paramètre d'impact (la distance d'approche entre le noyau du projectile et de la cible).

L'expression de l'énergie cinétique transférée est donnée, dans le repère du laboratoire, par [3]:

$$T = \frac{4M_1.M_2}{(M_1+M_2)^2} \cdot E_0 \cdot \cos^2\psi \quad (\text{I.3})$$

Si le choc est frontale ($b=0$). Dans ce cas, la cible recule dans la direction du projectile ($\Psi = 0$)

et l'énergie transférée :

$$T_{max} = \frac{4M_1.M_2}{(M_1+M_2)^2} \cdot E_0 \quad (\text{I.4})$$

I.2.1. Le pouvoir d'arrêt nucléaire

Pour déterminer la formule de pouvoir d'arrêt nucléaire il faut prendre en compte le paramètre de section efficace différentielle du processus collisionnel (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 s'écrit [4]:

$$\sigma(E_1, T_1) = \frac{(\pi Z_1 Z_2 e^2) M_1}{T^2 E_1 M_2} \quad \text{Où : } e^2 = 1.44 \times 10^{-7} \text{ ev/cm} \quad (\text{I.5})$$

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_n = N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T \sigma(E_1, T_1) dT \quad (\text{I.6})$$

Où :

- N : est le nombre d'atomes par unité de volume,
- T_{min} : correspond à une énergie minimale introduite afin d'éviter la divergence de l'intégrale.

- T_{max} : est l'énergie maximale fournie lors d'un choc frontal.

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

$$-\frac{dE}{dx} = 2\pi N \frac{M_1 Z_1^2 Z_2^2}{M_2 E_1} e^4 \ln \frac{T_{max}}{T_{min}} \quad (I.7)$$

Où :

- Z_1, Z_2 : le nombre de charge du projectile et de la cible respectivement.
- e : la charge de l'électron.
- M_1 et M_2 : masse du projectile et de la cible respectivement.

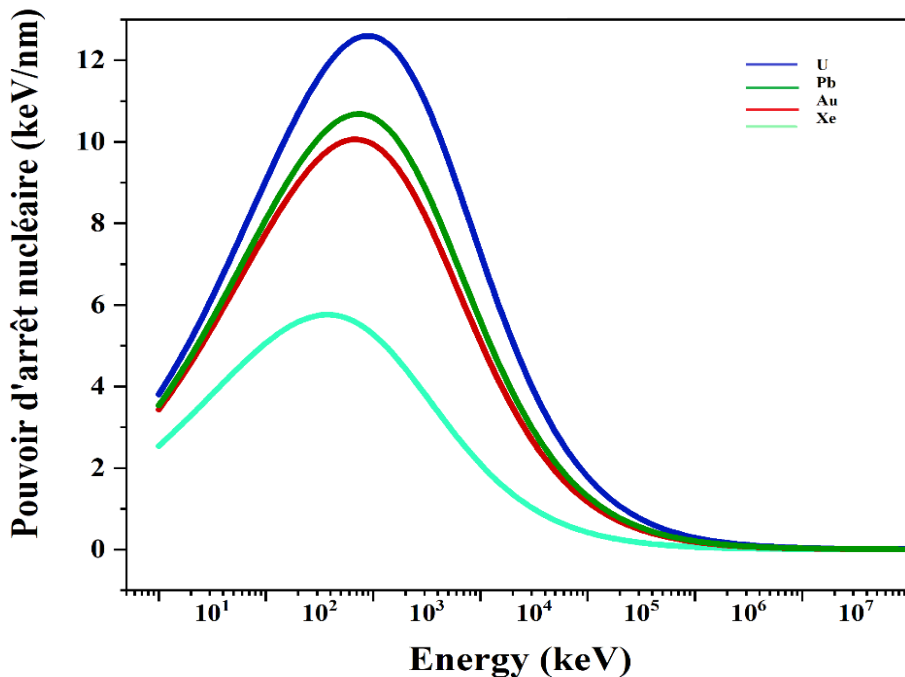


Figure I.4 : Pouvoir d'arrêt nucléaire en fonction de l'énergie : cas d'un faisceau des ions Xe, Au, U, Pb dans la cible d'Au. (SRIM 2012).

I.2.2. Défauts induits par les collisions nucléaires

A. Défaut ponctuels

Lorsque les ions incidents entrent en collision avec les atomes cibles, un atome est déplacé par l'ion incident, appelé atome primaire. L'atome primaire, à son tour, peut déplacer d'autres atomes, des atomes secondaires, des tertiaires, créant ainsi une cascade de collisions atomiques. Cela conduit à la création de défauts ponctuels dans le solide, tels que des lacunes, des atomes interstitiels ou une combinaison des deux, appelés paire de Fränkel.

Dans le cas le plus simple, l'atome déplacé laisse une place vacante et occupe une position interstitielle dans le réseau. Ce défaut est appelé paire de Fränkel. L'énergie nécessaire pour produire une paire de Fränkel stable appelé l'énergie de déplacement E_d , qui doit être acquis par l'atome cible pour quitter sa position dans le réseau et former un interstitiel stable. Pour déplacer un atome de son emplacement normal dans le réseau, une énergie de déplacement d'environ 15 à 30 eV est nécessaire [5].

B. Déplacements produits par un choc primaire (Une cascade de déplacement)

Les atomes primaires perdent ensuite leur énergie cinétique par collisions élastiques nucléaires successives avec d'autres noyaux de la cible, dont un certain nombre sont à leur tour déplacé. La séquence de déplacement multiple d'événements de collision sont souvent appelées collisions ou cascades de déplacement.

C. Nombre d'atomes déplacés

Lorsque l'énergie transférée par la particule incidente à un atome de la cible est supérieure au seuil de déplacement atomique E_d , cet atome est éjecté et est généralement appelé "primaire". Le nombre moyen d'atomes déplacés (défauts) N_d que peut créer cet atome primaire en fonction de son énergie E fut donné initialement par Kinchin et Pease [6]:

$$\begin{aligned} N_d &= 0 & \text{Si} & \quad 0 < E < E_d \\ N_d &= 1 & \text{Si} & \quad E_d < E < 2E_d \\ N_d &= \frac{E}{E_d} & \text{Si} & \quad 2E_d < E \end{aligned}$$

Dans ce dernier cas, l'énergie transférée est suffisamment élevée, une cascade de déplacement se développe. Le nombre moyen d'atomes déplacés $\langle (N_d / E_1) \rangle$:

$$\left\langle \frac{N_d}{E_1} \right\rangle = \frac{\int_{E_d}^{E_{max}} N_d(E) d\sigma(E_1, E)}{\int_{E_d}^{E_{max}} d\sigma(E_1, E)} \quad (I.8)$$

Dans ce dernier cas, la structure du matériau dans le volume entourant la trajectoire du projectile est désordonnée, et la concentration de défauts est fortement dépendante de l'énergie déposée. Par exemple, ce procédé est utilisé pour l'amorphisation de matériaux cristallins [7].

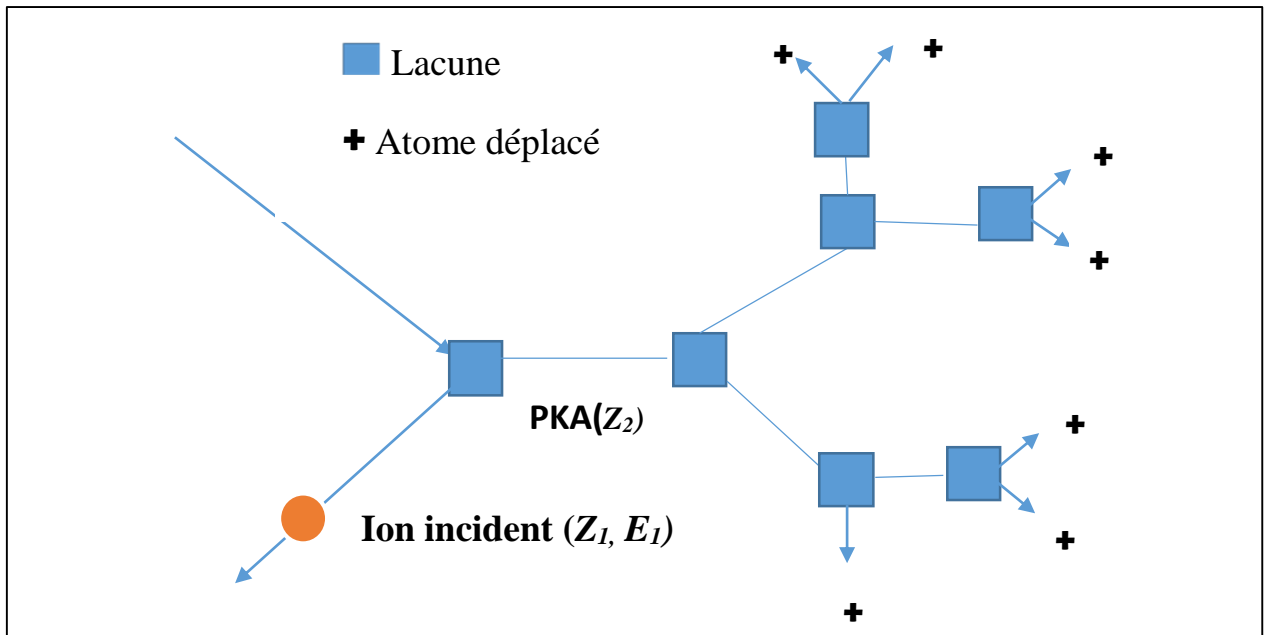


Figure I.5 : Représentation schématique d'une cascade de déplacements.

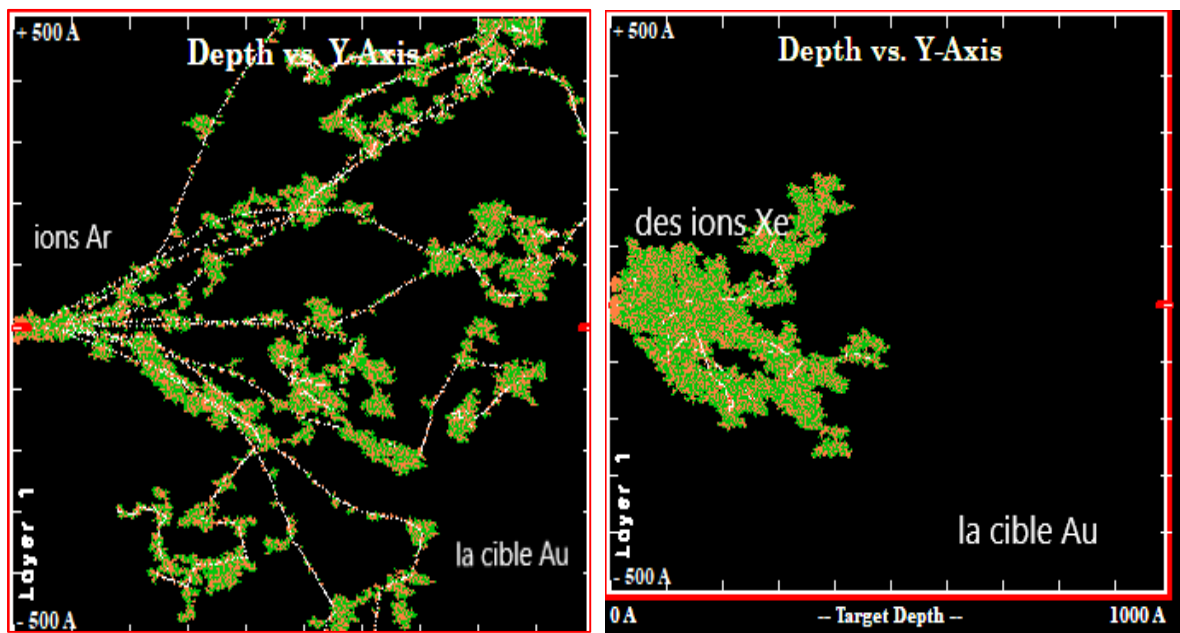


Figure I.6 : Simulation des collisions par TRIM (les cascades) dans la couche d'Au irradiées avec des ions Ar et Xe d'énergie de 200 keV.

D. Formation de pointe thermique élastique

La pointe thermique élastique se produit lorsque le déplacement des atomes est presque terminé, tous les atomes déplacés en mouvement atteignent un point où ils n'ont plus assez d'énergie cinétique pour provoquer un déplacement supplémentaire. Le transfert d'énergie se fera à un niveau inférieur au seuil « E_d ». À ce stade, l'énergie est partagée entre les atomes adjacents et dissipée sous forme de vibrations de réseau, cette vibration crée une zone chaude sous la forme d'un cylindre contenant de nombreux atomes agités, appelée une pointe thermique. Selon *Seitz* et *Koehler* (1956) [8] et *Sigmund* [9] une pointe thermique est définie comme « un volume limité où la majorité des atomes sont temporairement en mouvement induit par chaque ion incident ».

I.3. Les collisions inélastiques

La collision inélastique est le second processus de ralentissement d'un ion incident sur les électrons de la cible. L'énergie cinétique totale du système de particules n'est pas gardée, de sorte que l'énergie interne de chacun des participants à la collision peut être modifiée au cours de l'interaction. Les modifications des configurations électroniques des deux partenaires dépendent des processus fondamentaux intervenant lors des collisions inélastiques telles que, l'excitation de l'atome cible et du projectile, l'ionisation de l'atome cible et la capture électronique par le projectile [10]. La figure (I.7) présente les trois processus qui peuvent résulter de façon inélastique entre l'ion incident et l'atome cible (capture électronique, excitation électronique, ionisation des atomes au voisinage de la trajectoire des ions).

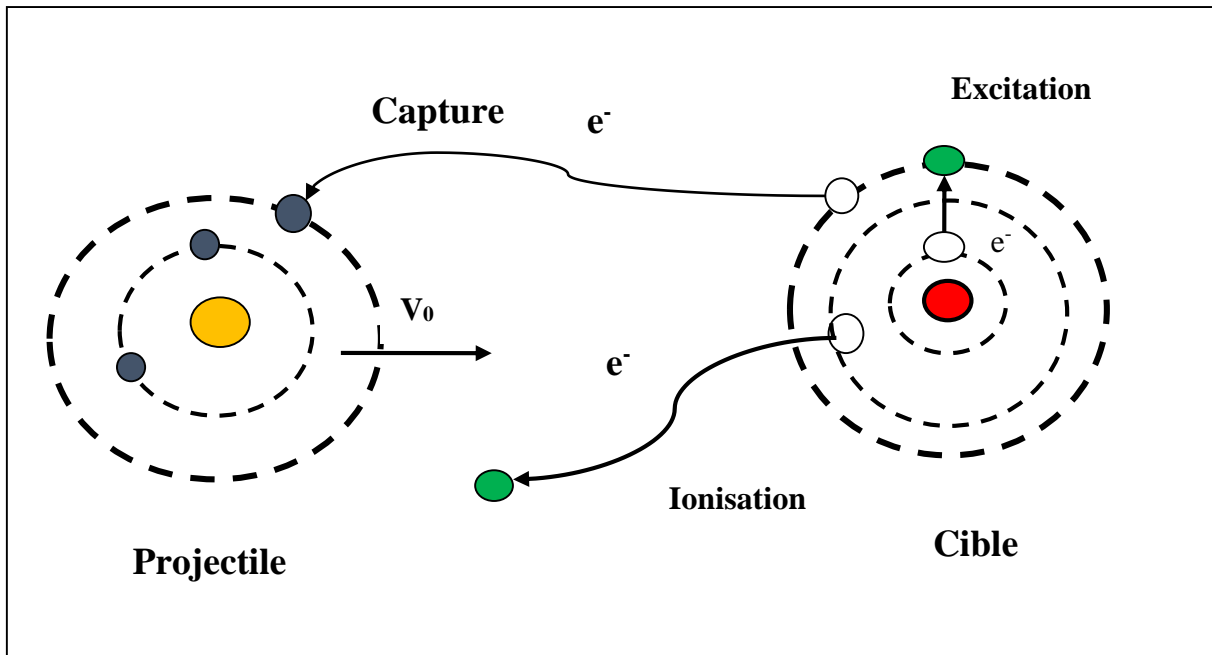


Figure I.7 : Processus inélastiques pendant l'interaction projectile chargé – atome.

I.3.1. Le pouvoir d'arrêt électronique de la cible

La description des interactions inélastiques est beaucoup plus compliquée, car ces interactions ne sont plus décrites comme des interactions individuelles entre deux objets, les ions projectiles interagissent avec plusieurs électrons de la cible en même temps, et ils sont eux-mêmes connectés au noyau. Pour les ions que nous utiliserons, les ions interagissent avec les électrons dans la première étape, et ils transfèrent une partie de l'énergie aux électrons. Après le passage des ions, une fois la cible ionisée, les électrons secondaires (électrons δ) peuvent générer entièrement de l'énergie, générant ainsi une cascade d'électrons. Ils sont définis par rapport à la quantité $Z_I^{2/3} v_0$, où v_0 est la vitesse orbitale de l'électron de l'atome d'hydrogène 1s, c'est-à-dire la vitesse de Bohr : $v_0 = 2,2 \times 10^6$ m / s.

$Z_I^{2/3} v_0$ est généralement la vitesse moyenne des électrons liés au projectile dans le modèle de Thomas-Fermi [11]. En traitant v_I comme la vitesse d'un projectile, nous distinguons trois domaines différents de vitesses définis par rapport à la quantité ($Z_I^{2/3} v_B$) :

- (a) Le régime des grandes vitesses lorsque $v_I \gg Z_I^{2/3} v_0$.
- (b) Le régime des vitesses intermédiaires lorsque $v \approx Z_I^{2/3} v_0$ (pic de Bragg).
- (c) Le régime des basses vitesses lorsque $v \ll Z_I^{2/3} v_0$.

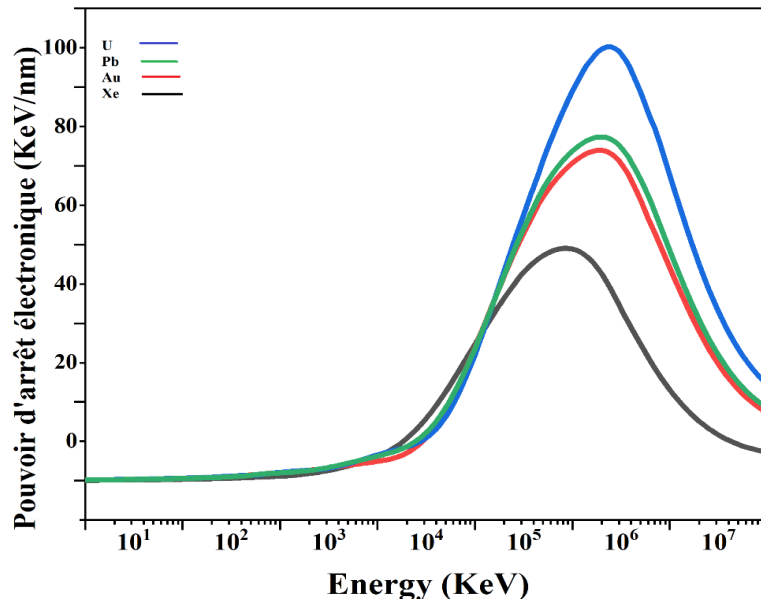


Figure I.8 : Pouvoir d'arrêt électronique en fonction de l'énergie : cas d'un faisceau des ions Xe, Au, U, Pb dans la cible d'au . (SRIM 2012)

I.3.2. Défauts induits par irradiation aux ions lourds

A. Création de défauts par excitation électronique

Contrairement aux basses énergies où les défauts induits par des chocs élastiques sont créés par des processus directs, les défauts induits à hautes énergies par des collisions inélastiques font intervenir des processus indirects et complexes. La majorité de l'énergie perdue par le projectile le long de sa trajectoire dans le matériau est transférée aux électrons de la cible, entraînant une forte densité de charge dans la zone localisée autour de la trajectoire de l'ion. Cette forte densité d'ionisation peut conduire à la création d'une zone fortement endommagée ou défaut étendu ou encore traces latentes, les traces latentes sont la conséquence d'un fort dépôt d'énergie électronique.

Les types de défauts qu'un ion peut induire dans un solide, sont déterminés par le type de solide. Dans de nombreux matériaux cristallins, cette trace est constituée de matière désordonnée et on parle donc d'amorphisation [12].

Dans d'autres matériaux, un changement de la phase cristalline peut être observé [13]. Les interactions inélastiques jouent un rôle majeur dans les isolants et les composés organiques [14] et un faible effet dans les métaux.

Plusieurs auteurs ont essayé de donner une explication pour la création des traces latentes dans le solide (isolants, métaux, semi-conducteurs). Des modèles comme le modèle de l'explosion coulombienne [15] ou le modèle de la pointe thermique [16] ont été proposés.

Les traces latentes peuvent ensuite être observées par microscopie électronique à transmission, comme le montre l'image ci-dessus.

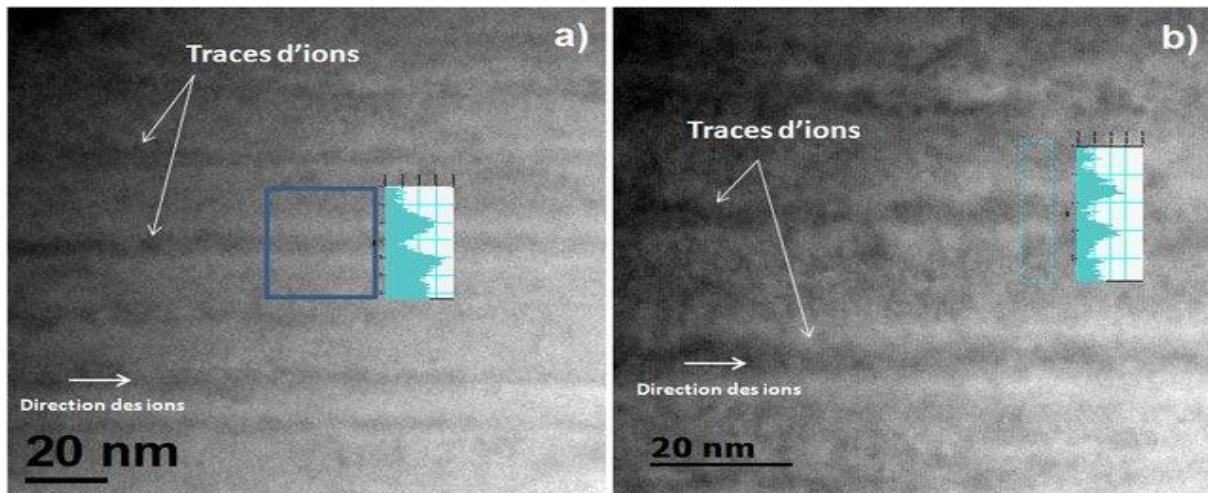


Figure I.9 : Clichés STEM HAADF du GaN irradié au Pb 850 MeV à une fluence de 3×10^{11} ions/cm². [17]

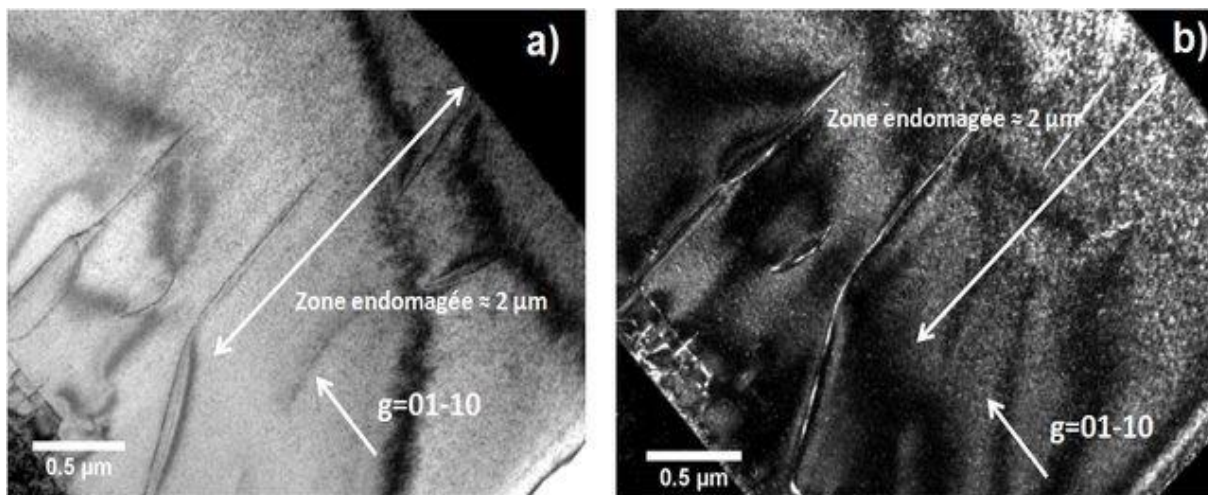


Figure I.10 : Clichés MET en mode faisceau faible ($g=01-10$) du GaN irradié au Xe 92 MeV à une fluence de 5×10^{13} ions/cm² visualisés en (a) champ clair et en (b) champ sombre. Les traces sont visibles jusqu'à une profondeur d'environ 2 μm . [17]

B. Modèle d'explosion de Coulomb

Ce modèle suppose que le déplacement des atomes ionisés par les ions incidents est dû à leur répulsion mutuelle. Ce déplacement peut produire des zones de défauts ou des traces [15,18]. Le modèle suppose que le temps de neutralisation de la charge positive induite dans le milieu est suffisamment long ($> 10^{-14}$ sec). Cette condition ne s'applique qu'aux isolants, car le temps de neutralisation des charges induites peut atteindre des dizaines de picosecondes. En revanche, dans un conducteur, la mobilité des électrons est très importante, et il faut 10 à 15 secondes pour neutraliser la trajectoire de l'ion. Par conséquent, le modèle d'explosion de Coulomb n'est pas applicable aux métaux. La condition donnée par ce modèle est que la force répulsive de Coulomb dans la région d'ionisation est suffisante pour vaincre la force de liaison du réseau, car la contrainte électrostatique locale supérieure à la force de liaison locale. Si deux ions dans un matériau de charge e ont été ionisés n fois, la contrainte électrostatique (σ), la force locale par unité de surface, pour un constant diélectrique constant (ϵ) avec une distance interatomique moyenne (a_0), est donnée par [15] :

$$\sigma = \frac{n^2 e^2}{\epsilon a_0^4} \quad (\text{II.9})$$

L'expression ci-dessus montre qu'il est facile de former des traces dans des matériaux à faible résistance mécanique, faible constante diélectrique et faible distance interatomique. Le plastique s'est avéré plus sensible aux radiations que le verre. L'explosion de Coulomb ne peut pas expliquer la formation de traces d'ions dans les métaux, c'est pourquoi le modèle de la pointe thermique a été proposé pour décrire les traces dans les métaux.

C. Le modèle de la pointe thermique

Le modèle de la pointe thermique a été proposé pour la première fois par F. Dessauer en 1923 et développé par Seitz et Koehler [8] et appliqué aux métaux en 1956. M. Toulemonde et ses collaborateurs ont développé un code de calcul basé sur ce modèle.

Ce modèle est basé sur l'idée suivante : lors du ralentissement électronique, l'énergie déposée par l'ion incident sur les électrons cibles est convertie en chaleur par interaction électron-phonon en un temps de $10^{-15}/10^{-14}$ sec. Au fur et à mesure que le transfert d'énergie vers les atomes du réseau se rapproche du trajet des ions, il devient très important entre 10^{-14} à 10^{-12} s et l'échauffement est très local. Par conséquent, un fort dépôt d'énergie peut conduire à la fusion

de régions cylindriques le long du trajet ionique. Cette fusion est suivie d'un phénomène de trempe ultra-rapide, qui peut geler le matériau en une structure amorphe. En définissant le rayon de la trace comme le rayon de fusion du modèle de la pointe thermique, les prédictions du modèle peuvent être comparées aux résultats expérimentaux.

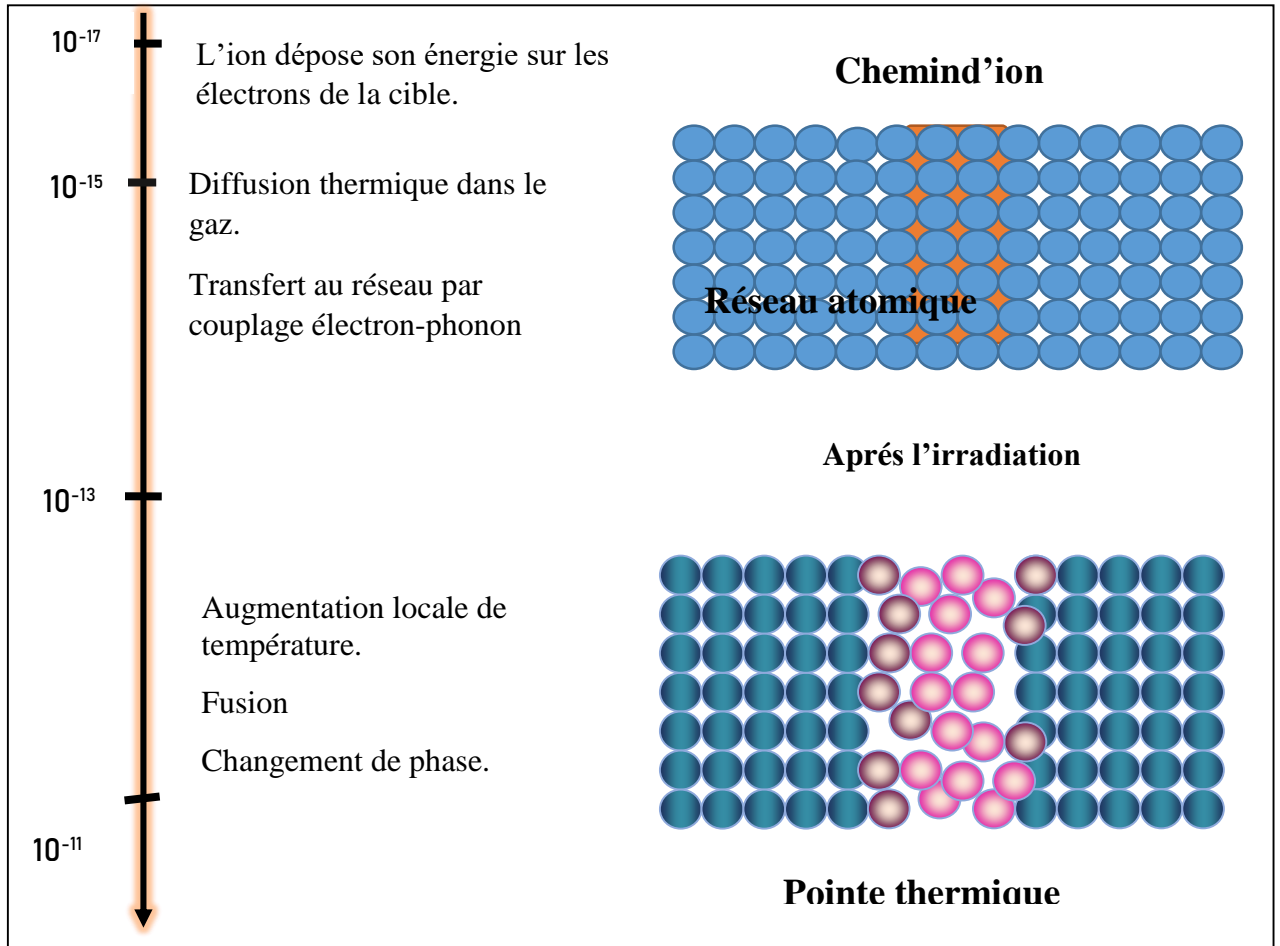


Figure II.11 : Représentation schématique du modèle de pointe thermique et de la formation de trajectoire latente autour du trajet ionique dans le réseau atomique.

I.4. Détails du modèle de la pointe thermique

I.4.1. Description mathématique

Le matériau cible est subdivisé en deux sous-systèmes en interaction : *(i)* le gaz d'électrons, à la température T_e , caractérisé par sa chaleur spécifique C_e et sa conductivité thermique K_e et *(ii)* le réseau atomique, à la température T_a , caractérisé lui aussi par sa chaleur spécifique C_a et sa conductivité thermique K_a .

Le transfert de l'énergie des ions incidents se fait en deux temps : *(i)* l'énergie des ions incidents est déposée sur les électrons en un temps de l'ordre de 10^{-15} secondes. *(ii)* l'énergie est ensuite transférée des électrons vers les atomes en un temps variant de 10^{-13} à 10^{-10} secondes. Ce transfert est gouverné par le couplage électron- phonon.

Le processus de transfert d'énergie des ions au sous-système électronique, puis du sous-système électronique au sous-système de réseau est contrôlé par les deux équations différentielles couplées suivantes en géométrie cylindrique :

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right) - g(T_e - T_a) + A(r, t) \quad (\text{I.10})$$

$$C_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial r} \right) + g(T_e - T_a) + B(r, t) \quad (\text{I.11})$$

Grâce à la solution numérique de l'équation ci-dessus, nous pouvons déduire l'évolution des températures électroniques et atomiques dans le temps et dans l'espace. Selon le système d'équations ci-dessus, la diffusion thermique se produit radialement vers l'extérieur le long du trajet ionique. Cependant, dans le cas des multicouches, où les matériaux sont différents sur la longueur (direction x) du trajet ionique, ces équations ne sont plus valables. Dans le cas des films multicouches, un concept supplémentaire a également été appliqué pour inclure dans les deux équations le transfert thermique de la chaleur le long de la direction x à travers les différentes interfaces. Les équations ci-dessus peuvent alors être modifiées comme suit :

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) - g(T_e - T_a) + A(r, t) \quad (\text{I.12})$$

$$C_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial x} \right) + g(T_e - T_a) + B(r, t) \quad (\text{I.13})$$

Où :

- ✓ g : est la constante de couplage électron-phonon qui dépend de la vitesse du son dans le matériau, de κ et de la température (T) du système atomique.

$$g = \pi^4 \frac{(K_B n_e S)^2}{18KT} \quad (\text{I.14})$$

- ✓ $A(\mathbf{r}, t)$ et $B(\mathbf{r}, t)$: sont les fonctions qui définissent la déposition spatio-temporelle de l'énergie du projectile sur les électrons et les atomes cibles, respectivement.
- ✓ $g(T_e - T_a)$: représente l'énergie d'interaction électron-phonon.
- ✓ x : représente la distance parcourue par l'ion dans le solide.

I.4.2. Régimes des hautes énergies

C'est le régime des ions avec des énergies cinétiques dans la gamme MeV-GeV et au-dessus.

Dans ce régime d'énergie, les projectiles interagissent principalement avec les électrons de la cible, et donc la valeur de pouvoir d'arrêt nucléaire S_n est très petite par rapport à S_e , donc le terme $B(\mathbf{r}, t)$ dans l'équation différentielle (I-13) est ignoré. L'énergie déposée sur les électrons cibles est transférée aux atomes du réseau par couplage électron-phonon. C'est ce qu'on appelle le modèle de pointe thermique inélastique (**i-TSM**).

Le terme $A(\mathbf{r}, t)$ est la densité de dépôt d'énergie par unité de temps, qui est fournie au sous-système électronique par les ions incidents au temps t et au rayon \mathbf{r} . Ce terme peut s'écrire mathématiquement [19] :

$$A(\mathbf{r}, t) = c \cdot S_e \cdot G_e(t) \cdot D_e(\mathbf{r}) \quad (\text{I.15})$$

Où :

- c : est une constante de normalisation
- S_e : est la perte d'énergie électronique.
- $G_e(t)$: est la distribution gaussienne, qui peut être donnée par :

$$G_e = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(t-t_0)^2}{2\sigma^2}\right) \quad (\text{I.16})$$

Où :

- σ : est la demi-largeur de la distribution gaussienne

- t_0 : est le temps requis pour les électrons pour atteindre la distribution d'équilibre et ces deux quantités sont supposées égales (typiquement de l'ordre de 10^{-15} s).
- $D_e(r)$ a été estimée par *Waligorski et ses collaborateurs* [20] et elle définit comme suit :

$$D_e(r) = \frac{1}{r} \left(\frac{\left(1 - \frac{r+\theta}{T+\theta}\right)^{\frac{1}{\alpha}}}{r+\theta} \right) \quad (\text{I.17})$$

Où

- r : est la distance du trajet ionique ou la distance radiale.
- θ : est la plage d'énergie des électrons delta qui est égale au potentiel d'ionisation.
- α : est une constante.

I.4.3. Régime des basses énergies

Pour l'irradiation ionique à basse énergie (keV), la valeur de pouvoir électronique S_e est petite par rapport à S_n , donc le terme $A(r,t)$ dans l'équation différentielle (I-12) est ignoré. C'est ce qu'on appelle le modèle de la pointe thermique élastique (E-TSM).

Le dépôt d'énergie sur le sous-système atomique dépend du terme $B(r, t)$ dans l'équation (I.13). L'expression suivante peut être utilisé pour simuler la densité de l'énergie déposée sur les atomes [21] .

$$B(r, t) = b_n \times S_n \times G_a(t) \times F_a(r) \quad (\text{I.18})$$

Où :

- b_n est une constante de normalisation.
- $G_a(t)$ est une fonction gaussienne en fonction du temps t , qui peut être donné par :

$$G_a = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(t-t_0)}{2\sigma^2}\right) \quad (\text{I.19})$$

Le paramètre t_0 est le temps de dépôt, et il est supposé égal à 1×10^{-13} s.

- $F_a(r)$ décrit le dépôt d'énergie spatiale, qui peut s'exprimer mathématiquement par :

$$F_a(r) = \frac{1}{r} \exp\left(-\frac{r}{r_0}\right) \quad (\text{I.20})$$

Où : r_0 est le rayon d'un cylindre, où l'énergie nucléaire est déposée. Les valeurs de r_0 ont été mentionnés dans les travaux de *Mieskes et Toulemonde* [22,23].

I.4.4 Critère de transformation de phase

La transformation solide en liquide ou la fusion du matériau a lieu, lorsque le transfert d'énergie par atome dépasse la valeur de l'énergie requise par atome (E_{atm}) pour la fusion. E_{atm} peut être calculée à partir de formule suivante :

$$E_{atm} = \int_{T_{initiale}}^{T_{fusion}} C_s(T) dT + L_m \quad (\text{I.22})$$

Où : le premier terme du côté droit de cette équation correspond à l'énergie nécessaire pour amener le matériau à sa température de fusion. Le terme $C_s(T)$ est la chaleur spécifique du réseau tiré des mesures expérimentales en fonction de la température.

Le deuxième terme, L_m , correspond à la chaleur latente de fusion. Le transfert d'énergie par atome c'est-à-dire qu' E_{atm} est la mesure la plus appropriée pour évaluer si le matériau a subi une transition de phase liquide (fusion) ou non.

Bibliographie

- [1] S.A. Datar, L. Wu, B. N. Guo, M. Nigam, D. Necsoiu, Y. J. Zhai, D. E. Smith, C. Yang, M. El Bouanani, J. J. Lee and F. D. McDaniel, " Appl. Phys. Lett. 77, 3974, (2000).
- [2] Constanta Cristina Stanescu, SiO₂ sur silicium comportement sous irradiation avec des ions lourds., CAEN/ BASSE -NORMANDIE, n.d.
- [3] R. Weller. In Handbook of Modern Ion-Beam Materials Analysis, eds J. R. Tesmer and M. Nastasi (Materials research Society, Pittsburgh, Pa) 1995., n.d.
- [4] Chr. Lehman, Interaction of Radiation with solids and Elementary Defect production, North-Holland Publishing Company, (1977) ., n.d.
- [5] H.H. Andersen, The depth resolution of sputter profiling, Appl. Phys. 18 (1979) 131–140. <https://doi.org/10.1007/BF00934407>.
- [6] G.H. Kinchin, R.S. Pease, The displacement of atoms in solids by radiation, Reports Prog. Phys. 18 (1955) 1–51. <https://doi.org/10.1088/0034-4885/18/1/301>.
- [7] K. Laaziri, S. Kycia, S. Roorda, M. Chicoine, J.L. Robertson, J. Wang, S.C. Moss, High resolution radial distribution function of pure amorphous silicon, Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 3460–3463. <https://doi.org/10.1103/PHYSREVLETT.82.3460>.
- [8] F. Seitz, J. S. Kohler, Sol. St. Phys. 2,305, (1956).
- [9] P. Sigmund, , Rev. Roum. Phys, 17 823, 969, 1079., (1972).
- [10] F. Haranger, Etude de la pulvérisation du dioxyde d'uranium induite par des ions lourds multichargés de basse et très basse énergie cinétique ; effet de la charge du projectile, l'Université de Caen, Soutenue le 19 Décembre 2003, n.d.
- [11] C. Koumeir, Etude de la pulvérisation ionique de surface d'un cristal de germanium sous impact d'ions lourds rapides en condition de canalisation. Physique Atomique. Université Claude Bernard - Lyon I. Français, 2008.
- [12] A. Barbu, A. Dunlop, D. Lesueur and R. Averback, Euro Phys. Lett 15, (1991) 37., (n.d.).
- [13] A. Benyagoub, F. Couvreur, S. Bouffard, F. Levesque, C. Dufour, E. Paumier, Phase transformation induced in pure zirconia by high energy heavy ion irradiation, Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms. 175–177 (2001) 417–421. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(00\)00609-1](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(00)00609-1).
- [14] V. Chailley, Thèse de l'université de Caen (1996)., n.d.
- [15] R. Fleischer, P. Price, R. Walker, J. Appl.Phys. 36 ,3645, (1965).
- [16] C.Toulemonde, M., Paumier, E., Dufour, Radiat. Eff. Defects Solids Inc. Plasma Sci. Plasma Technol. 126 (1993) 201–206., (n.d.).
- [17] G. Sattonnay, C. Grygiel, I. Monnet, C. Legros, M. Herbst-Ghysel, L. Thomé, Phenomenological model for the formation of heterogeneous tracks in pyrochlores irradiated with swift heavy ions, Acta Mater. 60 (2012) 22–34.

<https://doi.org/10.1016/j.actamat.2011.09.017>.

- [18] D. Lesueur and A. Dunlop, *Rad. Effects and Def. in Solids* 126, 163 (1993)., (n.d.).
- [19] C. Dufour, E. Lesellier de chezelles, V. Delignon M. Toulemonde and E. Paumier, *Modifications induced by irradiation in glasses* ed. P Massoldi (Amsterdam: North-Holland) p. 61 (1992)., (n.d.).
- [20] M. P. R. Waligorski, R. N. Hamm and R. Katz, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* 11, 309 (1986)., (n.d.).
- [21] M. Toulemonde, W. J. Weber, G. Li, V. Shutthanandan, P. Kluth, T. Yang, Y. Wang, and Y. Zhang, *Phys. Rev. B*, 83, 054106 (2011)., (n.d.).
- [22] H.D. Mieskes, W. Assmann, F. Grüner, H. Kucal, Z.G. Wang, M. Toulemonde, *Electronic and nuclear thermal spike effects in sputtering of metals with energetic heavy ions*, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* 67 (2003).
<https://doi.org/10.1103/PHYSREVB.67.155414>.
- [23] M. Toulemonde, J.M. Constantini, C. Dufour, A. Meftah, E. Paumier and F.Studer, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms.* B 116, 37 (1996)., (n.d.).

Chapitre II

Mélange ionique par ions

Dans ce chapitre, nous allons présenter quelques concepts de base sur le mélange ionique. Nous définirons le phénomène de mélange ionique et ses paramètres, l'effet de la thermodynamique sur le mélange ionique et le mécanisme de mélange dans différentes gammes d'énergie. Nous décrirons également différents modèles phénoménologiques pour le calcul quantitatif du taux de mélange. Puis, nous passerons aux résultats très récents du mélange ionique à l'interface des multicouches du système Au-Ni.

II.1. Le mélange ionique

Le mélange ionique, tire son origine expérimentale du concept de l'implantation ionique à forte dose. Le mélange ionique est une technologie utilisée pour obtenir différents changements structuraux de différents matériaux et produire des matériaux avec de nouvelles caractéristiques, physiques [1] et magnétiques [2]. Cette technologie utilise des faisceaux d'ions générés par différents types d'accélérateurs, pour provoquer de grands réarrangements atomiques autour de l'interface entre deux matériaux différents, conduisant à la formation d'alliages à l'interface. Ce processus est connu sous le nom de mélange ionique "Ion Beam Mixing" [3].

Cette technique offre plusieurs avantages par rapport aux techniques classiques, parmi ces avantages :

- La capacité de mélanger des systèmes non miscibles c'est l'aspect le plus intéressant de cette technique.
- La sélectivité spatiale : offre un moyen de synthétiser des phases dans une région souhaitée en irradiant les films dans cette région.
- Cette méthode ne nécessite pas de températures élevées comme le recuit thermique (plusieurs centaines de degrés Celsius), qui peut être réalisé même à température ambiante.
- De plus, si le courant ionique est suffisamment élevé, il consomme moins de temps de synthèse que les autres technologies.

La première expérience de mélange ionique a été réalisée par Weg et al. [4]; ils ont pris un substrat de silicium recouvert avec un film de palladium puis ils l'ont irradié avec des ions de phosphore (P^+) de haute énergie. Weng et al. [4] ont observé la formation de siliciure de palladium, ce qui indique qu'il y a une réaction entre le palladium et le silicium.

D'autre part, Tsaur et al. ont été les premiers à prouver que la technologie de mélange ionique peut être utilisée pour obtenir des alliages [5]. L'expérience a été réalisée sur le système (Cu-Au), ils ont constaté que la quantité d'Au qui peut être mélangée avec le Cu par mélange ionique peut largement dépasser la concentration maximale atteinte par la technologie d'implantation. Il a également découvert qu'en utilisant un film multicouche de type sandwich contenant des éléments non miscibles, un alliage peut être obtenu par le phénomène de mélange ionique.

Le phénomène de mélange ionique dans le système Bi-Sb a été étudié par Ibrahim et al. [6] en modifiant différents paramètres d'irradiation (telle que la fluence ionique, l'énergie ionique et la température). Kanjilal et al. [7] et Cheng et al. [8] ont étudié le mélange ionique et la formation d'alliages amorphes et des nouvelles phases dans différents systèmes [9].

Des travaux similaires ont été menés pour étudier le mélange ionique dans des systèmes (métal-Silicium) comme le (Co-Si) [10] (Ni-Si), (Pt-Si), (Si-Mo), (W-Si), (Cr-Si) et (Mg-Si) [11], où ils ont obtenu leurs phases stables et/ou méta-stables.

II.2. Les configurations utilisées dans l'étude de mélange ionique

Le mélange ionique peut être réalisé dans différentes configurations [12],[11]. Généralement, les configurations peuvent être divisées en trois types : les configurations de bicouche, multicouche et configuration de « sandwich ou marqueur », comme le montre la figure (II.1). Dans le cas d'une configuration de bicouche, il existe deux possibilités. La première consiste à utiliser deux couches minces A et B déposés sur un substrat S, et l'autre consiste à placer une couche des atomes A sur un substrat des atomes B. Ces différentes bicouches sont irradiées par un faisceau d'ions énergétiques X ; après l'irradiation, les atomes d'une couche A à l'interface se mélangent avec les atomes de l'autre couche B. Dans le cas de la configuration sandwich, l'épaisseur de cette couche est de quelques nanomètres et sépare les autres couches A et B. Le but de cette couche est principalement de comprendre la dynamique

des atomes lors de l'irradiation. Afin d'améliorer le mélange, plusieurs de ces doubles couches peuvent être utilisées, ou les couches A et B sont alternativement déposés sur un substrat S inerte. Les configurations bicouche et marqueur sont généralement appliqués pour étudier le mécanisme mélange ioniques, alors que les échantillons multicouches sont particulièrement adapté pour étudier les phases formées par irradiation des échantillons d'une composition globale donnée.

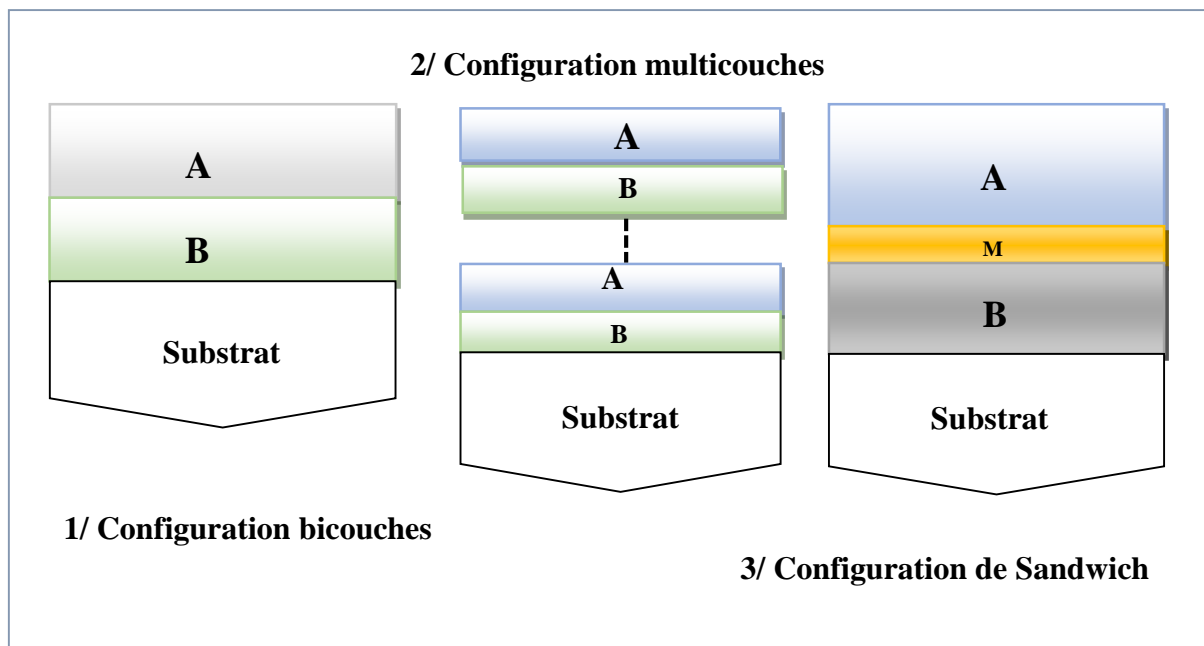


Figure II.1 : Les configurations typiques pour l'étude du mélange par faisceaux d'ions.

II.3. Les paramètres de mélange ionique

Le mélange ionique dépend de plusieurs paramètres, tels que :

- **L'énergie du faisceau d'ions :** joue un rôle important, car c'est l'un des facteurs décisifs du mécanisme de mélange, elle doit donc être choisie avec soin. Elle définit également la profondeur de pénétration des ions. Il existe trois types d'irradiation aux ions lourds : à basse énergie (keV/u), à médium énergie (centaines de keV/u) et à haute énergie (MeV/u).
- **Nombre de couches et l'épaisseur :** Ce sont des paramètres importants, car au fur et à mesure que le nombre de couches augmente, la possibilité de mélange à l'interface des deux couches

peut augmenter. Plus l'épaisseur est petite, plus les atomes sont susceptibles de se mélanger à l'interface. Par conséquent, il est toujours recommandé d'utiliser plus de couches et des films plus minces pour obtenir le meilleur effet de mélange.

En plus de ces deux paramètres évoqués jusqu'ici, la fluence d'irradiation et la température sont deux autres variables expérimentales les plus étudiées en mélange ionique. :

- **Fluence ionique** : C'est le nombre d'ions déposés sur la cible par unité de surface. Le choix des espèces d'ions est également très important. En effet, l'espèce ionique peut être la même que l'élément cible, ou il peut s'agir d'un ion de gaz inerte pour éviter les impuretés dans la matrice.

- **Température de la cible** : Un autre paramètre important dans le mélange d'ions est la température, l'irradiation ionique est souvent effectuée à basse température, par exemple à température ambiante (T_A) ou jusqu'à la température de l'azote liquide (LN_2). Néanmoins, la température mentionnée pour les expériences est souvent la température apparente mesurée au température effective est un paramètre important dans les processus induits par l'irradiation ionique, et elle doit être comparée à deux températures caractéristiques des matériaux. L'une est la température critique T_c au-dessous de laquelle l'effet de diffusion sous irradiation (RED) est négligeable.

L'autre est la température stable de la nouvellement phase formée, par exemple, si l'on s'attend à former un alliage amorphe ayant une température de transition T_{a-c} (de l'amorphe au cristallin), la température effective du film pendant l'irradiation ionique doit bien sûr être maintenu considérablement plus bas que T_{a-c} . [13].

II.4. Mécanisme du mélange ionique

Lorsque l'ion énergétique entre dans un matériau cible, il dissipe l'énergie principalement via deux processus (i) des collisions élastiques avec les noyaux des atomes cibles, appelée perte d'énergie nucléaire ou S_n et (ii) collisions inélastiques avec les électrons des atomes cibles, connue sous le nom de perte d'énergie électronique S_e .

Dans les sections qui viennent, nous discuterons d'abord les mécanismes du mélange pour le cas des ions de faibles énergies (de l'ordre du keV/u) où la perte d'énergie s'effectue principalement par les collisions élastiques. Ensuite, nous évoquerons les mécanismes de

mélange à hautes énergies (de l'ordre de MeV/u) où l'énergie de l'ion incident est déposée par les collisions inélastiques avec les électrons des atomes cibles.

II.4.1. Le mélange ionique à basse énergie

Les ions de basse énergie avec des énergies keV/nucéon sont utilisés depuis plusieurs décennies pour provoquer des modifications proches de la surface par implantation ionique ou par mélange ionique.

A faible énergie d'irradiation ionique, le pouvoir d'arrêt électronique (S_e) est négligeable et l'énergie des ions est directement déposée sur les atomes cibles par interaction élastique entre l'ion incident et les atomes de cible. En raison de ces collisions, les atomes cibles reçoivent suffisamment d'énergie cinétique pour se déplacer de leurs positions d'origine et produire éventuellement une cascade de déplacement.

Ce déplacement d'atomes se produisant près d'une interface de deux couches de matériaux différents peut conduire au mélange de ces matériaux. Le mélange peut être divisé en deux contributions : un mélange athermique indépendant de la température présent à toute température, et une contribution additionnelle au mélange dépendante de la température et présente à des températures au-delà d'une température critique T_c . Nous allons les détailler ci-dessous.

II.4.1.1. Régime athermique du mélange

Le mélange athermique peut être divisé en deux catégories selon le numéro atomique moyen de la cible : (i) mélange balistique purement collisionnel et indépendant des propriétés thermochimiques de la cible (Target) pour les cibles légers $Z_t \leq 18$, et (ii) un mélange dépendant des propriétés thermochimiques de la cible se produisant dans les pointes thermiques dans les cibles relativement lourdes $Z_t > 18$.

II.4.1.1.1 Mélange balistique

Le processus balistique implique des collisions élastiques entre les atomes de cible et projectile, cela prend de 0,1 à 1 picosecondes [14]. Il a été constaté que le mélange ionique dans les systèmes cibles à faible numéro atomique ($Z_t \leq 18$) est de nature purement balistique [15]. Le mélange balistique peut être divisé en deux types, le mélange ionique de recul et le mélange en cascade [14].

a. Le mélange par ions de recul

Lorsqu'un ion incident frappe un atome cible (M) près de l'interface métal/substrat, l'énergie cinétique de certains des ions incidents est transférée à l'atome cible. Dans ce processus, les atomes cibles se déplaceront de leurs positions d'origine par des collisions simples et répétées entre les atomes cibles et les ions incidents ; c'est la forme la plus simple de mélange balistique.

b. Mélange par déplacement en cascade

Outre le mélange de recul, il existe un autre phénomène balistique ; c'est la séquence de déplacements multiples des atomes de collision est communément appelée « cascade de collisions ». Les interactions balistiques d'un ion énergétique avec un solide sont représentées schématiquement sur la figure(II.2). La figure montre des événements de pulvérisation à la surface, des événements de recul à ion unique/atome unique et le développement d'une cascade de collisions impliquant un grand nombre d'atomes déplacés à faible énergie.

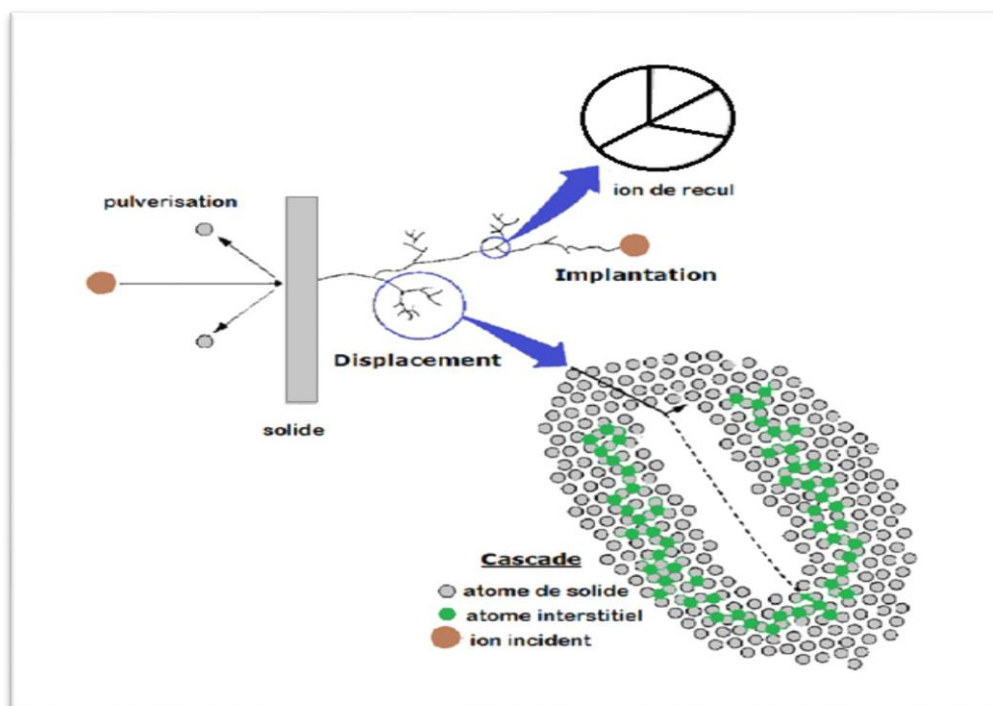


Figure II.2 : Représentation schématique des processus balistiques lors de l'interaction ion-matière. Les principaux effets tels que la pulvérisation, l'implantation, le recul, le déplacement et les cascades sont présentés.

Sigmund et Gras-Marti [16] ont développé un modèle pour le calcul du taux de mélange balistique basé sur les hypothèses suivantes :

- Les collisions sont régies par des interactions binaires (les collisions élastiques à deux corps).
- Les propriétés thermodynamiques du solide (la cible) ne sont pas prises en compte.
- Les atomes en mouvement ne peuvent entrer en collision qu'avec des atomes stationnaires, c'est-à-dire que les cascades de collision sont supposées être linéaires.
- La cible est amorphe.
- Les atomes déplacés s'arrêtent quand leur énergie atteint une valeur égale ou inférieure à 5 eV.

Ils ont proposé une formule pour calculer le taux de mélange (k) d'un système bicouche [17]:

$$k_{ba} = \frac{\Gamma \xi R_d^2}{N E_d} F_D \quad (\text{II.1})$$

Où :

- $\Gamma = 2$ (paramètre sans dimension)
- N : est la densité atomique de la cible.
- $R_d \approx 1$ nm : est la distance d'un atome cible déplacé de son site initial à la suite d'un choc avec un ion incident
- E_d : valeur seuil de l'énergie de déplacement.
- Avec $\xi = \left[\frac{4(m_1 m_2)}{(m_1 + m_2)^2} \right]^{\frac{1}{2}}$ (II.2)

Où : m_1 et m_2 sont les masses de l'ion et de la cible, respectivement.

- F_D : la densité de l'énergie déposée, c-à-dire l'énergie déposée par ion par unité de longueur (keV/nm), qui peut être exprimé par [18,19]: $F_D = (2n_v + n_r)E_d$ (II.3)

Où :

- n_v : est le nombre de sites vacants produits par nm à une profondeur particulière
- n_r : est le nombre de collisions de remplacement à la même profondeur.

Cependant, dans la grande majorité des expériences de mélange ionique sur des bicouches métalliques, il a été constaté que l'élargissement de l'interface ou le taux de mélange dépasse les prédictions du modèle balistique de facteurs de dix et plus [20–22], ils ont observé qu'une forte influence des propriétés thermodynamiques des cibles sur le mécanisme et l'efficacité de mélange ionique. Ils ont constaté que le mélange augmente avec l'augmentation de *la chaleur de mélange de la cible* et avec décroissance de *l'énergie de cohésive*.

Les effets de la thermodynamique, telles que la chaleur de mélange et l'énergie de cohésion, sont importantes lorsqu'un solide composé d'une cible relativement lourde ($Z_t > 18$) est irradié par des ions énergétiques d'énergies allant de quelques keV à plusieurs centaines de keV. Ces résultats ne peuvent pas être compris en termes de processus de mélange purement balistique, mais par une excitation des atomes dans un volume de la cascade pendant la phase de la pointe thermique.

Dans les sous-sections suivantes, les concepts thermodynamiques sont introduits pour expliquer l'efficacité de mélange.

Influence de la chaleur de mélange

Les deux systèmes suivants (Au-Cu) et (W-Cu) [23] ont été utilisés pour vérifier la dépendance du mélange vis-à-vis de la chaleur du système. Les deux systèmes ont presque les mêmes paramètres (densité atomique, numéro atomique et masse atomique), de sorte que la réponse balistique au mélange atomique devrait être la même. D'après les résultats du RBS du premier système (Figure II.3), l'Au et le Cu se mélangent bien, et le spectre de W du deuxième système est relativement inchangé après irradiation et le spectre de RBS montre juste des signes de perte de matière due à la pulvérisation. L'évaluation de ces données montre que le mélange atomique dans le système (Au-Cu) est dix fois supérieur à celui observé dans (W-Cu). Ces résultats peuvent être attribués à la différence de miscibilité entre les deux systèmes : Au et Cu sont complètement miscibles à l'état liquide et solide, tandis que W et Cu ne sont pas miscibles à l'état liquide ou solide.

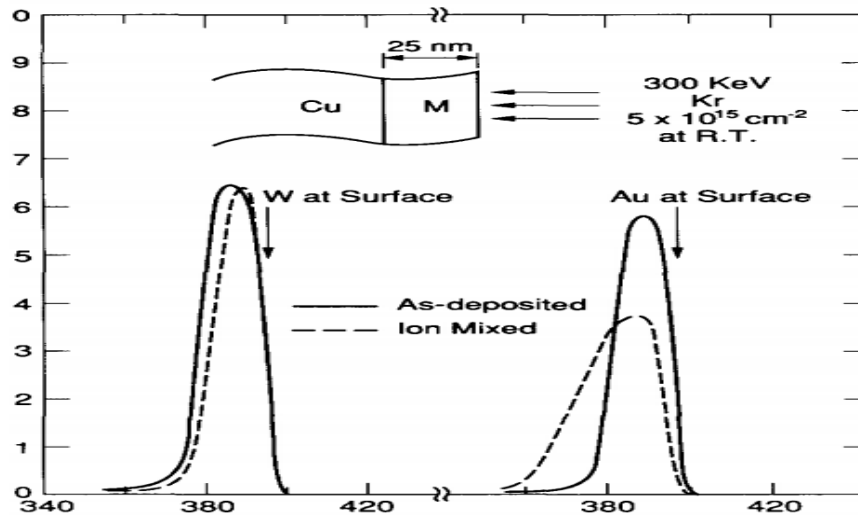


Figure II.3 : Résultats RBS du mélange des deux systèmes W-Cu et Au-Cu [23].

D'autre part, Rossum et al. [24] ont étudié les systèmes bicouches suivants (Hf – Ni) et (Hf – Ti). D'un point de vue balistique, le mélange des deux systèmes doit être presque le même. Cependant, ils ont observé que le taux de mélange du système de (Hf-Ni) était beaucoup plus élevé que celui du système de (Hf-Ti). La différence a été attribuée aux différences valeurs chaleur du mélange (ΔH_{mix}) pour les deux systèmes. Le tableau (II.1) contient les quatre systèmes bicouches (Au-Cu), (W-Cu), (Hf-Ni) et (Hf-Ti) et leurs valeurs de dE/dx et ΔH_{mix} .

Tableau II.1 : Les valeurs de la chaleur de mélange et le pouvoir d'arrêt dans les différents systèmes bicouches.

Système	ΔH_{mix} (kJ/g.at)	dE/dx (eV/ Å°)
(Au-Cu)	-9	310
(W-Cu)	+36	322
(Hf-Ni)	-62	329
(Hf-Ti)	0	335

La chaleur de mélange pour les éléments A et B est défini comme [25] :

$$\Delta H_{mix} = X_A X_B Z_C N_a \left[H_{AB} - \frac{(H_{AA} + H_{BB})}{2} \right] \quad (\text{II.4})$$

Où :

- X_A et X_B : sont les fractions molaires de A et B respectivement.
- Z_C et N_a : sont le numéro de coordination et le numéro d'Avogadro respectivement.
- H_{AA} et H_{BB} et H_{AB} : sont les Enthalpies de liaisons moyennes entre les paires d'atomes.

Dans les systèmes bicouches avec des chaleurs de mélange négatives, il existe une force de liaison pour former des alliages inter faciaux pendant l'irradiation ionique. Bien que l'on puisse s'attendre à ce que l'irradiation par faisceau d'ions mélange les structures en couches, les effets thermodynamiques peuvent submerger les processus balistiques. Si les chaleurs de mélange sont positives, l'irradiation ionique peut provoquer un mélange si la température de l'échantillon est assez faible [26] Cependant, lorsque la température augmente, la couche de mélange se sépare en ses composants. La séparation en retour du processus est appelée démixtion. Ces concepts thermodynamiques sont cohérents avec les données de la figure (II.3) et le tableau (II.1), où l'on voit que ΔH_{mix} pour Au-Cu est négatif et ΔH_{mix} pour le système (W-C) est positif.

Influence de l'énergie de cohésion

Rossum et al. ont étudié le mélange dans plusieurs systèmes, tels que : (Au-Ag), (Ta-Nb), (Hf-Zr), (Pt-Pd) et (W-Mo) irradiés avec des ions Xe d'énergie 600 keV à température 77 K. Ces systèmes ont tous une chaleur de mélange nulle ($\Delta H_{mix} = 0$), et composés d'éléments adjacents dans le tableau périodique [27]. Ils ont observé que le taux de mélange du système (Au-Ag) était cinq fois supérieur à celle du système (Pt-Pd). Il a également été trouvé qu'il n'y a pas de corrélation entre les résultats du mélange et les résultats balistiques du modèle, mais il y a une corrélation entre le taux du mélange expérimental et l'énergie cohésive.

L'influence de l'énergie cohésive sur le mélange est représentée sur la figure (II.4) en fonction de l'inverse de $(4D_i) / \Phi$ et l'énergie cohésive moyenne ΔH_{coh} pour chaque système. Ces résultats indiquent que les systèmes avec faible ΔH_{coh} ont des taux de mélange plus élevés.

L'énergie de cohésion d'un alliage A-B peut être approchée en utilisant la théorie des solutions régulières comme suit :

$$\Delta H_{Coh} = (X_A \Delta H_A^0 + X_B \Delta H_B^0) + \Delta H_{mix} \quad (\text{II-5})$$

Où :

- ✓ X_A et X_B : sont des fractions molaires de A et B.
- ✓ ΔH_A^0 et ΔH_B^0 : sont des énergies de cohésions de A et B respectivement.
- ✓ ΔH_{mix} : chaleur de mélange.

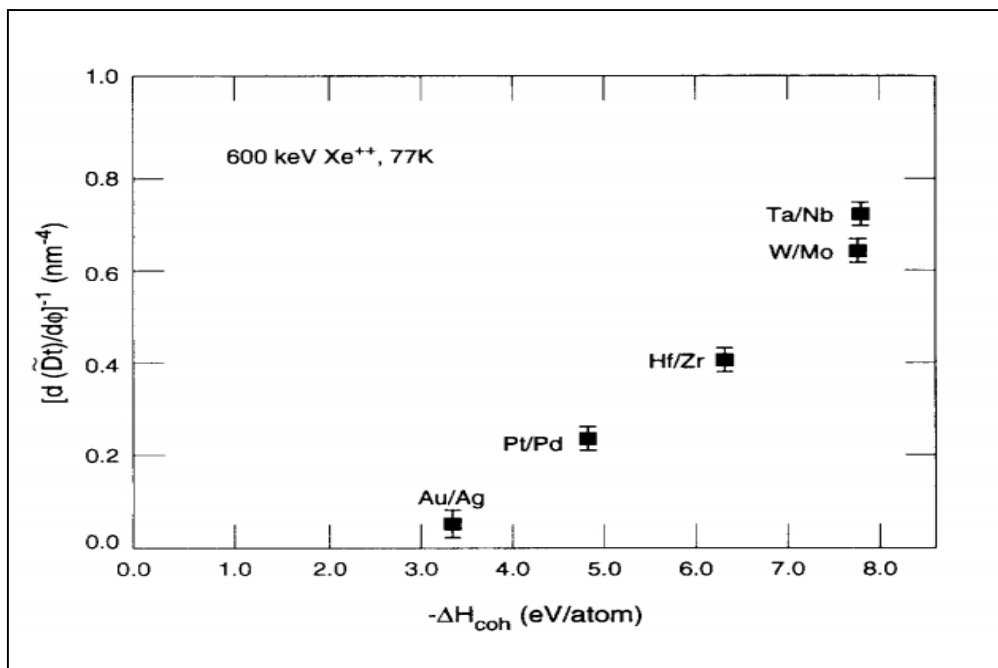


Figure II.4 : L'influence de l'énergie de cohésion sur le taux de mélange pour différents systèmes [27].

II.4.1.1.2. Mélange dépendant des propriétés thermochimiques

Le concept de pointe thermique (thermal spike)

En effet, pour les cibles ayant un plus haut nombre atomique moyen ($Z_t > 18$) la cascade de collision devient suffisamment dense et peut conduire à la formation d'une zone, le long du trajet de l'ion incident, de forme plus ou moins cylindrique où la majorité des atomes sont en mouvement temporaire. L'énergie cinétique des atomes déplacés à l'intérieur de ce volume est

transformée en fin parcours en énergie thermique. Ce volume est appelée pointe thermique. La température à l'intérieur de la pointe thermique peut dépasser la température de fusion, c'est-à-dire que la matière se comporte comme un liquide.

Le bombardement de cibles avec $Z_t > 18$ par des ions de faible et moyenne masse, conduit à la formation de pointes thermiques locales (spatialement séparées). Si maintenant ces mêmes cibles sont bombardées par des ions lourds, les pointes thermiques locales se recouvrent et forme une pointe thermique global.

Plusieurs efforts ont été réalisés afin de quantifier l'influence des paramètres thermochimiques comme ΔH_{coh} et ΔH_{mix} dans le mélange. Des modèles phénoménologiques ont été proposés afin de décrire l'interdiffusion atomique à l'intérieur des pointes thermiques et donner les expressions des taux de mélange en tenant compte des propriétés thermochimique de la cible.

A. Modèle théorique de la pointe thermique locale

Comme nous l'avons dit plus haut, l'irradiation avec des ions légers ou moyens des systèmes provenant de cibles de numéros atomiques moyens plus élevés ($Z > 18$) conduit à la formation de pointes thermiques spatialement séparées. A l'intérieur de ces zones chaudes et probablement fondues, un processus de transport atomique peut avoir lieu.

Le taux de mélange suivant a été développé dans lequel le mélange se produit par diffusion dans des pointes thermiques cylindriques spatialement séparées (locales) initiées à la fin de la sous-cascade de collision.

Le modèle de pointe thermique cylindrique local de Bolse [28] prédit que le taux de mélange est donné par :

$$k_{locale} = k'_1 \frac{Z_{avg}^{1.77} F_D}{N_{avg}^{2/3} \Delta H_{coh}} \left(1 + \frac{k'_2 \Delta H_{mix}}{\Delta H_{coh}} \right) \quad (\text{II.6})$$

Où :

- k'_1 et k'_2 : sont des constantes empiriques.
- Z_{avg} est le numéro atomique moyen.

- ΔH_{mix} : la chaleur du mélange.
- ΔH_{coh} : de l'énergie de cohésion.

B. Modèle de la pointe thermique global

Ces pointes thermiques locaux peuvent se chevaucher en cas de forte masse ionique de bombardement et forment une pointe thermique globale. L'expression de le taux de mélange est donné par :

$$k_{glob} = k_1 N^{-\frac{5}{3}} \left(\frac{F_D}{\Delta H_{coh}} \right)^2 \left(1 + \frac{k_2 \Delta H_{mix}}{\Delta H_{coh}} \right) \quad (\text{II.7})$$

Où :

- N_{avg} : est la densité atomique moyenne,
- K_1 et K_2 : paramètres avec des valeurs de 0.0034 nm et 27.4, respectivement.
- ΔH_{mix} : la chaleur du mélange.
- ΔH_{coh} : de l'énergie de cohésion.

II.4.1.2. Régime thermique du mélange

Comme nous l'avons précisé déjà, pour les basses températures d'irradiation ($T < T_c$) le mélange est indépendant de la température et l'expression théorique du taux de mélange a été décrit par les modèles phénoménologiques indiqués dans les sections précédentes. Par contre, pour les hautes températures d'irradiation ($T > T_c$), le mélange est fortement dépendant de la température. En effet, le bombardement ionique produit de nombreux types de défauts ponctuels le long des cascades de déplacements justes après le passage de l'ion (10^{-11} s). Si la température de la cible est suffisamment élevée, les défauts générés par les cascades de déplacements auront l'énergie thermique nécessaire pour contribuer au phénomène de transport atomique à travers l'interface et prolongeront ainsi le phénomène de mélange à des temps plus grands. Cette contribution est souvent appelée mélange retardé.

La température nécessaire pour réaliser un défaut mobile est appelée température de transition ou critique (T_c), et elle dépend de la cohésion énergétique (ΔH_{coh}) du système [18].

$$T_c = 95.2 \times \Delta H_{coh}(eV/atom) \quad (\text{II.8})$$

II.4.2. Le mélange ionique à haute énergie

Les faisceaux d'ions lourds à haute énergie sont reconnus comme un outil puissant pour modifier les surfaces et les interfaces à l'échelle du nanomètre. Les ions lourds rapides sont des ions dont l'énergie est supérieure à 0.1 MeV/amu. Dans ce régime énergétique, la contribution de la perte d'énergie électronique (S_e) est assez élevée par rapport à celle de la perte d'énergie nucléaire (S_n). Les ions lourds perdent leur énergie dans la cible principalement via collisions inélastiques conduisant à l'excitation et l'ionisation des atomes cible. Il existe deux modèles pour expliquer le phénomène de mélange dans ce régime énergétique : le modèle d'explosion Coulombienne et le modèle de la pointe thermique (voir description dans le chapitre I).

La première observation d'un mélange ionique par des ions lourds a été rapportée dans le système Fe/Si en 1993 par Dufour et al. [29]. Aux interfaces, la signature de mélange a été observée dans le système Ti/Si irradié par des ions lourds et pour un film de carbone de type diamant (DLC) déposé sur substrat Si [30,31]. Ces expériences ont fourni la preuve que le mélange ionique par ions lourds traversant le matériau se produit sans aucun déplacement direct des atomes par des collisions élastiques.

Mélange induit par ions lourds rapides dans l'interface métal/métal

Les ions lourds rapides peuvent induire des modifications importantes dans les systèmes métalliques au-dessus d'une valeur seuil de la perte d'énergie électronique S_e , qui varie considérablement du métal au métal.

Pour voir la sensibilité des métaux aux S_e , Sarvesh et al. [32] ont choisi deux systèmes Ti/Fe et Ti/Au de telle sorte que dans un système (Ti/Fe), à la fois Ti et Fe sont sensibles aux S_e et pour le système (Ti/Au), seul le Ti est sensible au S_e et Au sont insensibles aux S_e . Ils ont montré que le mélange est plus élevé lorsque les deux couches de métaux sont sensibles au S_e [33].

Une autre étude sur le système Ni/Ti pour voir l'effet des excitations électroniques sur le mélange ionique dans les bicouches métalliques, bicouches Ni/Ti, irradié à 80 K avec des ions Ta d'énergie de l'ordre du GeV a été étudié [34,35]. Une très forte inter-diffusion à travers l'interface indiquant que le mélange a été observée dans le système Ni/Ti à la suite d'excitations électroniques denses.

Pour observer la modification des interfaces dans les systèmes thermodynamiques non miscibles. Gupta et al. [36] ont choisi deux systèmes bicouches (Pt/C) et (Ni/C) et irradiés avec les ions de Ag d'énergie 100 MeV, ils ont observé qu'un mélange se produit dans le système Ni/C, qui est différent du système Pt/C. Dans cet exemple, le système Ni/C est miscible et Pt/C est immiscible. Dans les deux multicouches, le carbone est sensible aux S_e .

Il a été qualitativement suggéré que le mélange induit par les ions lourds rapides est dû à la formation de pointe thermique inélastique. Le soutien quantitatif de cette hypothèse a été fourni par Srivastava et al. [37]. L'hypothèse de la diffusion dans la phase fondue a été testée par une étude détaillée du mélange induit par des ions Au de 230 MeV à l'interface du système Fe/Si.

Le diamètre de la trace et la durée de la phase fondue ont été estimés théoriquement avec le modèle de pointe thermique. L'accord entre la diffusivités déduite expérimentalement et la diffusivités à l'état liquide (rapportées dans la littérature) était la première vérification complète de l'hypothèse selon laquelle le mélange induit par des ions lourds rapides est une conséquence de l'inter-diffusion dans la phase liquide de durée de vie de quelques picoseconde.

On peut tirer les conclusions suivantes sur la base d'un grand nombre d'expériences réalisées pour des ions lourds rapides (de haute énergie) jusqu'à présent :

- (i) Les deux couches doivent être thermodynamiquement miscibles, c'est-à-dire que la chaleur de mélange doit être négative pour obtenir un mélange induit par les ions lourds. Dans les systèmes immiscibles, le mélange ne se produit pas, ce qui signifie que l'interface devient pointue (lisse).
- (ii) Le mélange induit par les ions lourds a un seuil de perte d'énergie électronique S_e , au-delà duquel il se produit. L'une des deux couches doit être sensible au S_e pour que le mélange ait lieu, et le taux de mélange est assez important dans les cas où les deux couches sont sensibles au S_e . Même si l'une des couches est sensible au S_e , un

mélange induit par des ions lourds se produit si le point de fusion de la couche insensible au S_e est inférieur au point de fusion de la couche sensible au S_e .

- (iii) Le mélange induit par des ions lourds rapides peut être expliqué comme une inter-diffusion à l'interface pendant la transformation de phase.

II.5. Calcul le taux de mélange expérimentalement

Considérons le cas d'un film mince **A** déposé sur le substrat **B** et irradié par un faisceau d'ions lourds rapides ; les paramètres d'irradiation ont été choisis sur la base que le parcours d'ion est proche de l'épaisseur du film **A**. Avec des paramètres d'irradiation bien choisis, un élargissement des profils de concentration est le nombre d'atomes d'un des éléments dans la couche mélangé peut se produire à l'interface des matériaux **A** et **B**. L'élargissement du profile de concentration ($\Delta\sigma^2$) est défini comme :

$$\Delta\sigma^2 = \Delta\sigma_{irr}^2 - \Delta\sigma_{non-irr}^2 \quad (\text{II.9})$$

Où : $\Delta\sigma_{irr}^2$ et $\Delta\sigma_{non-irr}^2$ représentent les carré de l'épaisseur de la façade entre 16% et 84% de la concentration maximale d'un certain élément dans la zone d'interface (A-B) du système non irradié et irradié (Figure II.5).

Dans la plupart des cas, l'élargissement des profils de concentration est linéaire par rapport à la fluence appliquée : $\Delta\sigma^2 = k\phi$ (II.10)

Où : k est le taux de mélange

Il a observé que cette équation (II.9) est similaire (relation linier) à la équation (II.10) de distribution de concentration lors du recuit thermique du système (A –B) :

$$\Delta\sigma^2 = 2 \cdot D \cdot t \quad (\text{II.11})$$

Où D : est la diffusion et t est le temps de diffusion. D est donnée par la relation suivante :

$$D = v \cdot \lambda^2 / 6 \quad (\text{II.12})$$

Où :

- ❖ v : est la vitesse moyenne
- ❖ λ^2 : est la distance quadratique moyenne des sauts atomiques activés thermiquement.

En reliant l'équation (II.11) et l'équation (II.12), et en remplaçant ν par le nombre d'atomes par unité de densité d'énergie n_r / N .

où : n_r (le nombre d'atomes remplacés par l'ion incident et la longueur de parcours), N (la densité atomique de la cible).

Par conséquent, la relation de suivi de la vitesse de mélange k peut être obtenue par :

$$k = \frac{\Delta\theta^2}{\Delta\phi} = n_r / 3 \cdot N \lambda_r^2 \quad (\text{II.13})$$

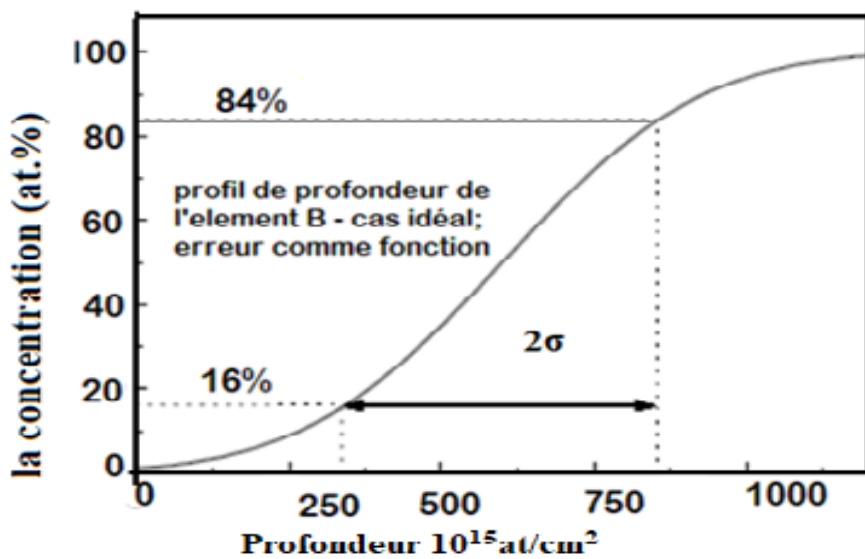


Figure II.5 : La détermination de la variation de la concentration avec la profondeur.

II.6. L'importance de système (Au-Ni)

Dans ce thèse, nous avons choisi le système (Au-Ni) pour étudier le mélange ionique car il pose plusieurs problèmes de physique intéressants et ses applications en science et technologie. Le système (Au-Ni) est l'une des nanoparticules bimétalliques importantes, avec des propriétés magnétiques et optiques importantes. La nature amorphe de (Au-Ni) à une dureté et une résistance élevées, ce qui nous permet de l'utiliser pour des applications de matériaux de contact électrique [38] et des matériaux de contact pour commutateurs de systèmes micro-électro- mécaniques (MEMS) [39]. La forme d'alliage bimétallique Au-Ni ou de catalyseur est

utilisée dans le domaine de la catalyse [40], comme précurseur pour la préparation d'électrodes à basse température. Sous forme de film ou de couche métallique, il est généralement utilisé comme support d'enregistrement.

De nombreuses études ont été menées sur le système (métal-métal) pour étudier le phénomène de mélange ionique, par exemple, Mayer et al. [41] ont rapporté la formation d'une phase intermétallique après avoir été bombardée par un faisceau d'ions de haute énergie. Tsaur et al. [5] ont également confirmé la possibilité de former une phase stable par le mélange ionique ; des faisceaux d'ions Xe^+ à haute énergie ont été utilisés pour bombarder trois échantillons multicouches Au-Ni d'une épaisseur de 800-1000Å, dont la composition était $\text{Au}_{50}\text{Ni}_{50}$, $\text{Au}_{25}\text{Ni}_{75}$ et $\text{Au}_{75}\text{Ni}_{25}$. Ils ont découvert que la solution solide (Au-Ni) de phase métastable et de structure FCC s'est formée.

Dans une autre étude de F. Tamisier et al, [42] des expériences de mélange d'ions sur réseau (Au-Ni) ont été réalisées en utilisant des ions Kr lourds d'une énergie de 340 keV. L'objectif de cette étude était d'observer l'effet de l'irradiation ionique sur la structure multicouche (Au-Ni) et d'analyser l'évolution de la microstructure qui se produit lors de l'irradiation d'ions à température ambiante, et d'étudier la relation avec les processus induite par les ions. Ils ont découvert que l'amorphisation peut être induite à basse température, alors qu'une solution solide complète se forme à température ambiante [42].

L. S. Hung et al(1983) [43] ont étudié le mélange ionique sur des bicouches (Au-Ni) déposées sur un substrat de Si et SiO_2 . Les bicouches sont irradiées avec des ions Xe à des fluences entre 0.5×10^{15} et $6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$; Ils ont observé que lorsque des échantillons de Si/Au/Ni étaient irradiés, un alliage amorphe Au-Si était initialement formé, ensuite Si réagissait avec le Ni pour former Ni_2Si , formant ainsi la structure finale de la couche d'alliage de Si /Au- Si / Ni_2Si . Ils ont trouvé que le mélange ionique du système bicouche sur le substrat de SiO_2 , Au et Ni était complètement mélangé et former des solutions solides de divers composition. La présence de Si provoque une séparation de phases entre les alliages Ni_2Si et Au-Si, plutôt qu'une dispersion lors du bombardement ionique, ce qui est principalement dû à la présence de forces thermodynamiques dans le mélange ionique.

Basé sur les résultats de diverses études du système (Au-Ni); D. Datta et R. Bhattacharyya et al . [44-46] ont mené une série d'études et d'expériences pour mieux comprendre le

phénomène de mélange d'ions dans le système Au-Ni. Ils ont déterminé expérimentalement le taux de mélange à partir des profils RBS et comparé les résultats obtenus avec le taux de mélange calculé à partir des formules théoriques :

- ❖ L'Etude l'effet de fluences sur le taux de mélange ionique pour le system bicouche (Au – Ni) par des ions Kr de l'énergie 300 keV : il a été observé que l'élargissement de l'interface ($\Delta\sigma^2$) et varie linéairement avec l'augmentation de fluence. Le taux de mélange calculé expérimentalement était égale $4,4 \text{ nm}^4$. Ils ont également trouvé que le résultat de taux de mélange ne pouvait pas être expliqué par le modèle balistique. Ils qu'un modèle thermodynamique de la pointe thermique peut interpréter le résultat [44].
- ❖ L'étude le mélange induit par faisceau d'ions sur des multicouches de (Au-Ni) Co-pulvérisés analysés par Rutherford spectrométrie de rétrodiffusion : Il a été observé que la variation de $\Delta\sigma^2$ avec la fluence suit une relation linéaire jusqu'à une certaine fluence ionique qui donne des taux de mélange de 6.9 et 9.3 nm^4 pour Au et Si, respectivement. Il y a aussi une formation de composite Au – Ni – Si à la surface [47] .
- ❖ L'étude de mécanisme de mélange induit par les ions dans la bicouche (Au-Ni/Si) bombardés par 100 keV Ar^+ , 260 et 300 keV Kr^{+2} ; 400 keV et 132 keV Xe^{+3} avec des fluences ioniques entre 2×10^{14} à $5 \times 10^{15} \text{ ions /cm}^2$ [46].

Les résultats de mélange ionique obtenus par les expériences précédentes effectuées de D. Datta et al. sur le système Au-Ni collectés dans le tableau (II.2) suivant qui contient le taux de mélange ionique calculer expérimentalement et avec différents modèles phénoménologiques (balistique ; la pointe thermique locale, la pointe thermique globale).

Tableau II.3 : les résultats de mélange de faisceaux d'ions obtenus par les expériences précédentes effectuées sur le système Au-Ni.

Système bicouche	Ion (Kev)	Le taux de mélange $\Delta\sigma^2/\Phi$ (nm ⁴)				Réf
		Exp	Ball	Local	Global	
Au-Ni (40/30nm)	Kr(300)	4.4	/	/	/	[44]
Au-Ni (30nm)	Ar(160)	9.6				[47]
Au-Ni (30nm/10nm)	Ar(100)	3.7	1.5	4.2	0.41	[46]
Au-Ni (40nm/60nm)	Kr(260)	5.3	3.0	15.1	4.9	[46]
Au-Ni (30nm/10nm)	Kr(300)	4.1	2.9	12.6	3.5	[46]
Au-Ni (40nm/60nm)	Xe(400)	6.9	3.4	18.4	7.1	[46]

II.7. Le but de ce travail

Les premières investigations de mélange ionique sur les bicouches et les super-réseaux Au-Ni ont été réalisées dans la gamme d'énergie de 100 à 500 keV, les résultats ont révélé un mélange complet à des fluences plus élevées, suggérant une mobilité au cours du processus d'oxydation. Cette forte mobilité atomique a favorisé la solubilité de Au et Ni et conduit à la formation de solutions solides et d'alliages de Au-Ni. Récemment, Datta et al. [46] ont réalisé une étude quantitative du mélange ionique dans le système Au/Ni irradié avec différentes espèces d'ions dans la gamme d'énergie de 100 à 400 keV. Ils ont discuté des mécanismes de mélange en comparant les taux de mélange mesurés avec ceux calculés à l'aide de différents modèles phénoménologiques. Cependant, les études liées à la formation de phase induite et à la compréhension du système Au-Ni non miscible irradié avec des ions lourds à haute énergie et des ions à moyenne énergie sont encore absentes dans la littérature. Dans le présent travail, nous examinons d'abord la modification de l'interface et la formation de phase dans [Au(20nm)/Ni(20nm)]₅/Si multicouche causée par deux régimes d'énergie ionique différents ; 500 keV Xe ioniques et ioniques Au 100 MeV, utilisant les techniques suivantes : DRX, RBS et FESEM pour voir les changements après l'irradiation . Ensuite, nous utilisons les simulations u-TSM pour examiner IBM dans le système Au/Ni causée par l'irradiation ionique dans les deux cas. Pour cela, nous combinons les taux de mélange expérimentaux rapporté dans la référence [46] avec les résultats de calculs de modèle de la pointe thermique pour estimer la diffusivité à l'interface.

Bibliographie

- [1] J.P. Hirvonen, M. Nastasi, J.W. Mayer, Unlubricated friction and wear of an ion beam mixed, nitrogen-implanted Fe₅₀Ti₅₀ surface alloy on AISI 304 stainless steel, *Appl. Phys. Lett.* 51 (1987) 232–234. <https://doi.org/10.1063/1.98458>.
- [2] J. Fassbender, J. Von Borany, A. Mücklich, K. Potzger, W. Möller, J. McCord, L. Schultz, R. Mattheis, Structural and magnetic modifications of Cr-implanted Permalloy, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* 73 (2006). <https://doi.org/10.1103/PHYSREVB.73.184410>.
- [3] M.Nastasi, , J.W. Mayer, and J.K. Hirvonen, *Ion-Solid Interactions: Fundamentals and Applications*, Cambridge Solid State Science Series. University Press, Cambridge, 1996.
- [4] W.F. Van der Weg, , D. Sigurd, and J. W. Mayer, *Applications of ion beams to metals*, edited by S.T. Picraux, E. P. EerNiss and F. L. Vook (Plenum Press, New York, p. 209, 1973).
- [5] B.Y. Tsaur, , Z.L. Liao and J.W. Mayer *Phys. Lett.*A71, 270, (1979).
- [6] A. Ibrahim, , D. Thompson, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 7 ,566, (1985).
- [7] D.Kanjilal, , S. Chopra, M. Narayanan, I.S. Iyer, V. Jha, R. Joshi, S. Datta,*Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 328 , 97, (1993).
- [8] Y.T.Cheng, ,*Mat .Sc 0.Rep .5* 45, (1990).
- [9] Dhar, PhD Thesis, Dept. of Phys., IIT Kanpur, 1996.
- [10] Xia, W. , M. Fernandes, C. A. Hewett, S. S. Lau, D. B. Poker, and J. P. Biersack, *Nucl. Instr. and Meth. B* 37/38, 408 (1989), (n.d.).
- [11] W.Xia, C. A. Hewett, M. Fernandes, S. S Lau and D. B Poker, *J. Appl. Phys.*, 65, 2300, (1989).
- [12] B.M. PAINE, et AVERBACK, Robert S. *Ion beam mixing: basic experiments. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 7 p. 666-675, (1985).
- [13] B.X. Liu, *Ion Mixing and Metallic Alloy Phase Formation*, *Phys. Status Solidi.* 94 (1986) 11–34. <https://doi.org/10.1002/PSSA.2210940102>.
- [14] W. Bolse, , *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* 80/81, 137, (1993).
- [15] P. Sigmund, , *Rev. Roum. Phys.*, 17 823, 969, 1079., (1972).
- [16] P. Sigmund, A. Gras-Marti, *Theoretical aspects of atomic mixing by ion beams*, *Nucl. Instruments Methods.* 182–183 (1981) 25–41. [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(81\)90668-6](https://doi.org/10.1016/0029-554X(81)90668-6).
- [17] L. Christel, J.F. Gibbons and S. Mylroic, *Nucl. Instr. and Meth*, 182-183 ,187, (1981).
- [18] W. Bolse, , *Mater. Sci. Eng. R* 12, 53, (1994).

- [19] Leena Rissanen, , Ph. D thesis, (<http://webdoc.subgwdg.de/diss/2000/rissanen/index.htm>), 1999.
- [20] M. Van Rossum, U. Shreter, W.L. Johnson, M.A. Nicolet, Amorphization of Thin Multilayer Films by Ion Mixing and Solid State Reaction, *MRS Online Proc. Libr.* 1984 271. 27 (1983) 127–132. <https://doi.org/10.1557/PROC-27-127>.
- [21] Z.L. Wang, , J.F.M. Westendorp and F.W. Saris, *Nucl Instr. Meth.*, 209/210 (1983) 115., (n.d.).
- [22] Y.T. Cheng, M. van Rossum, M.A. Nicolet and W.L. Johnson, *Appl. Phys. Lett.*, 45 (1984) 127., (n.d.).
- [23] H.westendrop, ,Z-L.wang and F.w.Saris,*Nucl.Instrum.Meth.*194.543, (1982).
- [24] M. Van Rossum, U. Shreter, W.L. Johnson, M.A. Nicolet, Amorphization of Thin Multilayer Films by Ion Mixing and Solid State Reaction, *MRS Online Proc. Libr.* 1984 271. 27 (1983) 127–132. <https://doi.org/10.1557/PROC-27-127>.
- [25] R.A. Swalin, *Thermodynamics of Solids*, 2nd edn., Wiley-Inter-science, New York, 1972.
- [26] R.S. Averback, D. Peak, L.J. Thompson, Ion-beam mixing in pure and in immiscible copper bilayer systems, *Appl. Phys. A Solids Surfaces.* 39 (1986) 59–64. <https://doi.org/10.1007/BF01177164>.
- [27] M. Van Rossum, Y.T. Cheng, M.A. Nicolet, W.L. Johnson, Correlation between cohesive energy and mixing rate in ion mixing of metallic bilayers, *Appl. Phys. Lett.* 46 (1985) 610–612. <https://doi.org/10.1063/1.95557>.
- [28] J.I. Goldstein, D.E. Newbury, P. Echlin, D.C. Joy, C.E. Lyman, E. Lifshin, L. Sawyer, J.R. Michael, *Scanning Electron Microscopy and X-ray Microanalysis*, (2003). <https://doi.org/10.1007/978-1-4615-0215-9>.
- [29] J.C. Pivin, , D.K. Avasthi, F. Singh, A. Kumar, E. Pippel and G. Sagon, *Nucl. Instr. and Meth.*, B 236 (2005) 73., (n.d.).
- [30] J. c. Pivin, g. roger, m.a. garcia, fouran singh and d.k. avasthi, *nucl. instr. and meth.*, b 215 (2004) 373 ., (n.d.).
- [31] B. Balamurugan, , B.R. Mehta, D.K. Avasthi, Fouran Singh, Akhilesh K. Arora, M. Rajalakshmi, G. Raghavan, A.K. Tyagi and S.M. Shivaprasad, *J. Appl. Phys.*, 92 (2002) 3304., (n.d.).
- [32] S. Kumar, R.S. Chauhan, S.A. Khan, W. Bolse, D.K. Avasthi, Swift heavy ion induced mixing in metal/metal system, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms.* 244 (2006) 194–197. <https://doi.org/10.1016/J.NIMB.2005.11.054>.
- [33] K. Awazu, , Xiaomin Wang, Tetsuro Komatsubara, JunWatanabe, Yuki Matsumoto, Shin'ichiWarisawa and Sunao Ishihara, *Nanotechnology*, 20 (2009) 325303. - Recherche Google, (n.d.).
- [34] Z.G. Wang, C. Dufour, S. Euphrasie, M. Toulemonde, Electronic thermal spike effects in

- intermixing of bilayers induced by swift heavy ions, *Nucl. Instruments Methods B.* 209 (2003) 194–199. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(02\)02028-1](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(02)02028-1).
- [35] R. Leguay, A. Dunlop, F. Dunstetter, N. Lorenzelli, A. Braslau, F. Bridou, J. Corno, B. Pardo, J. Chevallier, C. Colliex, A. Menelle, J.L. Rouvière, L. Thomé, Evidence for atomic mixing induced in metallic bilayers by electronic energy deposition, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms.* 122 (1997) 481–502. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(96\)00756-2](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(96)00756-2).
- [36] A. Gupta, S. Pandita, D.K. Avasthi, G.S. Lodha, R. V. Nandedkar, Swift heavy ion irradiation effects in Pt/C and Ni/C multilayers, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms.* 146 (1998) 265–270. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(98\)00433-9](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(98)00433-9).
- [37] S.K. Srivastava, D.K. Avasthi, W. Assmann, Z.G. Wang, H. Kucal, E. Jacquet, H.D. Carstanjen, M. Toulemonde, Test of the hypothesis of transient molten state diffusion for swift-heavy-ion induced mixing, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* 71 (2005). <https://doi.org/10.1103/PHYSREVB.71.193405>.
- [38] N. Togaſaki, Y. Okinaka, T. Homma, T. Osaka, *Electrochim. Acta* 51 882–887, (2005).
- [39] Z. Yang, D.J. Lichtenwalner, A.S. Morris, J. Krim, A.I. Kingon, Comparison of Au and Au-Ni alloys as contact materials for MEMS switches, *J. Microelectromechanical Syst.* 18 (2009) 287–295. <https://doi.org/10.1109/JMEMS.2008.2010850>.
- [40] A.M. Molenbroek, J.K. Nørskov, B.S. Clausen, Structure and reactivity of Ni-Au nanoparticle catalysts, *J. Phys. Chem. B.* 105 (2001) 5450–5458. <https://doi.org/10.1021/JP0043975>.
- [41] B.Y. Tsaur, , S.S. Lau, L.S. Hung, J.W. Mayer - *Nuclear Instruments and Methods*, (1981).
- [42] F. Tamisier, C. Jaouen, P. Gukrin, G. Gladyszewski, Effect of ion irradiation on the structure of Au / Ni multilayers, *Thin Solid Films.* 275 (1996) 247–250.
- [43] L.S. Hung, J. Gyulai, J.W. Mayer, Ion-induced reaction of Ni-Au bilayers both on Si and on SiO₂, *J. Appl. Phys.* 54 (1983) 5750–5754. <https://doi.org/10.1063/1.331798>.
- [44] S.R.B. D. Datta, , *nucl. instrum. meth. phys. res. b* 212, 216, (2003).
- [45] D. Datta, S.B.-A.S. Science, undefined 2008, Ion beam induced mixing of co-sputtered Au–Ni films analyzed by Rutherford backscattering spectrometry, Elsevier. (n.d.). <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0169433208016358> (accessed May 9, 2022).
- [46] D. Datta, S.R. Bhattacharyya, Mechanism of ion-induced mixing phenomena in Gold-Nickel bilayer on Si substrate, *Appl. Phys. A.* 116 (2014) 1455–1466. <https://doi.org/10.1007/S00339-014-8259-9>.
- [47] D. Datta, S.B.-A.S. Science, undefined 2008, Ion beam induced mixing of co-sputtered Au–Ni films analyzed by Rutherford backscattering spectrometry, Elsevier.

Chapitre III

Dispositifs
expérimentales et
Méthodes d'analyse

Ce chapitre détaille les techniques expérimentales utilisées pour préparer et caractériser les échantillons avant et après l'irradiation. La première section décrit brièvement les techniques de déposition des couches minces, suivie d'une description détaillée de l'équipement utilisé pour l'irradiation ionique à faible énergie et à haute énergie. Deuxième partie contient des équipements pour les méthodes analytiques utilisées, telles que la spectroscopie de rétrodiffusion de Rutherford (RBS), la diffraction des rayons X (DRX), la microscopie électronique à balayage d'émission de champ (FESEM).

III.1. Technique de déposition des couches minces

Les films minces sur un substrat peuvent être préparés par diverses méthodes de dépôt. Ces méthodes peuvent être divisées en deux genres : (i) procédés chimique (ii). Procédés physique. La classification des méthodes générale de dépositions est illustrée à la figure (III.1). Dans la présente thèse on a déposé les couches minces métallique sur un substrat de Si par un processus d'évaporation thermique (en va détailler la méthode d'évaporation par bombardement électronique).

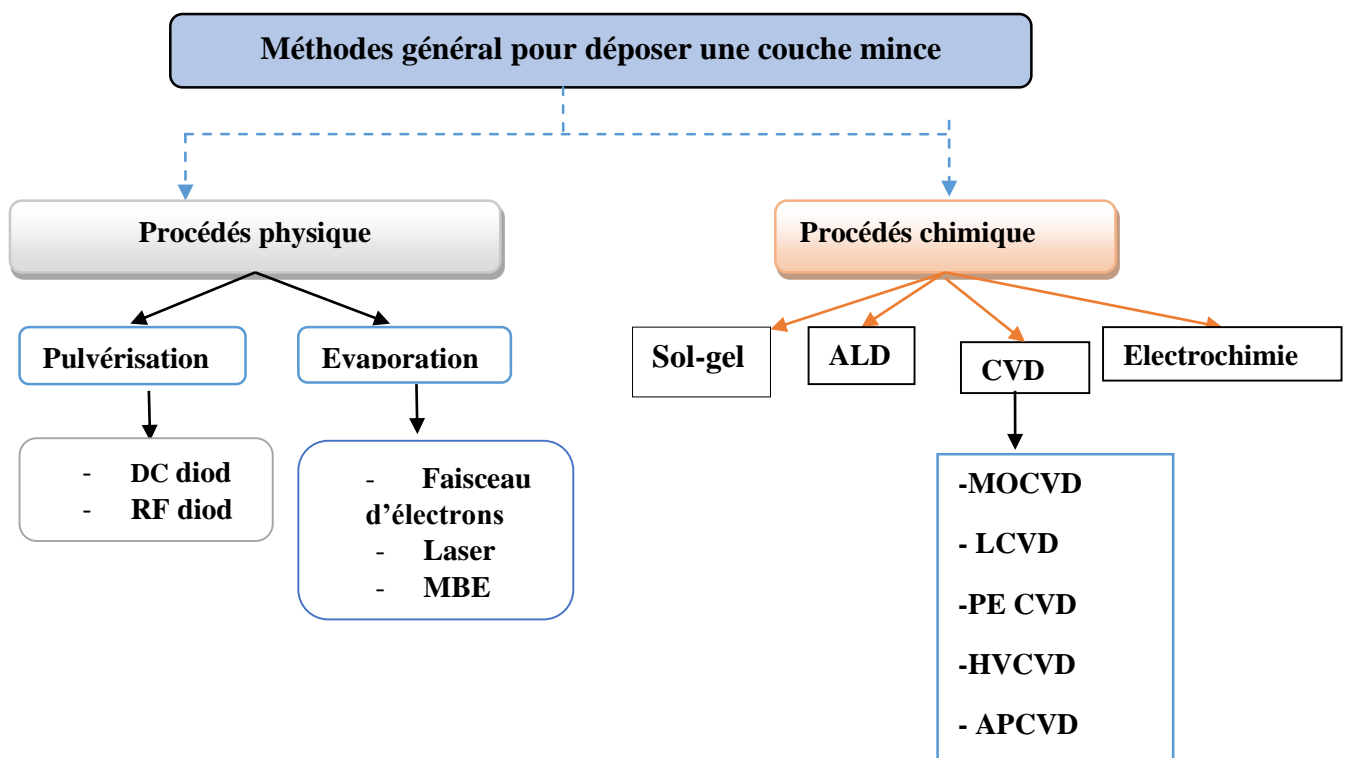


Figure III.1 : Schéma de la classification des procédés de dépôt de couches minces.

III.1.1. Procédés chimique

Le dépôt chimique implique une réaction dans laquelle le produit recouvre le substrat. Il peut être divisé en dépôt chimique en phase vapeur, dépôt en bain chimique et dépôt électrochimique.

A. Sol -gel

Cette technique, qui correspond à l'abréviation "solution-gélation", consiste à utiliser comme précurseur un composé contenant un composant chimiquement très actif, à mélanger uniformément ces matières premières en phase liquide et à effectuer une hydrolyse et une condensation chimique. Le procédé comprend deux techniques (i) : le Spin-Coating : c'est le procédé utilisé pour déposer des couches minces uniformes sur un substrat plat. Il consiste à disperser la solution sur un substrat tournant à grande vitesse par centrifugation et trempage. (ii) : revêtement par immersion : soit dépôt par immersion soit revêtement par immersion.

B. ALD (Atomic Layer Deposition)

Le dépôt de couche atomique (ALD : **Atomic Layer Deposition**) est une technique en phase vapeur utilisée pour déposer des couches ultra-minces sur un substrat. Le processus d'ALD implique que la surface d'un substrat soit exposée à des précurseurs alternés, qui ne se chevauchent pas mais sont plutôt introduits séquentiellement. Il est utilisé dans l'industrie des semi-conducteurs.

C. Les méthodes CVD (dépôt chimique en phase vapeur)

CVD est une méthode de dépôt de film basée sur des réactions chimiques de précurseur en phase vapeur espèces, qui se produisent à la fois dans la phase gazeuse et sur la surface du substrat. C'est possible avec les techniques CVD déposer des films d'épaisseur uniforme à faible porosité non seulement à plat substrats mais aussi sur des substrats de formes complexes. Habituellement, les processus CVD sont très complexes et impliquent une série de réactions en phase gazeuse et en surface.

Les méthodes CVD peut être classé comme suit : CVD thermique, CVD photo-assisté ou CVD plasma selon l'énergie fourni tel que le chauffage, le rayonnement à haute fréquence ou le plasma, respectivement.

Les méthodes CVD peut également être subdivisé comme suit :

- MOCVD : *Metalorganic Chemical Vapor Deposition* : est un processus CVD utilisant des précurseurs métallo-organiques.
- LCVD : *Laser Chemical Vapor Deposition* : est un processus chimique utilisé pour produire des films, des fibres et du matériel mécanique (MEMS) de haute pureté et de haute performance.
- UHVCVD : *Ultra High Vacuum CVD* : réalisée à pression très basse, typiquement sous 10^{-6} Pa ($\sim 10^{-8}$ torr).
- APCVD : *Atmospheric Pressure CVD* : réalisée à pression atmosphérique.

D. L'électrodéposition

L'électrodéposition est un processus conventionnel consistant à déposer une fine couche d'un métal sur un autre métal pour modifier ses propriétés de surface. Basé sur le principe de l'électrolyse, il s'agit d'un processus qui utilise un courant électrique pour réduire les cations d'un matériau souhaité à partir d'un électrolyte et déposer ces matériaux sous forme de film mince sur la surface d'un substrat conducteur. Ceci est fait pour obtenir une résistance à la corrosion, pour réduire l'usure. Par conséquent, les propriétés de surface d'un matériau peuvent être adaptées et de nouveaux matériaux peuvent être explorés pour une variété d'applications grâce à cette technique.

III.1.2. Procédés Physique

PVD le dépôt physique en phase vapeur (*Physical Vapor Deposition*) : est conduit sous basse pression (10^{-2} - 10^{-8} mbar). Il permet la réalisation sous vide de couches minces à partir d'un matériau massif. La production de la phase vapeur est assurée par deux mécanismes basés sur deux phénomènes physiques : l'évaporation et la pulvérisation cathodique (Sputtering).

A. Dépôt par pulvérisation

Le principe de la pulvérisation cathodique, appelée aussi "Sputtering", est d'utiliser l'énergie d'un plasma (gaz en partie ionisé) à la surface d'une cible (cathode), pour arracher un à un les atomes du matériau et les déposer sur le substrat (voir figure III.2). Il existe deux types de pulvérisations :

- Pulvérisation cathodique diode en courant continu (DC)
- Pulvérisation radio fréquence (RF).

B. Dépôt par évaporation thermique

L'évaporation thermique est l'une des techniques les plus utilisées pour déposer des couches minces. C'est la technique plus pratique parmi tous les procédés de PVD car il n'y a pas besoin d'injecter de gaz pour générer un plasma. Il utilise un faisceau d'électrons pour évaporer le matériau cible afin d'augmenter localement sa température, provoquant la transformation des atomes de la cible en phase gazeuse. Ces atomes alors se précipitent sur le substrat, cette opération est faite sous vide. Le vide permet à la vapeur qui contient les particules se déplacent directement vers l'objet cible (substrat), où elles se condensent à l'état solide. De manière générale, le procédé de dépôt en phase vapeur de couche mince peut être divisé en trois étapes :

- Mettre la chambre de dépôt sous vide (pression inférieure à 10^{-4} Torr) ;
- Utiliser un creuset chauffé à haute température pour évaporer les métaux ;
- La vapeur se condense sur le substrat.

Il existe de nombreux procédés de chauffage pour l'évaporation, on retrouve :

- Chauffage par faisceau d'électron : bombardement électronique (*e-beam evaporation*) ;
- Chauffage par résistance (résistif) : évaporation par effet Joule ;
- Chauffage par faisceau laser : ce qu'on appelle évaporation par ablation laser.

Le système d'évaporation thermique est montré dans la figure (III.2), le système compose deux trous de vu, un porte-substrat est situé à environ 15 cm au-dessus des deux nacelles chauffantes. Pour les films de qualité supérieure, la vitesse de dépôt et la rotation du substrat restent constantes tout au long du processus de dépôt. Il y a un obturateur sous le substrat de support qui nous aide à démarrer le dépôt après un certain taux de dépôt afin qu'il puisse être arrêté immédiatement en cas de besoin.

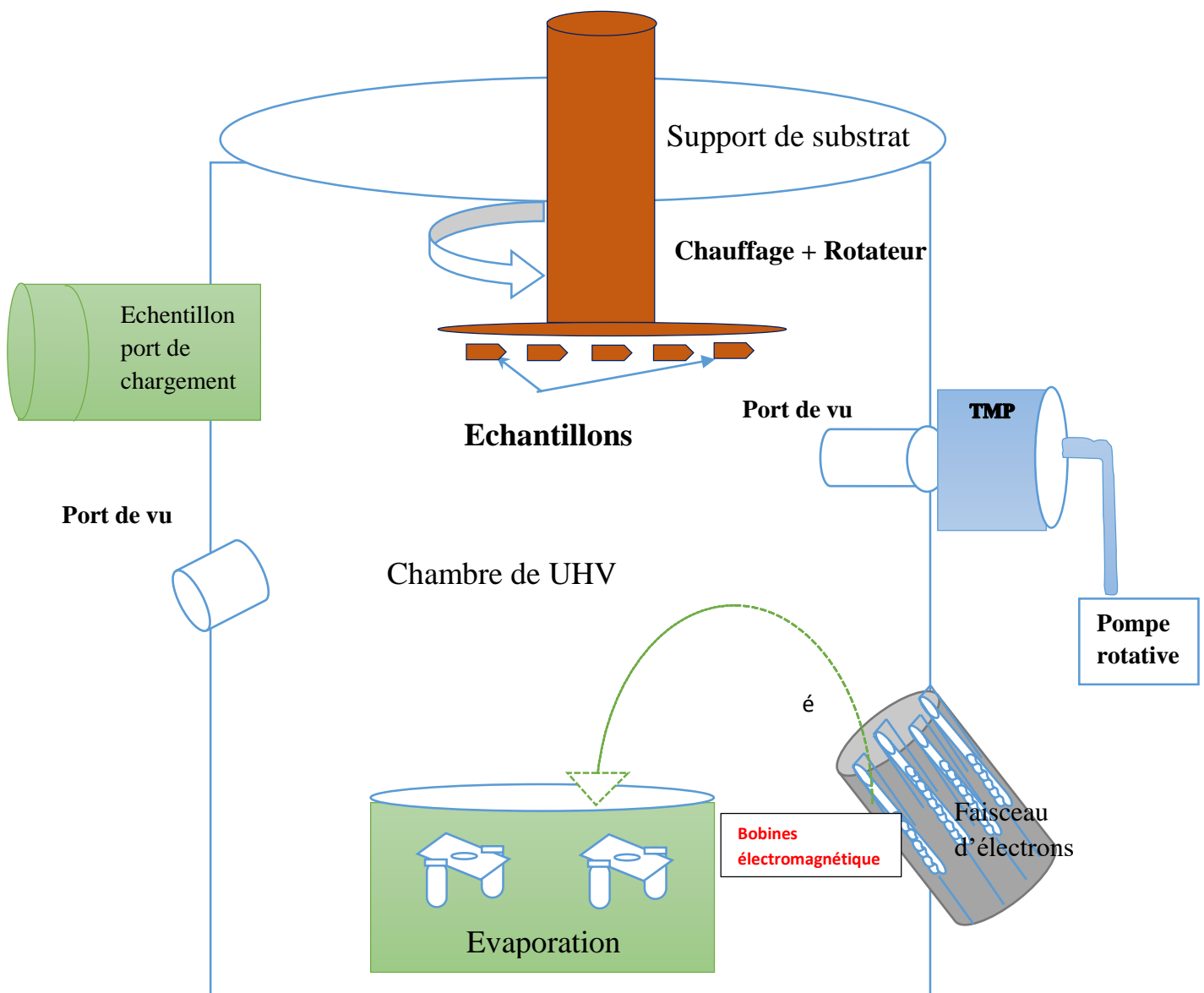


Figure III.2 : Schéma de principe des systèmes d'évaporation thermique.

C. Evaporation par bombardement électronique

L'évaporation par faisceau d'électrons est un procédé permettant de déposer de couches minces de métaux plus difficiles à déposer par voie thermique évaporation (comme Au et Ti). L'avantage de cette technique est : la pureté des couches déposées. Cette méthode est très utilisée pour les dépôts des métaux de transition et spécialement les métaux réfractaires parce qu'elle utilise une grande puissance de chauffage avec très haute efficacité de contrôle et un bon contrôle de vitesse .[1]

Le système de dépôt par évaporation par faisceau d'électrons utilisé au laboratoire est illustré à la figure (III.2) ; cette technique consiste à porter un filament généralement en tungstène ou tantale chauffé à haute température émet des électrons qui sont accélérés par un champ électrique. Le faisceau est focalisé à l'aide des bobines électromagnétiques sur l'intérieur du creuset. Ainsi l'énergie cinétique des électrons est convertie en énergie thermique pour évaporer le matériau [2][3].Le matériau repose en pratique sur une nacelle de cuivre refroidie par une circulation d'eau afin d'éviter qu'elle ne s'évapore également. Le substrat se trouve en face des creusets constitués du matériau utilisé pour enrobage. L'épaisseur souhaitée est mesurée in situ à l'aide d'un moniteur d'épaisseur de cristal à l'aide de la corrélation entre la fréquence d'oscillation et la masse du cristal (augmentation au fur et à mesure que des matériaux s'y déposent). Un instrument électronique convertit la fréquence donnée aux données d'épaisseur.

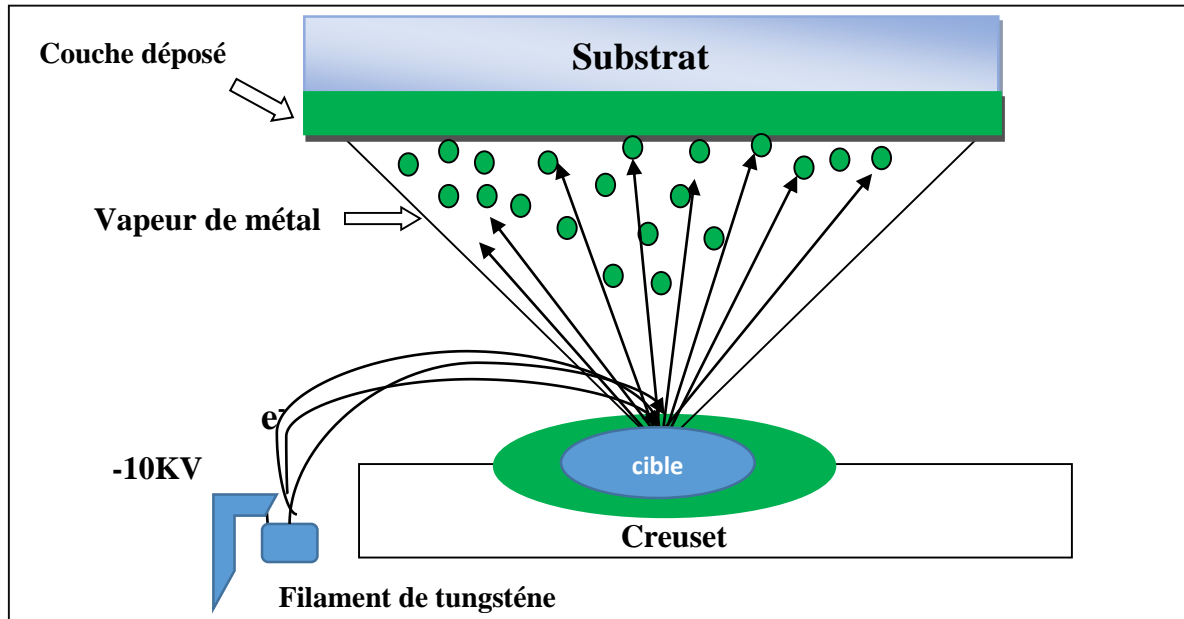


Figure III.3 : Schéma de principe d'un système de chauffage par un faisceau d'électrons.

D. Evaporation par effet Joule

L'effet Joule porte le nom du physicien anglais James Prescott Joule qui l'étudié vers 1860 .C'est l'effet de chauffage produit lorsque le courant circule dans un conducteur résistif. Ce type d'évaporation consiste à faire passer un courant filament, généralement constitué de métaux faiblement réfractaires comme tantale Ta(P.F: 3017°C), tungstène W (P.F : 3422°C), molybdène Mo (P.F :2623°C) ayant un point de fusion plus élevé que le matériau source, avec pratiquement pression de vapeur égale zéro à température d'évaporation ($T \sim 1000$ à 2000 °C) [4].Le courant électrique est chauffé le métal de dépôt jusqu'au point d'évaporation. La vitesse de dépôt dépend de la température de la source(le matériau désiré évaporer), de la distance entre le creuset et le substrat, et du coefficient de liaison de la substance évaporée sur le substrat. Parmi les avantages de cette technique, nous avons cité : le taux de dépôt élevé (de 1 nm/min à 10 nm/min) ; méthode facile à utiliser ; La pureté du matériau est élevée.

III.2. Elaboration des échantillons

III.2.1. Les propriétés des matériaux utilisés

Nous utilisons le substrat de silicium pour déposer notre multicouches. Les métaux utilisés dans cette étude sont le nickel pur et l'or pur. Nous citerons quelques paramètres physiques de Au et Ni dans le tableau (III.1).

Tableau III.1 : Les paramètres physiques pour Au et Ni [5,6] .

Paramètres physique	Au	Ni
Numéro atomique	79	28
Structure cristalline	CFC ($a = 4,072 \text{ \AA}$)	CFC ($a = 3,62 \text{ \AA}$)
Couplage e-phonon(g)	2.3×10^{10}	1×10^{12}
Température de fusion (K)	1337	1726
Chaleur latente de fusion (J/g)	63.7	279
Température d'ébullition (K)	3080	3003
Chaleur latente d'ébullition (J/g)	1,675	6309
Densité solide (g/cm ³)	19,3	8,9
Densité liquide (g/cm ³)	17,31	7,9
Energie requise pour la fusion E_{am} (ev/atm)	0,43	0,66
Température pour donne une pression vapeur (Torr)	807×10^{-8}	972×10^{-8}
Source thermique (dans évaporation par bombardement électronique)	W/Al ₂ O ₃	W /Al ₂ O ₃

III.2.2. Préparation du substrat

Avant de déposer les multicouches, le substrat doit être nettoyé pour obtenir une bonne adhérence de la couche mince. Nous l'y nettoyons en suivant le protocole suivant :

- Tout d'abord, utilise un stylo à pointe de diamant pour découper le substrat en un carré de 1 cm x 1 cm.
- Dans un deuxième temps, nous dégraissons le substrat en nettoyant le substrat avec 3 solutions continues : l'eau avec le savon, isopropanol et acétone. Nous utilisons HF dans la cas de substrat de Si .

- Ils sont ensuite séchés à l'azote pour éliminer les contaminants et les oxydes.

III.2.3. Déposition des couches minces

En utilisant un équipement d'évaporation thermique qui évapore les métaux d'Au et de Ni ultra-purs à une pression inférieure à 5×10^{-7} mbar, notre système multicouche est déposé avec cinq doubles couches [Au / Ni]_{x5} implantées sur le substrat de silicium. L'épaisseur de chaque couche est d'environ 20 nm, ce qui a été confirmé par la technique de spectroscopie de rétrodiffusion de Rutherford (RBS). Comme le montre la photo (III.4), la couche supérieure est une couche d'Au pour éviter l'oxydation du Ni.

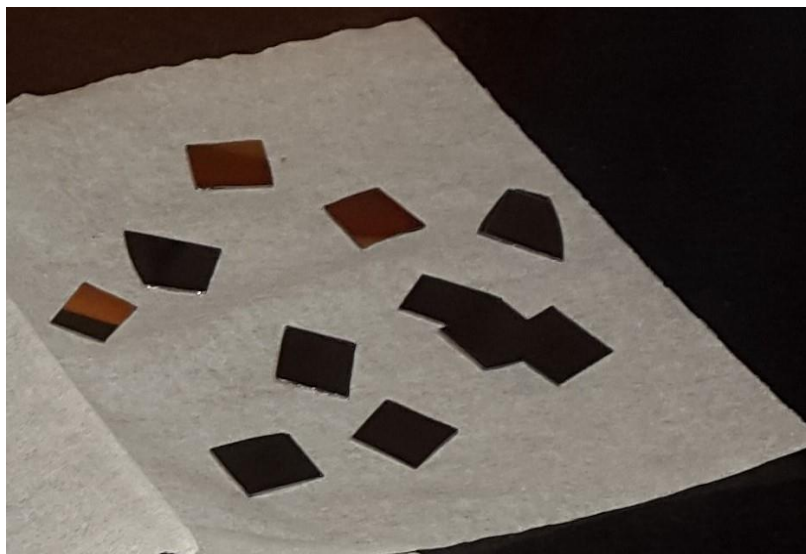


Figure III.4 : Photo des multicouches préparées [Au/Ni]_{x5}/Si.

III.3. Irradiation des échantillons

Dans ce travail, selon le type d'ion et l'énergie souhaitée, deux types d'accélérateurs sont utilisés pour irradier les échantillons. Pour les échantillons irradiés à faible énergie, nous avons utilisé l'accélérateur LEIBF (Low Energy Ion Beam Facility) à partir d'une source ECR (Electron Cyclotron Resonance), qui fournit des ions Xe^{+2} d'énergie 500 keV.

Pour les multicouches irradiées à haute énergie, nous avons utilisé l'accélérateur « Pelletron 15UD » pour délivrer des ions d'Aude haute énergie de 100 MeV. Nous fournissons des informations plus détaillées sur les deux accélérateurs.

III.3.1. Installation à faisceaux d'ions à faible énergie

L'accélérateur de faible énergie (Low Energy Ion Beam Facility (LEIBF)) de New Delhi fournit diverses énergies allant de quelques keV à environ 1 MeV de faisceaux d'ions à charges multichargés. Le premier ensemble d'échantillons a été irradié à température ambiante avec une énergie relativement faible d'ions Xe de 500 keV, dans la gamme de fluence de 5×10^{14} - 10^{16} ions / cm^2 avec un flux 3.2×10^{12} ions $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

Le dispositif se compose :

- une source d'ions à résonance cyclotron électronique (ECR) de type nano-canon déplacé sur un pont de haute tension (10 GHz) [7]. Cette source d'ions permet de produire des ions hautement chargés de divers éléments, ainsi qu'à partir des gaz inertes. Cette résonance cyclotron électronique est utilisée pour chauffer le plasma. La différence de tension entre le pont à haut potentiel et la terre est répartie sur le tube accélérateur en bout de ligne de faisceau pour fournir aux ions l'énergie cinétique requise.
- La station de pompage fournit un vide inférieur à 10^{-6} mbar dans la zone d'aspiration et d'accélération. La station se compose de turbopompes et est soutenue par des pompes rotatives.
- Le dispositif rotatif électrostatique est utilisé pour guider le faisceau, les doubles fentes contrôlent la taille du faisceau. La répartition du faisceau d'ions dans les directions x et y est représentée par le profil du faisceau de contrôle.
- La distribution du faisceau d'ions dans les directions x et y est représentée par le profil du faisceau de contrôle.
- L'analyseur de masse est utilisé pour sélectionner les ions requis en appliquant un champ magnétique spécifique.
- Un triplé quadripolaire électrique (QT, 13) est utilisé pour focaliser les ions à la position désirée. Ensuite, utilisez un scanner à faisceau pour balayer électro-statiquement la zone de l'échantillon pour fournir une implantation uniforme.

-

III.3.2. Accélérateur d'ions lourd

Deuxième ensemble de ces multicouches a été irradié à température ambiante avec des ions Au de 100 MeV, dans une gamme de fluence de $5 \times 10^{12} - 10^{14}$ ions / cm², à un accélérateur Pelletron de 15 UD à IUAC, New Delhi, avec une source MC-SENICS. Pendant l'irradiation, le flux ionique incident a été maintenu constant autour de $8,6 \times 10^9$ ions cm⁻²s⁻¹.

Le Pelletron 15UD est un accélérateur de type tandem électrostatique, capable d'accélérer les faisceaux d'ions de tous les noyaux stables avec des énergies allant jusqu'à 200 MeV, par exemple:

¹H, ^{6,7}Li, ⁹Be, ^{10,11}B, ^{12,13}C, ^{14,15}N, ^{16,18}O, ¹⁹F, ²⁴Mg, ²⁷Al, ^{28,29,30}Si, ³¹P, ^{32,34}S, ^{35,37}Cl, ⁴⁰Ca, ⁴⁵Sc, ^{46,48}Ti, ⁵¹V, ⁵⁶Fe, ⁵⁸Ni, ⁶³Cu, ⁶⁴Zn, ⁷⁴Ge, ⁷⁹Br, ^{107,109}Ag, ¹²⁰Sn, ¹²⁷I, ¹⁹⁷Au et ²⁰⁸Pb.

Le Pelletron 15 UD est installé en configuration horizontale à l'intérieur d'un réservoir rempli de gaz isolant SF₆. L'accélérateur en tandem a deux extrémités de terre haute tension au centre du terminal. Le terminal est relié verticalement au réservoir par des tubes d'accélération. Ces tubes maintenaient un gradient de potentiel du haut du réservoir vers le terminal ainsi que du terminal vers le bas du réservoir. Deux chaînes métalliques granulaires sont utilisées pour créer une haute tension au terminal. Le terminal peut être chargé avec un potentiel élevé de 4 à 15 MV (million volts). Le principe de génération de haute tension au terminal est un générateur Van de Graaff. La source d'ions de cet accélérateur est une source d'ions négatifs à pulvérisation de césium. Des ions négatifs sont produits et pré-accélérés à 300 keV dans la source d'ions.

Le principe d'accélération est dû à l'attraction électrostatique d'ions négatifs avec un potentiel de serrage positif élevé. Le terminal est équipé d'un extracteur de gaz pompé par deux turbo-pompes. Arrivés au bout, ils passent dans un stripeur qui enlève les électrons, devenant ainsi des ions positifs. Ces ions sont accélérés jusqu'au potentiel de masse au fond du réservoir. Dans ce cas, l'accélération est due à la répulsion électrostatique entre le potentiel terminal élevé et les ions positifs générés. L'énergie de l'ion sortant (E) peut être estimée à l'aide de la formule suivante :

$$E \text{ (MeV)} = E_i + (1 \times V_T) + (q \times V_T) \quad \text{(I.1)}$$

Où :

- E_i : Énergie cinétique initiale obtenue du pont ;
- $1 \times V_T$: Énergie gagnée du haut du réservoir au terminal ;

- $q \times V_T$: Énergie gagnée après le terminal au fond du réservoir.

L'aimant de l'analyseur est ensuite utilisé pour analyser ces ions énergétiques avec l'énergie requise. Les ions sont courbés horizontalement par cet aimant. Les ions sont guidés vers la zone expérimentale souhaitée par un aimant de commutation multiport, qui peut dévier le faisceau d'ions vers l'une des six lignes de faisceau établies. En plus des faisceaux continus, on peut également prévoir des faisceaux pulsés d'une largeur de 1,2 ns à 2 ns et d'un intervalle de 250 ns à 2 us. La partie inférieure peut être équipée d'un mériou multi-harmonique, plein de vitalité. L'ensemble de la machine est contrôlé par l'ordinateur et par la salle de contrôle.

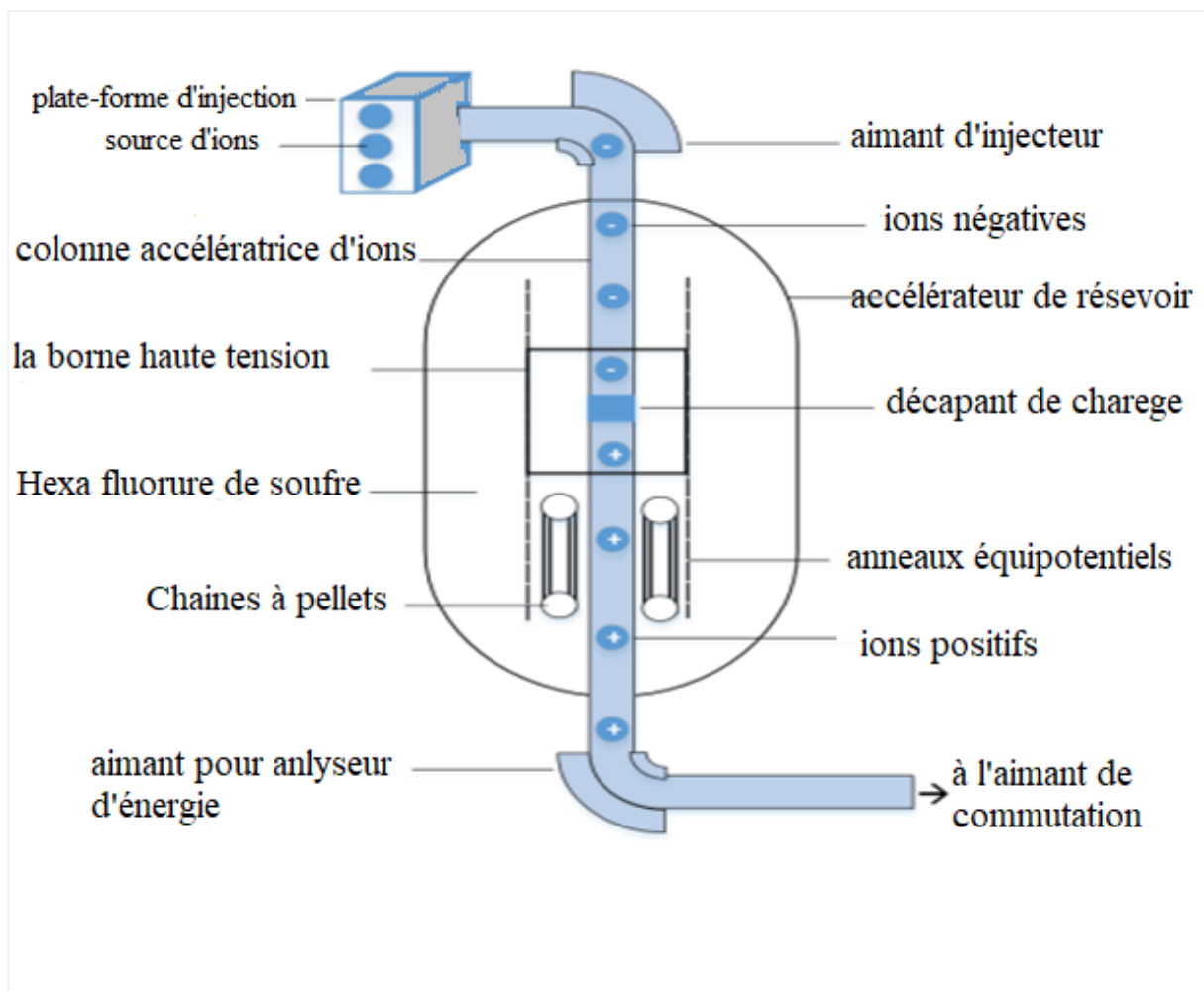


Figure III.5 : Schéma représentative d'un accélérateur tandem à pellets de 15 UD.



Figure III.6 : Photo d'un accélérateur tandem à pellets de 15 UD.

III.4. Techniques d'analyse

Les techniques d'analyse que nous avons utilisées sont : Spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford (R.B.S), la microscopie électronique à balayage d'émission de champ (FESEM) et diffraction des rayons x (DRX).

III.4.1 Spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford (RBS)

La spectroscopie de rétrodiffusion de Rutherford (RBS de l'acronyme anglais, Rutherford Backscattering Spectrometry) a été nommée d'après Lord Ernest Rutherford, qui a introduit pour la première fois le concept de noyaux atomiques en 1911. La RBS est une technique d'analyse de l'épaisseur et la composition des couches minces [8]. Dans cette technique, un faisceau d'ions soit H ou He de faible énergie est envoyé sur les échantillons. Les particules rétrodiffusées sont collectées avec un détecteur à barrière de surface à environ 165°.

III.4.1.1. Dispositif expérimental

La figure (III.7) présente le dispositif technique de RBS qui se compose de : une source d'ions, un accélérateur de particules, deux chambres d'analyse et deux systèmes d'acquisition et de traitement des données. La source d'ions produit un faisceau de particules chargées de He^{+2} ou H^+ , qui traverse un accélérateur de particules de type Van de Graff. Une salle d'analyse cylindrique, dans laquelle un vide secondaire de 10^{-6} mbar peut être atteint. Il se compose d'un porte-échantillon connecté à un goniomètre, qui est placé perpendiculairement à la face

inférieure de la chambre d'analyse. La porte d'échantillons contient sept (7) positions pour contenir différents échantillons dans les mêmes conditions de fonctionnement. Le système d'acquisition et de traitement des données se compose d'un détecteur au silicium, de particules rétrodiffusées d'une résolution de 15 keV, d'un préamplificateur et d'un analyseur multicanaux.

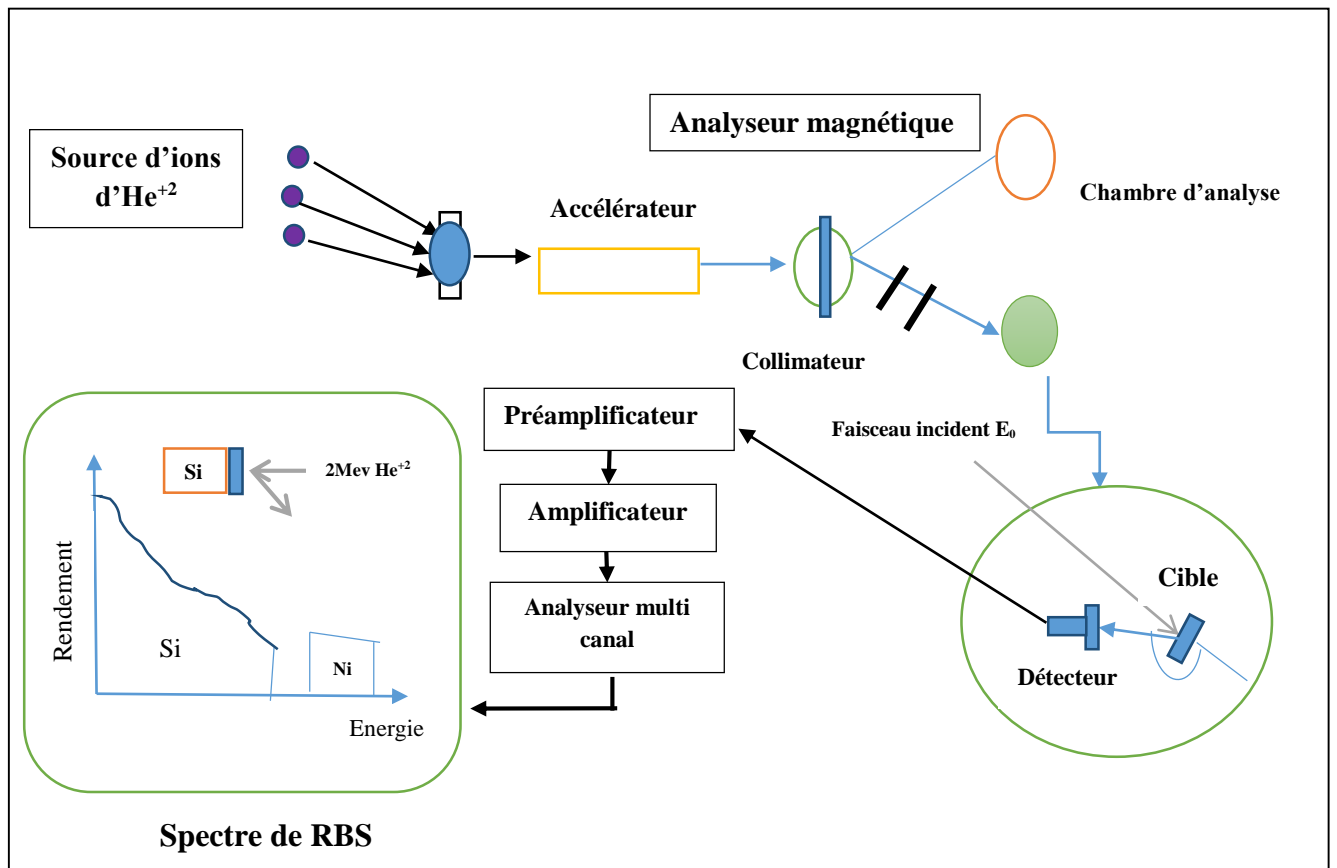


Figure III.7 : Dispositif expérimentale de RBS.

III.4.1.2 Les concepts de bases

A. Facteur cinématique

L'interaction entre l'ion projectile et l'atome de la cible peut être considérée comme une collision élastique entre deux particules [9]. Le facteur cinétique est le rapport entre l'énergie des atomes cibles diffusés et l'énergie des ions du projectile (éjecté). Lorsque les ions traversent le milieu cible, ils subissent une perte d'énergie inélastique (dE/dx) en raison de leur interaction avec le gaz d'électrons. Par conséquent, l'énergie des ions diffusés

contient des informations de base et détaillées sur la cible. L'énergie de la particule rétrodiffusée donnée (E_I) par : $E_I = K.E_0$ (III.3)

Où : E_0 : est l'énergie incidente du projectile ; le facteur cinématique « K » est donné par :

$$K = \left[\left(\frac{(M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta)^{1/2} + M_1 \cos \theta}{M_1 + M_2} \right) \right]^2 \quad (\text{III.4})$$

Où :

- ✓ θ : est l'angle de rétrodiffusion ;
- ✓ M_1 et M_2 : sont la masse du projectile et les atomes de cibles respectivement.

B. La section efficace différentielle

La section efficace différentielle c'est la probabilité de l'ion projectile dispersé élastiquement avec l'atome cible qui base sur le potentiel de la réaction de Coulomb [10]. Si E_0 est l'énergie du projectile juste avant la diffusion, et Z_1 et Z_2 sont les numéros atomiques du projectile et l'atome cible, respectivement, alors la section efficace de diffusion est donnée par :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E_0} \right)^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left[\left(1 - \left(\frac{M_1}{M_2} \right) \sin^2 \theta \right)^{1/2} + \cos \theta \right]^2}{\left(1 - \left(\frac{M_1}{M_2} \right) \sin^2 \theta \right)^{1/2}} \quad (\text{III.5})$$

La quantification de la concentration atomique de la cible peut alors être effectuée en utilisant le rendement de rétrodiffusion donné par :

$$Y = QNt \frac{d\sigma}{d\Omega} \Omega \quad (\text{III.6})$$

Où :

Q : est le nombre d'ions incidents sur l'échantillon ;

N : représente la densité apparente d'atomes dans l'échantillon ;

t : est l'épaisseur de l'échantillon.

L'énergie du projectile à la profondeur d est :

$$E_d = E_0 - \frac{d}{\sin \alpha} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{en} \quad (\text{III.7})$$

Où $(dE/dx)_{en}$: est la perte d'énergie de l'atome entrant dans l'échantillon.

Après la diffusion, l'énergie du projectile est $K.E_d$, où K est le facteur cinématique défini dans l'équation (III.4). Le projectile perd de l'énergie le long du trajet parcouru et atteint le détecteur avec une énergie :

$$E_{det} = kE_d - \frac{d}{\sin(\theta-\alpha)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{sor} \quad (\text{III.8})$$

$$E_{det} = kE_d - d \left[\frac{k}{\sin \alpha} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{en} + \frac{d}{\sin(\theta-\alpha)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{sor} \right] \quad (\text{III.9})$$

Où : (dE/dx) est la perte d'énergie des particules diffusées dans l'échantillon.

La différence d'énergie ΔE du spectre correspondant à l'épaisseur d du film sera :

$$\Delta E = E_1 - E_{det} \quad (\text{III.10})$$

Où : E_1 désigne l'énergie de la particule rétrodiffusée de la surface et atteinte le détecteur.

$$\Delta E = \Delta_d \left[\frac{k}{\sin \alpha} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{en} + \frac{d}{\sin(\theta-\alpha)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{sor} \right] \quad (\text{III.11})$$

En utilisant l'équation ci-dessus, le profil élémentaire en profondeur peut être effectué.

III.4.1.3. Simulation du spectre

Un spectre RBS simple peut être décrit qualitativement par la largeur et la hauteur des pics qui composent le spectre. Le spectre RBS contient les informations sur la masse atomique et la distribution des éléments cibles en fonction de la profondeur. Cependant, dans le cas de spectres complexes, des méthodes de calcul sont utilisées pour déterminer les spectres théoriques cohérents avec les spectres expérimentaux, c'est-à-dire les composantes correspondant à l'échantillon. Afin de déterminer la composition de la cible, nous avons utilisé le programme « RUMP » développé par Cornell University (New York) [9]. En effet, ce logiciel permet d'obtenir un spectre de rétrodiffusion théorique, superposé au spectre expérimental, en introduisant la composition de la multicouche déposée ainsi que l'épaisseur approximative de chaque couche. Ensuite on joue sur la composition et l'épaisseur de chaque couche afin d'ajuster le spectre théorique et reproduire le spectre expérimental. La composition et l'épaisseur des différentes couches sont enfin obtenues.



Figure III.8 : Installation de spectrométrie de rétrodiffusion Rutherford à l'IUAC, New Delhi .

III.4.2. La diffraction des rayons X

III.4.2.1. Principe de la technique

La diffraction des rayons X (DRX) est une technique d'analyse rapide principalement utilisée pour identifier la nature cristalline des substances, la taille des cristaux ou des grains ainsi que l'état des contraintes qui s'exercent sur la couche lors de dépôt [11] .

Cette technologie repose sur la loi de Bragg , qui peut être exprimée mathématiquement comme suite :

$$2d_{hkl} \sin \theta_{hkl} = n\lambda \quad (\text{III.12})$$

Avec :

- d_{hkl} : la distance inter-réticulaire séparant les plans définis par les indices de Miller (h , k , l).
- θ : représente l'angle d'incidence des rayons X sur la surface du matériau étudié.
- n : l'ordre de la diffraction.
- λ : longueur d'onde du faisceau des rayons X.

III.4.2.2. Appareillage

Le dispositif expérimental se compose (Figure III.10) :

- Le plan de l'échantillon tourne autour de l'axe du diffractomètre ;
- l'angle de diffraction est égal au double de l'angle de réflexion, parce que lorsque l'échantillon tourne d'un angle $\ll \theta \gg$, le détecteur se déplace d'un angle $\ll 2\theta \gg$.
- la source des rayons X se trouve sur le même cercle de rotation avec l'échantillon au centre.
- Le détecteur et l'échantillon tournent pas à pas et à chaque pas on compte pendant une durée constante.

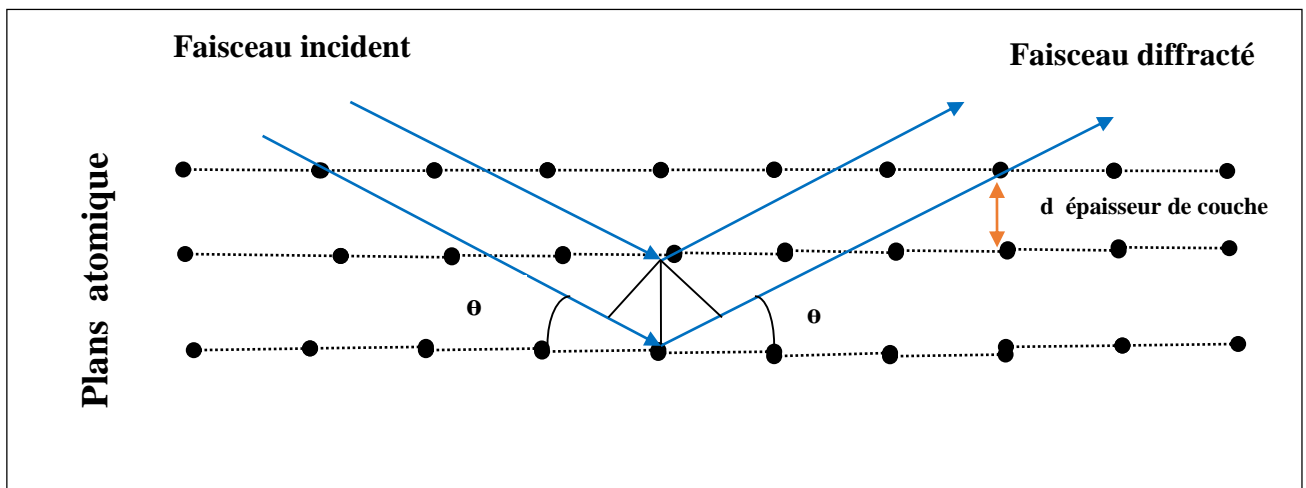


Figure III.9 : Représentation schématique de la réflexion de Bragg à partir d'un seul cristal.

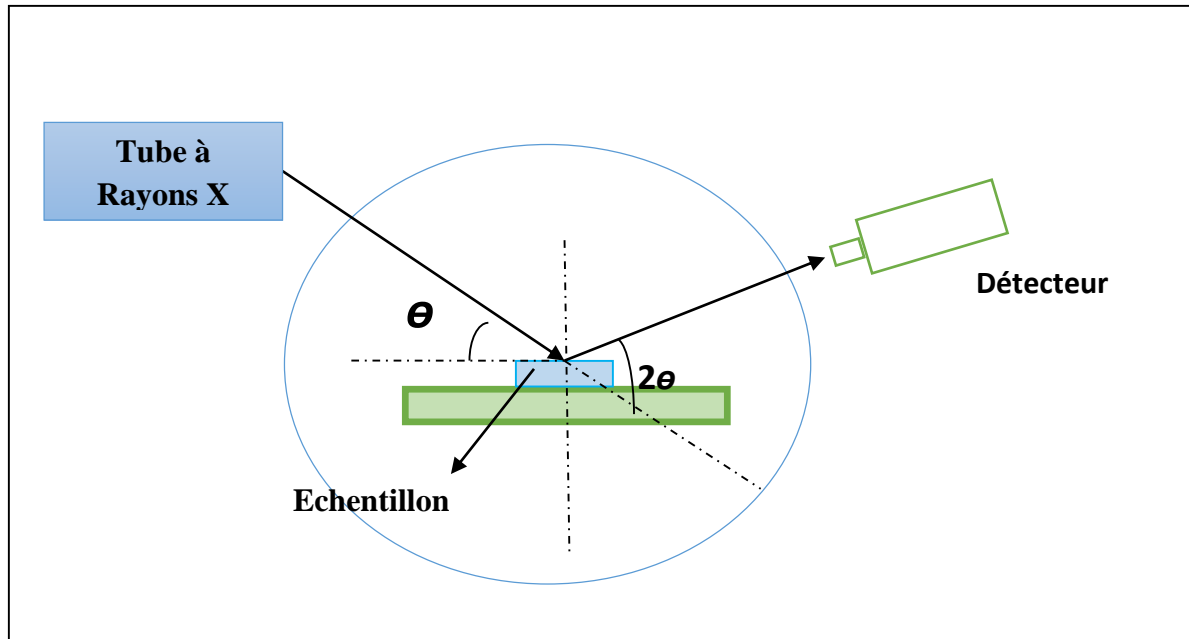


Figure III.10 : Représentation géométrique de la diffraction des rayons X configurée.

III.4.2.3. Exploitation d'un spectre

Les principaux paramètres extraits du diffractogramme sont :

1. L'aire des pics : la surface relative des pics de diffraction dans le diffractogramme (2θ , I) donne une information sur la quantité de la phase présente (la concentration massique de la phase), ainsi que le phénomène d'orientation préférentielle (mesure de texture).
2. Intensité relative des pics : reflète au taux de cristallite, c'est-à-dire si la forme des pics sont large correspondent à un matériau amorphe ; et pour les intensités de pics pointus qui sont proches du matériau cristallin.
3. La position du centre du pic : la position 2θ des pics mesurés nous donne les distances interarticulaires $d(hkl)$ du cristal et donc les paramètres de maille de notre produit, et le décalage des pics on va donner l'état de contraintes (déformation élastique) de l'échantillon.
4. La largeur à mi-hauteur des pics (FWHM) : largeur H est déterminé par deux paramètres de l'échantillon : la micro contrainte résiduelles et la taille de cristallite.

A. Calcul des paramètres de maille

A l'aide de l'expression de la distance inter réticulaire en fonction des indices de Miller (hkl) et la loi de Bragg, il est possible de calculer les paramètres de maille des réseaux cristallites :

$$2d_{hkl} \sin \theta_{hkl} = n\lambda = \frac{a_c}{\sqrt{h^2+k^2+l^2}} \quad (\text{III.13})$$

Où :

- a_c : paramètre de maille du système cubique.
- hkl : indices de Miller.

B. La taille des cristallites

L'étude par diffraction des rayons X permet de mesurer des paramètres de réseau et de la taille des cristallites dans les structures poly cristallines. La taille des cristallites des différents échantillons a d'abord été déterminée à partir des spectres de diffraction à l'aide de la relation de Scherrer basée sur l'élargissement des pics de diffraction dû à la taille des cristallites :

$$D_c = \frac{k\lambda}{\beta \cos \theta_{hkl}} \quad (\text{III.15})$$

Avec :

- D_c (nm) : est le diamètre moyen des cristallites,
- λ : est la longueur d'onde du faisceau de rayon X , ici égale 1.5406Å,
- β : la largeur à mi-hauteur exprimée en radian,
- θ : est l'angle de diffraction,
- k : est un facteur de forme qui vaut : $k=1$ si l'on la largeur intégrale (est la surface nette divisée par la hauteur nette) Scherer a en effet utilisé la largeur pour établir sa formule ; $k=0.89$ si l'on utilise la largeur à mi-hauteur ; c'est le rapport entre un profil de pic typique ; on souvent utilise la valeur arrondie 0.9.

III.4.3. La microscopie électronique à balayage d'émission de champ

La microscopie électronique à balayage d'émission de champ (FESEM) est un outil d'observation morphologique à haute résolution de surface d'échantillons solides [12]. L'avantage notable de FESEM est que les électrons sont émis par une source d'émetteur de champ Schottky dans lequel l'émission se produit au niveau ou à proximité de la barrière de fonction de travail.

III.4.3.1. Le principe

Le microscope à balayage utilise un faisceau d'électrons, ils sont produits par chauffage électrique du filament électronique par émission thermo-ionique. Les canons à électrons thermo-ioniques les plus utilisés sont le tungstène (W) et le lanthane hexaborure (LaB_6). De tels électrons ont des limitations en termes de résolution spatiale. Ce faisceau est accéléré par la haute tension (jusqu'à 30 kV) créée entre le filament et l'anode. Il est ensuite focalisé sur l'échantillon par une série de 3 lentilles électromagnétiques en une sonde de moins de 4 nm. Ce balayage se fait grâce à l'interaction des électrons avec la surface, plusieurs types d'électrons peuvent être utilisés : des électrons secondaires, des électrons rétrodiffusés, des rayons X, électrons de Auger.

Ces interactions pourront être collectées par un détecteur adéquat pour être ensuite converties en un signal électrique.

Par un système de bobines de déflexions semblable à celui d'une télévision le faisceau peut être guidé de façon à balayer la surface de l'échantillon selon une trame rectangulaire. Le moniteur permettant l'observation est lui-même balayé en synchronisation avec le faisceau d'électron de la colonne. Le signal recueilli par le détecteur est utilisé pour moduler la brillance du moniteur permettant l'observation. Il s'établit alors une correspondance entre la quantité de signal produite par un point de l'échantillon et la brillance de l'élément de l'image vidéo correspondant à ce point. Autrement dit si le faisceau d'électron est en haut à gauche de la zone balayée sur l'échantillon le faisceau d'électron de l'écran vidéo sera en haut et à gauche de l'image et si cette zone produit beaucoup d'électrons secondaires, la brillance de l'image en haut et à gauche sera importante. Le grandissement obtenu est le rapport de la surface de l'image vidéo sur la surface balayée sur l'échantillon. Le simulateur de MEB vous permettra de vous rendre compte de quelques réglages possibles sur le faisceau électronique pour obtenir une image de bonne qualité.

Le schéma de MEB typique est montré dans la figure (III.11). Un microscope électronique à balayage se compose de :

- Une colonne optique électronique montée sur la chambre échantillon,
- Une source d'ions,
- Une lentille à condensateur, une ouverture à condensateur, des lentilles d'objectif et une lentille d'objectif,
- La bobine de balayage
- Un circuit de pompage pour l'obtention d'un vide secondaire,
- Des détecteurs permettant de capter les différents signaux émis par l'échantillon,
- Un écran vidéo pour l'observation des images,
- Une électronique pour gérer l'ensemble des fonctions.

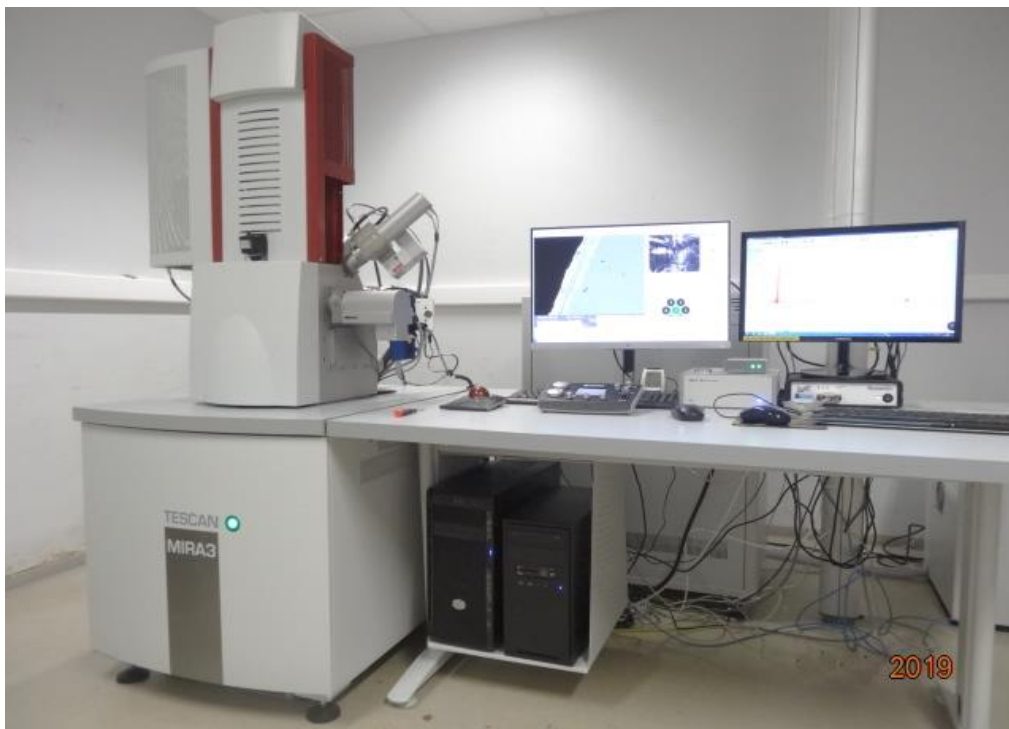


Figure III.11 : la photographie de l'appareil du microscope électronique à balayage.

Bibliographies

- [1] M.A. Nicol, S.S. Lau, VLSI Electronic Microstructure science, Ed G. Einspienich, B. Larraee, Academic Press New York, p330, 1983.
- [2] S.P. Murarka, Thermal oxidation of GaAs, Appl. Phys. Lett. 26 (1975) 180–181. <https://doi.org/10.1063/1.88107>.
- [3] K.N. Tu, J .W. Mayer, Thin film interdiffusion and reaction, Ed Wiley- Interscience, Références Bibliographiques 100 NewYork, chap10, p359, 1978.
- [4] M. BAL, Ph. D. Thesis NANOSTRUCTURING AND ION BEAM ENGINEERING OF THERMOELECTRIC MATERIALS: PbTe & CoSb₃, 2016.
- [5] H. E. Elsayed-Ali, T. Juhasz, G. O. Smith, and W. E. Bron, Phys. Rev. B 43, 4488, (1991).
- [6] J. Hohlfeld, S.S. Wellershoff, J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, E. Matthias, Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals, Chem. Phys. 251 (2000) 237–258. [https://doi.org/10.1016/S0301-0104\(99\)00330-4](https://doi.org/10.1016/S0301-0104(99)00330-4).
- [7] P. Kumar, G. Rodrigues, U. Rao, C. Safvan, D. Kanjilal, A. Roy, Pramana 59, 805, (2002).
- [8] E. Rutherford, , Phil. Mag. 21, 669, (1911).
- [9] J. O'Connor, B. Sexton, R.S. Smart, Surface Analysis Methods in Materials Science, Springer Science & Business Media, (2013).
- [10] H.J. Mathieu, AES Vickerman Gilmore, Surf. Anal. - Princ. Tech. 2nd Ed. (2009) 1–6.
- [11] E.L.M. Pineiro, B. L. R. Herrera, R. Escudero, and L. Bucio, Solid State Commun. 151, 425 (2011).
- [12] J.I. Goldstein, D.E. Newbury, P. Echlin, D.C. Joy, C.E. Lyman, E. Lifshin, L. Sawyer, J.R. Michael, Scanning Electron Microscopy and X-ray Microanalysis, (2003). <https://doi.org/10.1007/978-1-4615-0215-9>.

Chapitre IV

Résultats et Discussion

IV.1.Introduction

Dans cette partie nous allons présenter les résultats de la caractérisation des multicouches $[\text{Au/Ni}]_{x5}/\text{Si}$ afin d'étudier le phénomène de mélange de Au et Ni induit par irradiation aux ions lourds au niveau de l'interface, et l'amélioration de la miscibilité de ces deux éléments connus comme immiscibles à des température inférieures à 800 C° d'après le diagramme d'équilibre Au-Ni (figure IV.1). Les multicouches ont été obtenues par déposition alternée sous vide (à une pression de base inférieure à 5×10^{-7} mbar) de Au et Ni sur un substrat de Silicium, en utilisant la technique de déposition par faisceau d'électrons.

La figure (IV.1) présente le diagramme de phase Au – Ni [1], montrant la solubilité totale à l'état solide à une température supérieure à environ 800°C , et qu'ils ne sont pas miscibles à l'état solide à des températures inférieures. Dans ce cas, on observe généralement une courbe d'équilibre solide-liquide avec un point de fusion minimum.

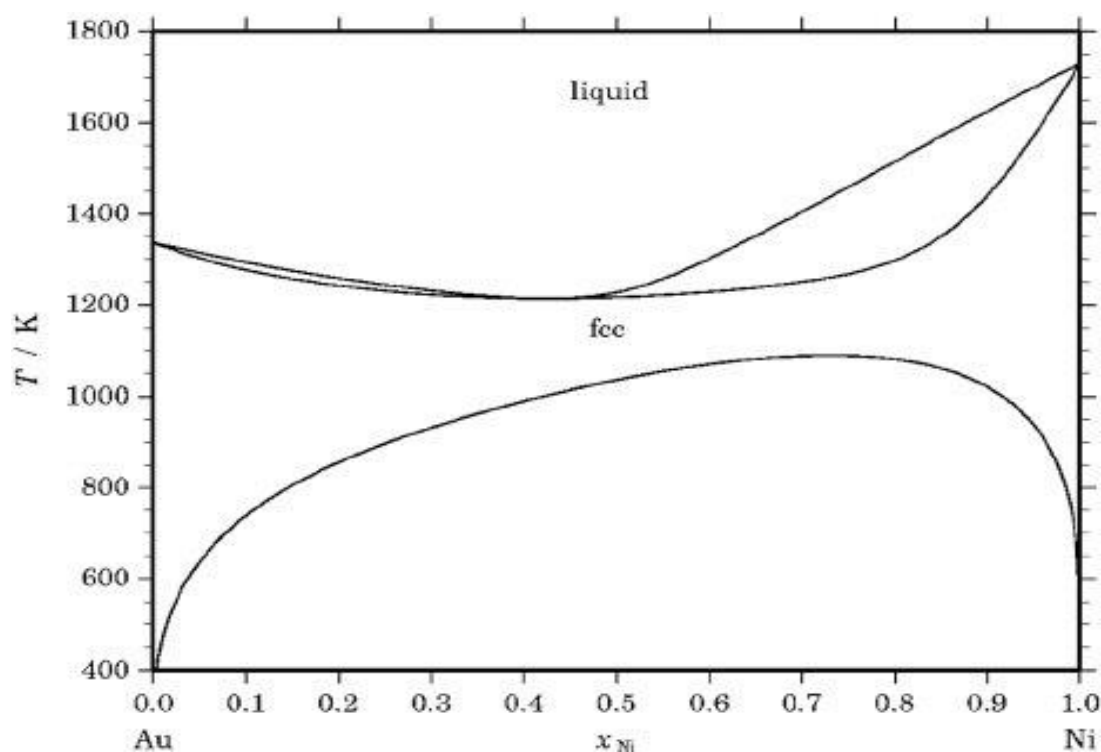


Figure IV.1 : Diagramme de phase Au – Ni. [1]

Ces multicouches ont été irradié par des ions lourds à deux régimes d'énergie différents dans le centre d'accélérateur interuniversitaire (IUAC) à New Delhi (Inde) [2,3] :

- 1- La première série des échantillons a été irradié avec une énergie relativement faible de 500 keV d'ions Xe dans un intervalle de fluence de [5×10^{14} - 1×10^{16} Xe/cm²]. Les valeurs de la perte d'énergie nucléaire (S_n) et d'énergie électronique (S_e) pour Au et Ni sont calculées par simulation à l'aide du logiciel « Stopping and range of Ions in matter » (SRIM) [4] sont indiqués dans le tableau (IV.1). Pour ce type d'irradiation, à basse énergie, la valeur de S_n est plus grand que S_e .

Tableau IV.1: les valeurs de perte d'énergie électronique et nucléaire dans les couches de Au et Ni irradiés aux ions Xe d'énergie 500 keV.

<i>Espèces et énergie du faisceau ionique</i>	<i>Cible</i>	<i>Perte d'Énergie électronique S_e (keV / nm)</i>	<i>perte Énergie nucléaire S_n (keV / nm)</i>	<i>S_n/S_e</i>
ions Xe d'énergie 500 keV	Au	0.845	5.71	6.76
	Ni	1.005	5.804	5.77

- 2- La deuxième série a été irradiée avec des ions de Au à énergie de 100 MeV à différentes fluences [5×10^{12} - 1×10^{14} Au /cm²]. Ce type d'irradiation avec ion lourds à haute énergie est connue sous le nom ' *Swift heavy ions*' (SHI).

Cette énergie est choisie de sorte que la perte d'énergie par excitations et ionisations électroniques est plus prépondérante par rapport aux collisions nucléaires. Les valeurs de la perte d'énergie nucléaire (S_n) et électronique (S_e) pour cette énergie sont simulés à l'aide du logiciel SRIM [4] sont indiqués dans le tableau (IV.2).

Tableau IV.2: Les pertes d'énergie électronique, nucléaire et leur rapport dans le Au et Ni irradiées par des ions Au d'énergie 100 MeV.

<i>Espèces et énergie du faisceau ionique</i>	<i>Cible</i>	<i>Perte d'Énergie électronique S_e (keV/nm)</i>	<i>perte d'Énergie nucléaire S_n (keV/nm)</i>	<i>S_e/S_n</i>
ions Au 100 MeV	Au	33.81	1.169	28.9
	Ni	32.45	0.835	39.09

Les techniques de caractérisation utilisées pour analyser les échantillons avant et après irradiation sont : la microscopie électronique à balayage de champ à émission (FESEM), la spectroscopie de rétrodiffusion de Rutherford (RBS) et la diffraction des rayons X (DRX). Nous avons utilisé le modèle de la pointe thermique (Thermal Spike Model) pour calculer les profils de températures atomiques proche de l'interface Au/Ni en fonction du temps et la distance radiale par rapport au trajet des ions. Nous avons également utilisé le code TRIM afin de simuler les différentes collisions entre les ions incidents et les atomes cibles en profondeur de la multicouche.

Les résultats expérimentaux obtenus seront analysés et discutés dans la partie ci-dessous, par rapport à la littérature et aussi dans le cadre des résultats de calcul obtenus dans modèle de la pointe thermique.

IV.2. Résultats et discussions

IV.2.1. Résultats de Microscopie électronique à balayage de champ à émission (FE-SEM)

Nous avons utilisé le MEB pour observer l'évolution de la topographie de surface après irradiation aux ions Xe d'énergie de 500 keV pour différentes valeurs de fluence. La figure (IV.2 (a, b, c, d)) illustre les images MEB de l'échantillon vierge (a) ainsi que les échantillons irradiés à différentes valeurs de fluence: (b) 5×10^{14} Xe/cm², (c) 5×10^{15} Xe/cm², (d) 10^{16} Xe/cm².

La figure (IV.2. (a)) montre que la surface de l'échantillon non irradié a une morphologie granuleuse avec une forme plus ou moins circulaire, répartie de manière aléatoire et un certain nombre des pores ou vides (noir). Cependant, les échantillons irradiés avec des ions Xe d'énergie 500 keV présentent une microstructure complètement différente avec une suppression progressive des joints de grains, ce qui conduit à une croissance des grains avec une augmentation de la fluence des ions. On observe également que lorsque la fluence ionique augmente, les grains deviennent beaucoup plus gros avec des frontières floues (probablement en raison de l'érosion par pulvérisation de la surface). Pour la valeur de fluence la plus élevée (10^{16} Xe/cm²) (Figure IV.2.(d)), la microstructure granulaire de la surface de l'échantillon est complètement perdue. Ceci peut être expliqué, à priori, par le martelage de la surface par ion ou/et par le phénomène d'érosion de surface qui peut être provoqué par la pulvérisation des atomes de surface.

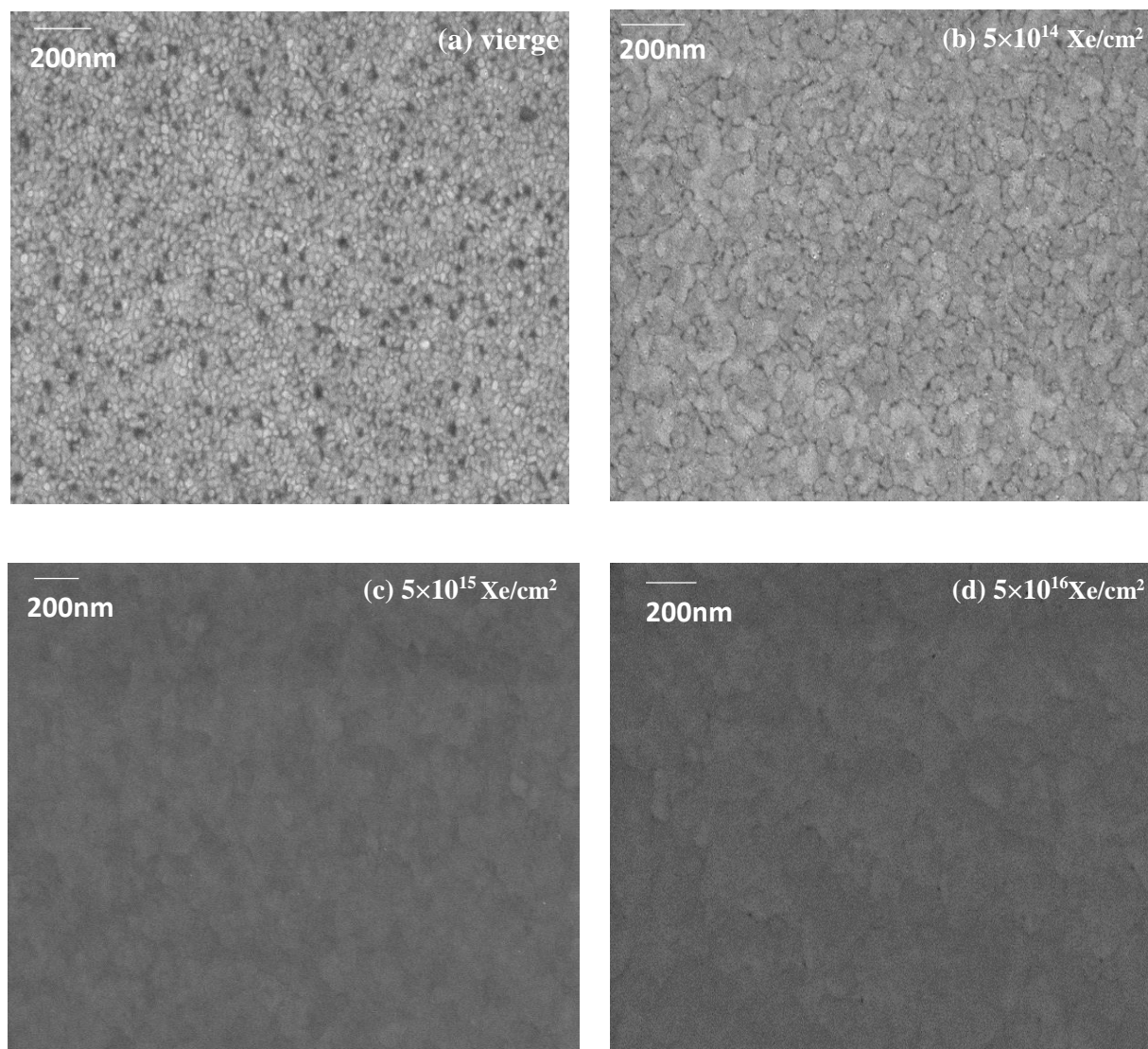


Figure IV.2 : Des images au microscope électronique à balayage (FEMEB) de l'échantillon non-irradié (a) et des échantillons irradiés avec des ions Xe de 500 keV ((b) 5×10^{14} Xe/cm², (c) 5×10^{15} Xe/cm² et (d) 10^{16} Xe/cm²).

L'évolution de la taille des grains en fonction de la fluence des ions est représentés sur la figure (IV.3); on note que la taille des grains de l'échantillon non irradié est égale à (45.10 ± 4.46) nm, cette valeur augmente avec la fluence et atteint la valeur (191.50 ± 6.00) nm pour la fluence la plus élevée 1×10^{16} ions/cm² (100 ions/nm²). En effet, le phénomène de croissance des grains dû à l'irradiation ionique a été observé et son évolution en fonction de la fluence ionique a été étudiée par de nombreux chercheurs au cours des dernières décennies [5–14]. Ils

ont trouvé que la taille des grains augmente avec le temps de l'irradiation (t) de la même manière que l'évolution de la taille des grains par recuit thermique en fonction du temps de recuit, selon la même relation [8,12–14] :

$$D^n - D_0^n = K\Phi t \quad (\text{IV.1})$$

Où :

- D_0 : c'est la taille des grains initiale,
- Φ : c'est le flux d'irradiation,
- n : est l'exposant variant de 1.9 à 4.3.
- K : paramètre libre 2.98 et $11.20 \times 10^3 \text{ nm}^{n+2}$

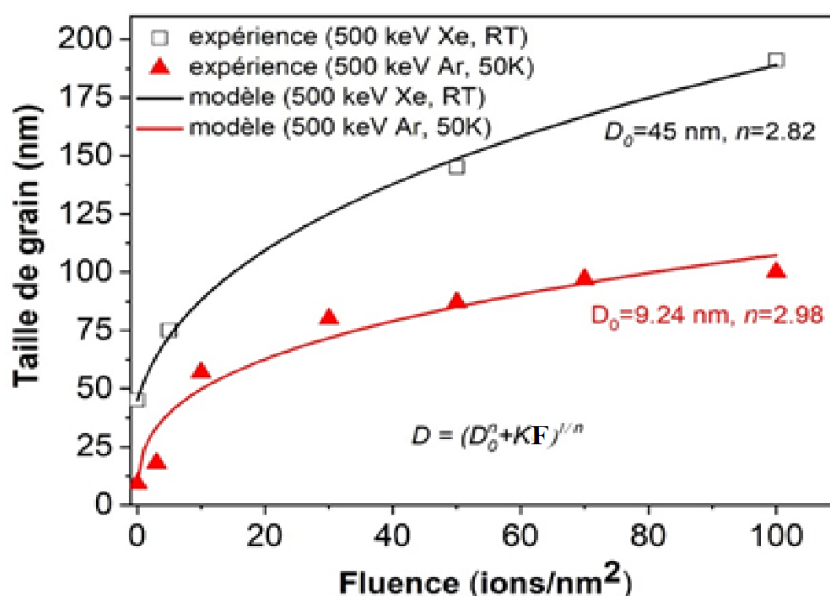


Figure IV.3 : L'évolution de la taille des grains en fonction de la fluence des ions.

Taille de grain expérimentale de Au irradié avec des ions Xe de 500 keV à température ambiante (carrés vides, présent travail) et Au irradié avec des ions Ar de 500 keV (triangles pleins, réf. [10]). La ligne pleine correspond à l'ajustement en utilisant la formule de croissance des grains. Les paramètres d'ajustement n et K sont 2.98 et $11.20 \times 10^3 \text{ nm}^{n+2}$ pour une irradiation aux ions Ar de 500 keV, et 2.82 et $26.21 \times 10^3 \text{ nm}^{n+2}$, pour une irradiation aux ions Xe de 500 keV. Les valeurs de fluence sont données en nm^{-2} .

Une telle croissance de grain a été observée dans des films minces Au [7,10] et Ni [5,6] sous irradiation ionique dans la même gamme que dans le présent travail. Kaoumi et al. [15] ont rapporté une croissance des grains dans des couches minces de Au irradiées avec des ions

Ar de 500 keV à différentes températures, 50, 298 et 473 K. La taille des grains des couches minces d'Ar initialement d'environ 10 nm, a augmenté après irradiation en augmentant la fluence des ions et approchant finalement une valeur de saturation de ~100 nm à 50 K, ~130 nm à 298 K et ~200 nm à 473 K à la valeur de fluence la plus élevée de

10^{16} Ar/cm².

Bien que l'irradiation avec des ions Xe de 500 keV a été effectué à température ambiante (298 K), la valeur de saturation de la taille des grains (191.50 ± 6.00) nm est bien supérieure à celle obtenue avec des ions Ar de 500 kV à la même température, 130 nm. Ceci est apparemment dû à l'impact de la masse du projectile. Ce résultat est cohérent avec les conclusions de Kaoumi et al.[15] qui ont rapporté le taux d'évolution de la taille des grains avec la fluence et l'augmentation de la valeur de saturation avec la température d'irradiation et la masse du projectile.

La figure (IV.4) représente des images MEB de l'échantillon vierge (a) et des échantillons irradiés avec des ions lourds Au d'une énergie de 100 MeV. Elle montre que les échantillons irradiés présentent une microstructure granulaire similaire à celle de l'échantillon non- irradié, même à haute fluence (figure IV.4(d)). Bien que cette énergie est 200 fois supérieure à celle utilisée dans le cas précédent (500 keV), nous n'avons observé aucune modification superficielle de la morphologie granulaire et de la taille des grains. Cependant, les trous noirs ou les vides qui existaient avant l'irradiation ont complètement disparu après l'irradiation.

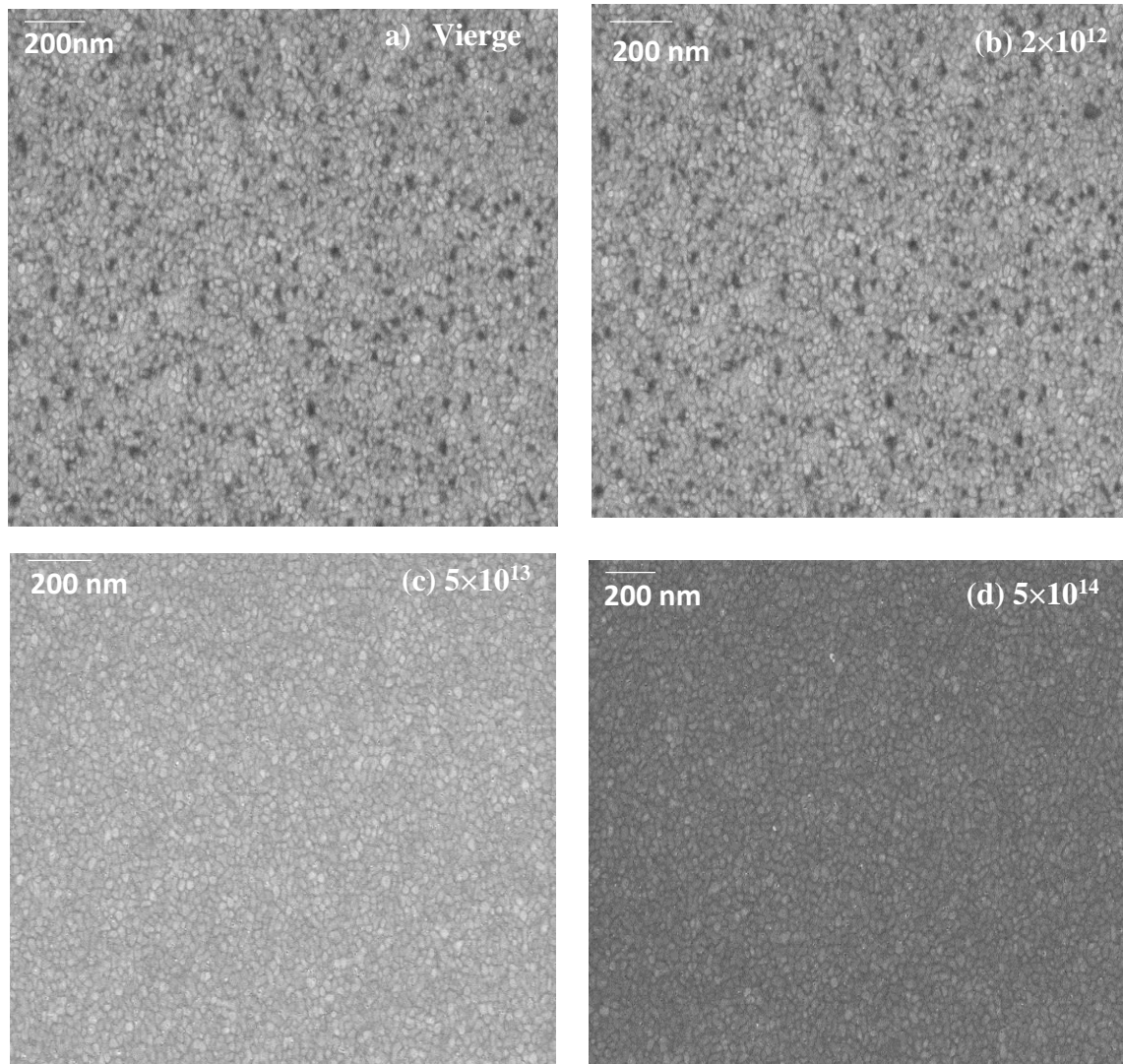


Figure IV.4: Des images au microscope électronique à balayage (FESEM) de l'échantillon non-irradié (**a**) et des échantillons irradiés avec des ions Au 100 MeV, ((**b**) 5×10^{12} Au/cm², (**c**) 5×10^{13} Au/cm²) et (**d**) 5×10^{14} Au/cm².

IV.2.2. Les résultats de diffraction des rayons X (DRX)

La DRX est utilisée afin de déterminer l'évolution de la structure cristalline de la multicouche, et éventuellement la possibilité de formation de nouvelles phases au niveau de l'interface Au/Ni induites par l'irradiation aux ions.

La figure (IV. 6) montre les spectres DRX des multicouches obtenus avant et après irradiation avec **500 keV Xe** à différentes fluences. Ils ont été enregistrés pour un angle de diffraction 2θ dans l'intervalle $[30^\circ - 80^\circ]$. Pour plus de clarté, nous n'avons illustré que l'intervalle 2θ entre 36° et 46° , car les échantillons ne présentaient pas d'autres pics de diffraction en dehors de cet intervalle.

Les différents pics mis en évidence doivent être comparés aux tableaux internationaux comprennent des fiches JCPDS-ICDD (Joint Committee of Powder Diffraction Standard International Centre for Diffraction Data). On peut alors, par comparaison avec ses fiches, établir les plans diffractés et l'orientation des couches réalisées et identifier les différentes phases.

A. Echantillon non irradiée

La figure (IV.5) présente l'échantillon vierge, qui montre deux pics assez symétriques, situés respectivement à $2\theta = 38.10^\circ$ et 44.40° . Le premier pic situé à $2\theta = 38.10^\circ$ correspond à la diffraction des plans cristallins (111) d' Au de structure Cubique à Face Centré (FCC). Le deuxième pic est situé près de $2\theta = 44.44^\circ$, qui peut être considéré comme la superposition de deux pics de diffractions Au (200) et Ni (111). Ils apparaissent généralement à peu près au même angle de diffraction (Au (200) à $2\theta = 44.37^\circ$ et Ni (111) à $2\theta = 44.51^\circ$). Selon les cartes standard des métaux de l'or pur et du nickel purs (JCPDS: 01-071 -3755) et (JCPDS: 00-004-0850), respectivement). Voir annexe

Pour simplifier, le deuxième pic appartient au Ni (111), Nous expliquons l'absence d'autres pics correspondant à Au et Ni, par le fait que la multicouche [Au / Ni] est fortement orientée avec une direction de croissance [111].

Nous avons calculé la taille moyenne des cristallites de Au, et nous avons trouvé que la taille était égale à 15 nm. Ce calcul a été effectué en utilisant l'équation de Scherrer (IV.2), où la valeur FWHM a été estimée en utilisant un ajustement via la fonction Voigt au pic Au (111).

Dans le cas du Ni, la taille des cristallites ne peut pas être estimée en raison du chevauchement avec le pic de Au (200).

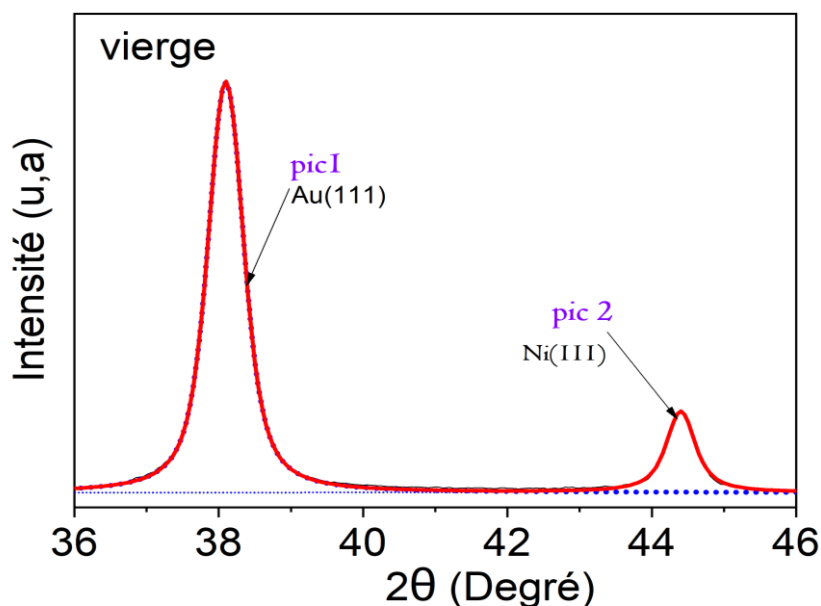


Figure IV.5: le spectre de diffraction des rayons X des films obtenus avant l'irradiation.

B. Echantillons irradiés avec des ions de Xe à 500 keV

En comparant les spectres de DRX des échantillons irradiés sur la figure (IV.6) avec le spectre DRX de l'échantillon vierge figure(IV.5), nous constatons que le bombardement par des ions Xe à causer des changements considérables dans la position et l'intensité des pics ; indiquant ainsi de grandes modifications structurales et de composition dans notre système multicouche [Au/Ni] en l'augmentant la fluence.

- **À la fluence de $5 \times 10^{14} \text{ Xe/cm}^2$** , l'intensité des deux pics de Au (111) et Ni (111) diminue d'une façon remarquable et ils se déplacent vers le côté d'angles plus grands (droite) pour Au (111) et dans la direction opposée pour le pic de Ni (111).
- En augmentant **la fluence à $5 \times 10^{15} \text{ Xe/cm}^2$** , l'intensité du pic Au (111) continue à diminuer et sa position subit un décalage plus prononcé vers la droite. Par contre, nous remarquons que l'intensité du pic de Ni (111) augmente légèrement et se décale vers la droite.
- **À la plus haute fluence, à 10^{16} Xe/cm^2** , et en plus des pics précédents caractéristiques des éléments purs, un nouveau pic émerge à $2\theta = 41,6^\circ$. En comparant avec les autres spectres, il y a une augmentation significative de l'intensité des pics, qui est probablement due à la

réduction du désordre suite à l'irradiation. En plus, les spectres des échantillons irradiés présentent une caractéristique commune qui est l'élargissement asymétrique du pic Au(111). En effet, on observe la présence d'un épaulement à droite du pic Au (111). Cette caractéristique n'apparaît pas dans le spectre de l'échantillon non irradié. En conséquence, on peut conclure que cet élargissement asymétrique est causé par l'irradiation.

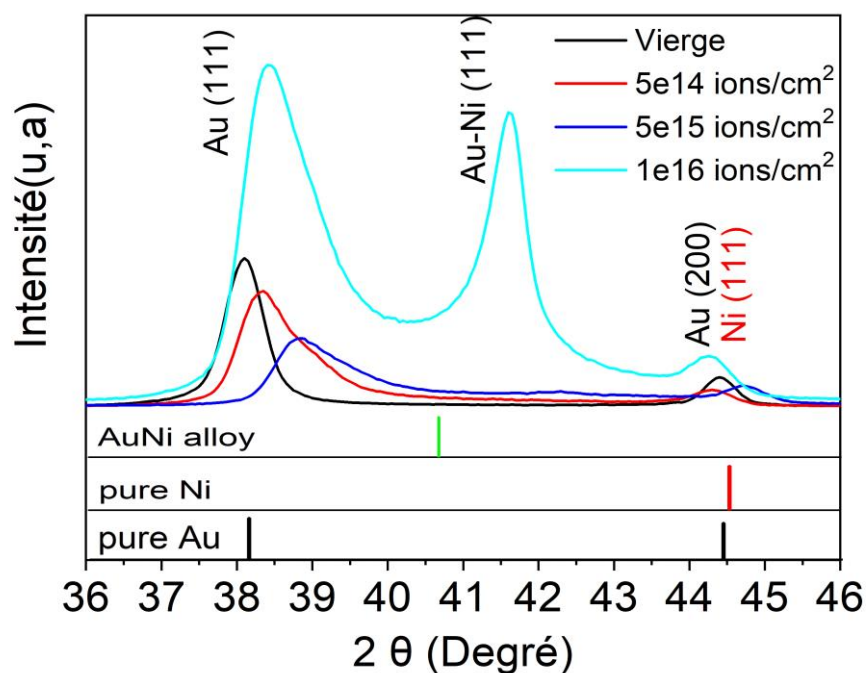


Figure IV. 6 : Les spectres DRX des multicouches obtenus avant et après irradiation avec 500 keV Xe à différentes fluences.

C. Echantillons irradiées avec des ions d' Au à 100 MeV

Pour les échantillons irradiés à haute énergie 100 MeV avec des ions Au. La figure (IV.7) présente les spectres de DRX avant et après l'irradiation à différentes fluences.

Nous observons que tous les spectres de DRX avec différents fluences avaient la même forme presque. En fait, la position et la largeur des pics (FWHM) sont restées à peu près inchangées.

Nous avons remarqué aussi que l'intensité des pics augmente avec la fluence jusqu'à 10^{13} Au/cm² puis diminue pour les fluences au-delà de cette dernière valeur. Ceci peut être expliqué par les excitations et ionisations électroniques induites lors du ralentissement des ions Au par les atomes cibles.

Par ailleurs, nous n'avons pas observé la caractéristique d'asymétrie du pic Au (111) et l'émergence de pic intermédiaire lors de l'augmentation de la fluence, ce qui indique que la formation de solution solide ou d'alliage métallique Au-Ni est absente. Ceci peut être compris dans le cadre du modèle de pointe thermique.

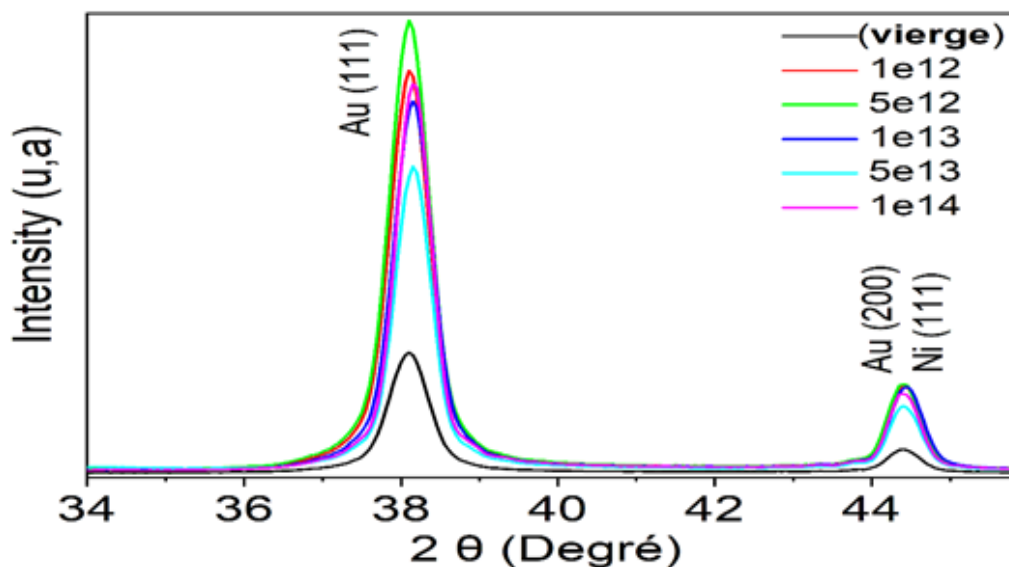


Figure IV.7 : Les spectres de diffraction des rayons X des films obtenus avant et après l'irradiation avec des ions d' Au de 100 MeV à différentes fluences.

IV.2.3. Discussion des résultats de DRX

D'après la littérature, l'élargissement asymétrique a déjà été observé dans différentes situations, et son origine a été discutée en détail. En effet, le pic asymétrique souvent suggère la superposition de deux pics séparés. Le nouveau pic pouvant être attribué à la formation de nouvelles phases. Wiskel et al. [16] ont analysé les précipités dans un acier micro-allié par DRX quantitative (QDRX) et ont attribué l'élargissement asymétrique observé à la formation de précipités de taille nanométrique de 4,7 nm. D'après les travaux de [17], [18] sur le chauffage et déformation plastique des alliages amorphes. Ils ont trouvé que l'apparence d'un pic de DRX de forme asymétrique, révélant la séparation de la phase amorphe en régions avec différents types d'ordre à courte distance et de compositions chimiques. D'après les deux situations précédentes [16–18] il a été conclu que la présence d'asymétrie dans le pic de DRX est une

indication claire de la séparation en régions avec des compositions chimiques différentes conduisant à la formation de petits nano-cristaux de nouvelles phases.

Il est intéressant de noter que l'élargissement asymétrique des pics de DRX a également été observé dans les matériaux irradiés. En fait, Ishikawa et al. [19] ont obtenu un élargissement asymétrique (mais vers le côté des petits angles) ; cette pic de DRX concerne l'oxyde de cérium (CeO_2) irradié par des ions lourds rapides. Le pic asymétrique a été séparé en deux pics, où le premier pic a été attribué à la structure de la matrice et le second aux régions localement modifiées, c'est-à-dire à la génération d'une nouvelle phase amorphe.

En outre, l'asymétrie des pics de DRX a également été signalée récemment dans le Zircaloy -2 irradié par des protons et des neutrons, ainsi qu'une discussion détaillée des sources d'asymétrie possibles [20][21]. Ils ont souligné le fait qu'un ajustement multi-pics est nécessaire, plutôt qu'un pic à ajustement unique, pour tenir compte de la présence de l'épaule sur le pic d'origine, où ce dernier se rapporte à une nouvelle phase de croissance.

La figure(IV.6) montre la forme symétrique des pics de diffraction de l'échantillon non irradié. Il est à noter que les réflexions de Bragg (pic 1) des plans Au (111) se produisent à un angle de diffraction ($2\theta = 38.10^\circ$) identique à l'au pur (JCPDS : 01-071-3755), ce qui exclut toute formation de solution solide Au-Ni à l'interface avant irradiation.

Selon la discussion ci-dessus, nous avons effectué un ajustement multi-pic pour les diffractogrammes de DRX comme indiqué dans les différentes et le tableau (IV.3) présente les paramètres de fit multi-pics des spectres DRX pour des échantillons vierges et irradiés à différentes fluences ioniques. Figures (IV.8.9.10).

Le figure (IV.8), nous avons constaté qu'à faible fluence (5×10^{14} Xe / cm^2), le spectre de DRX montrait qu'il y a deux autres pics (pic 2 et pic3) en plus du pic 1 et du pic 4. Le pic 2 correspond à l'épaule, responsable de l'asymétrie mentionnée ci-dessus. Le pic 3 est situé à l'angle de diffraction intermédiaire, Le pic 3, apparait très large et de très faible intensité avec $\text{FWHM} = 4035$.

Les deux pics d'extrémité (pic 1 et pic 4), sont deux pics correspondant respectivement aux Au et Ni. On peut dire que cela indique qu'une solution solide terminale se forme (riche en Au et riche en Ni) selon la loi de Vegard [22].

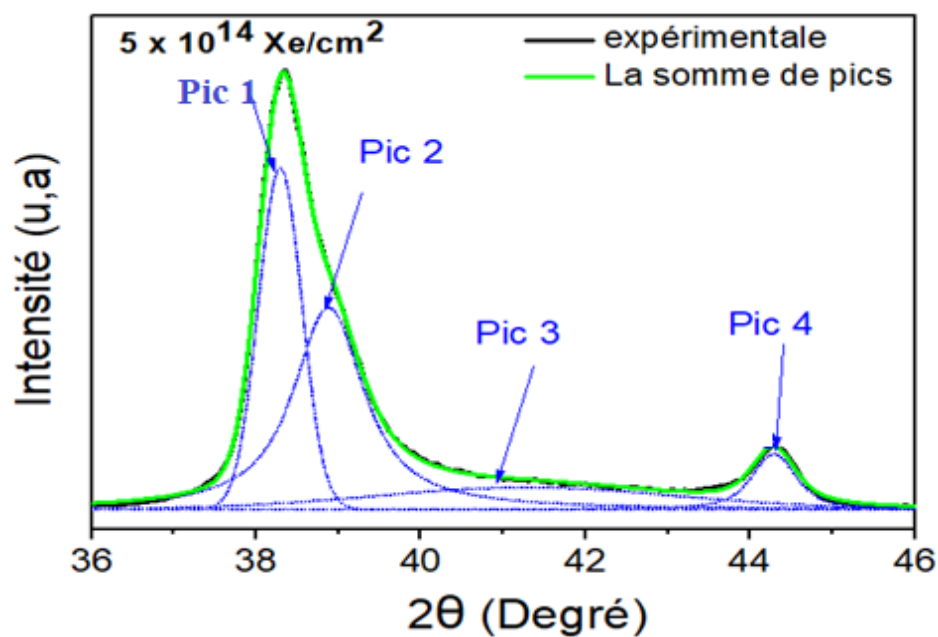


Figure IV.8: Séparation des pics de DRX de multicouches irradiées à $5 \times 10^{14} \text{ Xe/cm}^2$.

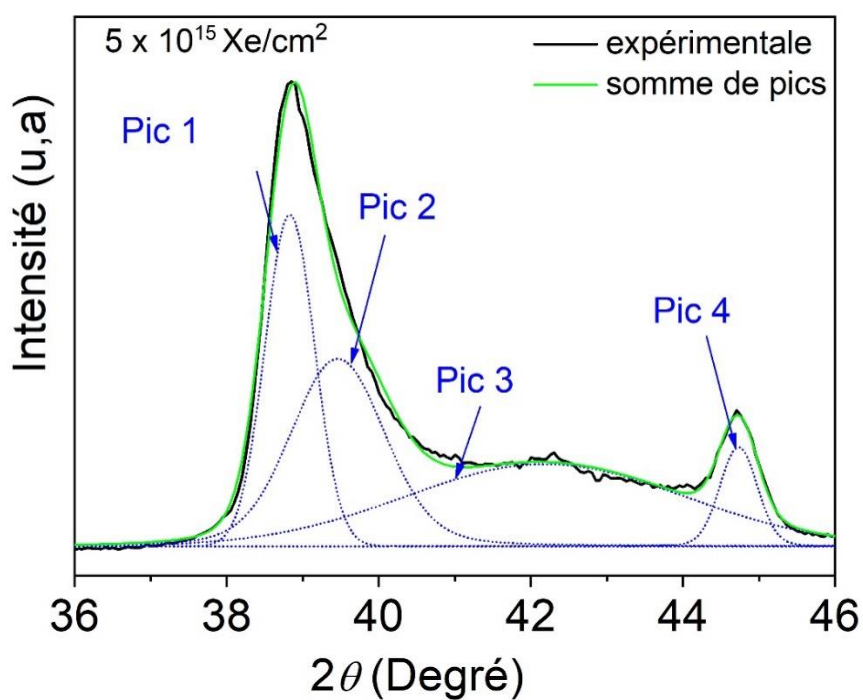


Figure IV.9 : Séparation des pics de DRX de multicouches irradiées à $5 \times 10^{15} \text{ Xe/cm}^2$.

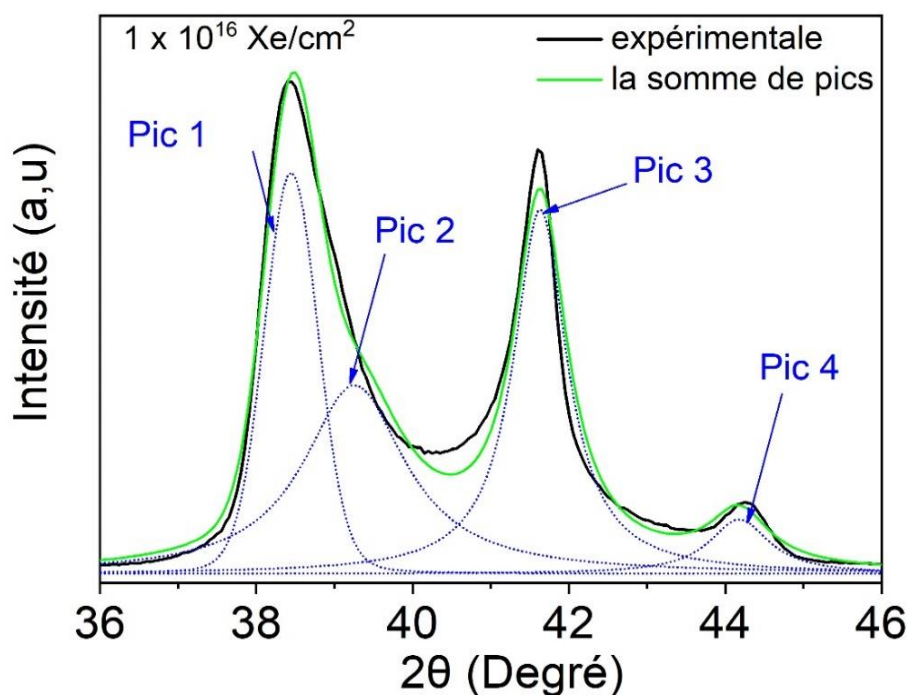


Figure IV.10 : Séparation des pics de DRX de multicouches irradiées à 1×10^{16} Xe / cm^2 .

Avec l'augmentation de la fluence (figure IV.9 ; 10), on a noté que la largeur à demi hauteur du pic diminue et devient beaucoup plus pointue à la plus haute fluence (FWHM = $4,10^\circ$ à 5×10^{15} Xe/ cm^2 et $0,83^\circ$ à 1×10^{16} Xe/ cm^2), tandis que son intensité augmente significativement.

Il est important de noter ici que le pic 3 se produit à un angle de diffraction intermédiaire entre le pic 1 et le pic 4, $2\theta = 41,6^\circ$, légèrement décalé vers la droite par rapport à la position du pic principal d'alliage métallique Au-Ni (111) attendu à $40,7^\circ$ d'après la carte JCPDS n° 04-005-1699.

En effet, Herz et al. [23,24] ont observé l'alliage Au-Ni à une position de pic ($2\theta = 41,7^\circ$) presque similaire à celle du pic 3 dans le présent travail, dans une bicouche Au/Ni recuit à des températures allant jusqu'à 950°C et avec épaisseur comparable à celles du présent travail. De plus, Sengar et al. [25] ont observé un décalage plus important vers des valeurs élevées de 2θ dans le pic le plus intense (111) de l'alliage Ag-Pd, à la suite de la variation de la température de frittage, qui a été attribuée à la variation de composition et à l'effet de taille. De même, le pic 3 peut être attribué à la formation d'alliage métallique Au-Ni et le décalage du pic est

probablement dû à l'effet de taille et à la distribution de la composition dans toute la multicouche Au/Ni à cause du mélange induit par irradiation ionique. Ainsi, l'augmentation d'intensité du pic 3 avec la fluence peut être facilement comprise par l'amélioration de la solubilité due au mélange et à l'augmentation de la température du réseau provoquée par l'irradiation.

L'inhomogénéité de la distribution de la composition entre deux interfaces, causée par le mélange par irradiation aux ions, a entraîné une formation multi-phases avec des compositions différentes : Le pic 1 correspond à une solution solide riche en Au et le pic 4 correspond à une solution solide riche en Ni, tandis que le pic 3 concerne la phase intermédiaire ou l'alliage métallique Au-Ni. Selon la littérature [26], le pic 2 représente une caractéristique qui supporte une telle inhomogénéité de distribution de composition. Sachant que Au et Ni ont un grand pouvoir de diffusion, le pic 2 est probablement originaire de la diffusion des rayons X à travers les zones fortement déformée autour des cristallites de compositions différentes [21].

En conclusion, la diffraction des rayons X (DRX) fournit un moyen efficace pour suivre la formation de nouvelles phases au niveau de l'interface Au/Ni induites par irradiation aux ions Xe d'énergie 500 keV.

Tableau IV.3 : les paramètres de fit multi-pics des spectres DRX pour des échantillons vierges et irradiés à différentes fluences ioniques.

Fluence (Xe/cm ²)	Paramètres de fit	Pic1 Au(111)	Pic2	Pic3 (Au-Ni)	Pic4 Ni(111)
Non-irradié	Position de pic (2θ)	38.097	/	/	44.40
	la largeur de pic FWHM	0.59	/	/	0.48
	Surface	27355	/	/	47.58
5 × 10¹⁴ Xe/cm²	Position de pic (2θ)	38.29	38.71	41.28	44.85
	la largeur de pic FWHM	0.62	1.015	4.35	0.63
	Surface sous de pic	13620	18970	6348	2930
5 × 10¹⁵ Xe/cm²	Position de pic (2θ)	38.82	39.4	42.12	44.69
	la largeur de pic FWHM	0.73	1.42	4.10	0.59
	Surface	8.357	11054	11500	2733
1 × 10¹⁶ Xe/cm²	Position de pic (2θ)	38.44	39.26	41.63	44.17
	la largeur de pic FWHM	0.81	1.58	0.83	0.93
	Surface	57697	74286	75098	12588

IV.2.4. Spectres de spectroscopie rétrodiffusion de Rutherford (RBS)

La miscibilité des éléments Au et Ni et la formation probable de nouvelles phases induites par irradiation aux ions de Xe à basse énergie (500 keV) a été suggéré par les résultats de DRX. Afin de mettre en évidence l'inter diffusion atomique au niveau des interfaces Au/Ni, nous avons utilisé la spectroscopie de Rétrodiffusion de Rutherford (RBS). Les différentes figures (IV.11, 12, 13) montrent les spectres RBS de la multicouche [Au/Ni]_{x5}/Si avant et après irradiation, sous différentes fluences. Les échantillons irradiés ont été analysés à température ambiante dans les mêmes conditions de laboratoire pour rendre la comparaison aussi précise que possible.

A. Echantillon vierge

La figure (IV.11) présente le spectre RBS expérimental de l'échantillon vierge [Au/Ni]_{x5}/Si, ainsi que celui simulée par le logiciel RUMP [27]. Nous avons fait cette simulation, en supposant que l'échantillon se compose de dix couches alternées de Au et de Ni, avec des interfaces pointues, l'épaisseur de chaque couche est d'environ 20 nanomètres sur le substrat de (Si). Le spectre simulé a révélé la composition multicouche suivante [Au (~20nm)/Ni(~20 nm)]x5/Si (substrat).

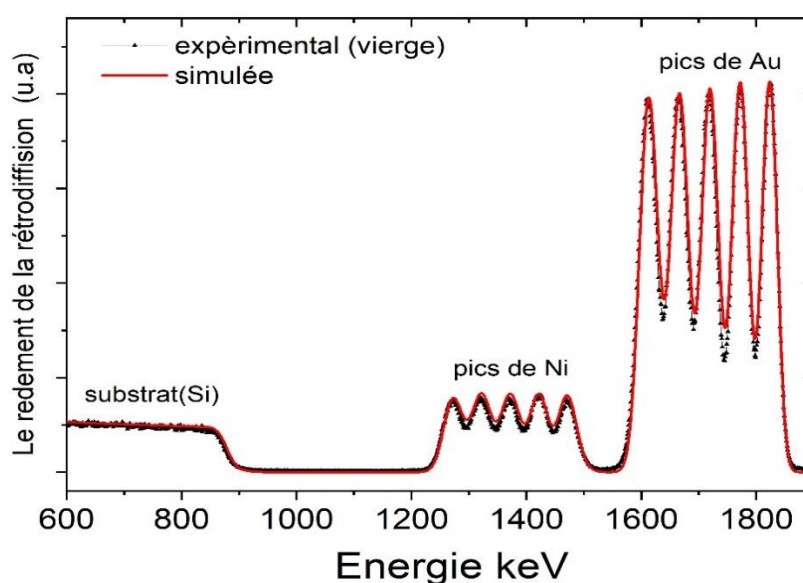


Figure IV.11 : Le spectre énergétique RBS de l'échantillon [Au/Ni]_{x5} /Si non irradié .

D'après le spectre de RBS de l'échantillon vierge, nous avons remarqué que le spectre présente un modèle multi-pics, comprenant cinq pics dans deux zones différentes : **La première zone**, pour les énergies élevées (au-dessus du canal 1500), est due à la rétrodiffusion des ions de He à partir des atomes de Au. **La deuxième zone** est également composée de cinq pics de plus faible intensité situés à basse énergie (canaux 1200-1500), correspondant à la rétrodiffusion par les atomes de Ni. On a noté que l'intensité des pics de Au était plus élevée que celle de Ni. La disparité dans les pics peut être expliquée par le fait que la résolution RBS est plus élevée avec des éléments à Z élevé.

Ce résultat est en bon accord avec les diffractogrammes de DRX de l'échantillon vierge, qui présentait uniquement des pics symétriques à des positions identiques aux éléments purs. De plus, aucune trace d'impuretés n'a pu être observée dans le spectre RBS de l'échantillon vierge, ce qui indique que le dépôt a été effectué dans une atmosphère propre et dans des conditions de travail typiques.

B. Echantillons irradiés

A la fluence 5×10^{14} Xe/cm²

La figure (IV.12) présente le spectre RBS relatif à l'échantillon [Au/Ni]_{x5}/Si irradiés à une fluence ionique de 5×10^{14} Xe/cm², ainsi que celui simulé par RUMP (La ligne continue sur la figure 1). Nous pouvons facilement remarquer une très petite baisse des hauteurs du signal correspondant à Au et Ni. Cette réduction peut s'expliquer par le mélange partiel de Au et Ni à l'interface à cette valeur de fluence.

A la fluence 1×10^{16} Xe/cm²

La figure (IV.13) illustre le spectre de l'échantillon irradié à la fluence de 1×10^{16} Xe/cm². Nous avons noté que le nombre de pics de Ni et d'Au dans les deux zones est réduit à cette fluence. Nous avons également remarqué que les trois signaux individuels à droite d'Au et de Ni fusionnent progressivement avec les signaux voisins et forment un seul signal cumulatif.

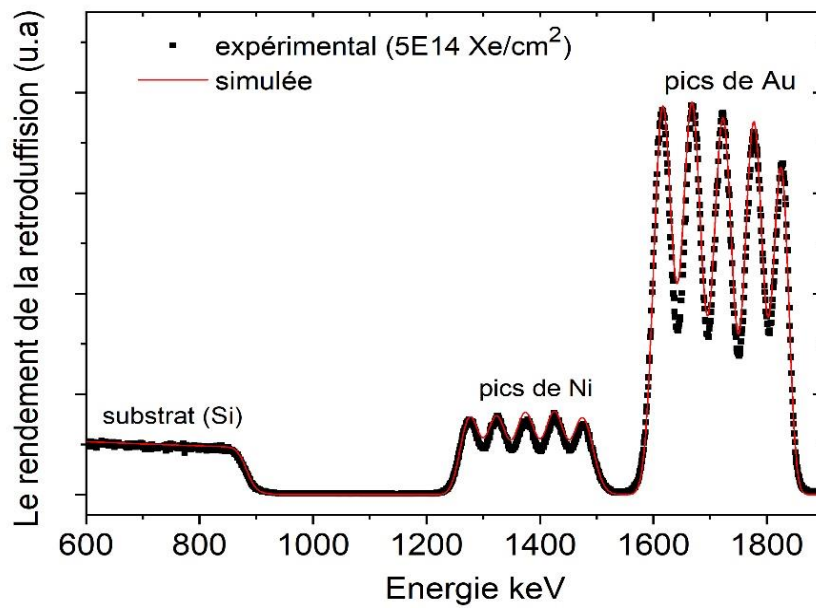


Figure IV.12 : Le spectre énergétique RBS d'un $[\text{Au/Ni}]_{x5}/\text{Si}$ irradiés à une fluence de $5 \times 10^{14} \text{Xe/cm}^2$.

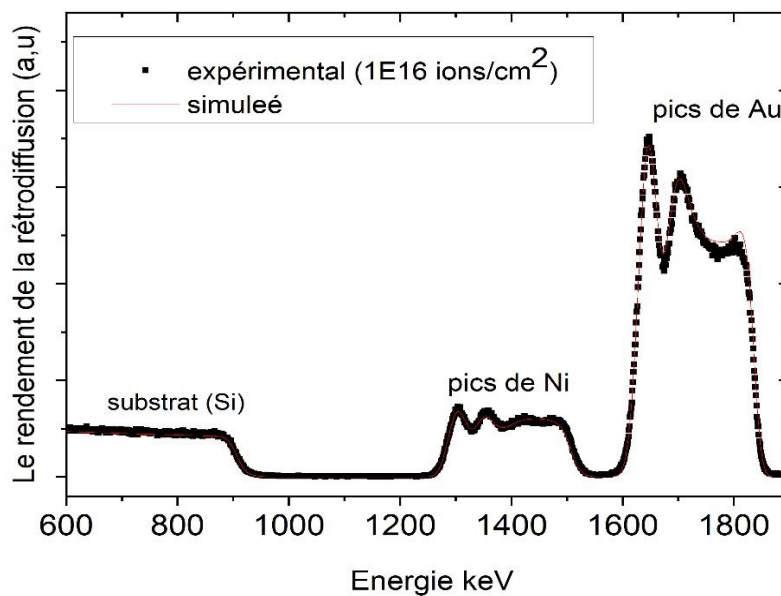


Figure IV.13 : Spectre énergétique RBS d'un $[\text{Au/Ni}]_{x5}/\text{Si}$ irradiés à une fluence ionique de $1 \times 10^{16} \text{Xe/cm}^2$.

A partir du spectre superposé le figure (IV.14), nous remarquons que le spectre RBS de l'échantillon irradié avec 10^{16} Xe/cm² se déplace vers la droite, ce qui indique une pulvérisation significative conduisant à une érosion de surface est clairement mis en évidence. Une observation similaire de l'érosion de la couche supérieure de Au a été rapportée pour une valeur de fluence de 5×10^{15} Xe/cm² [28] par l'effet de pulvérisation .

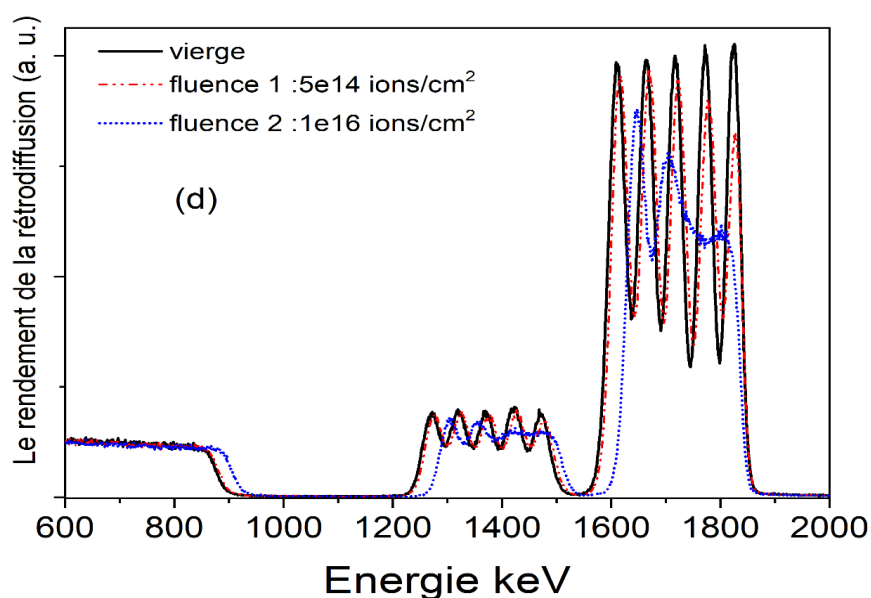


Figure IV.14: Spectres de RBS superposés pour les échantillons non irradiés et irradiés pour faire une comparaison entre différents signaux.

Nous avons également noté qu'il y a une fusion significative des pics d' Au et Ni à la fluence la plus élevée (1×10^{16} Xe/cm²), indiquant que les trois premières (supérieures) bicouches de la multicouche sont complètement mélangées. Le calcul TRIM illustré à la figure (IV.15) confirme bien ce résultat, qui montre clairement les collisions générées par l'ion Xe s'étendant principalement sur les trois couches supérieures.

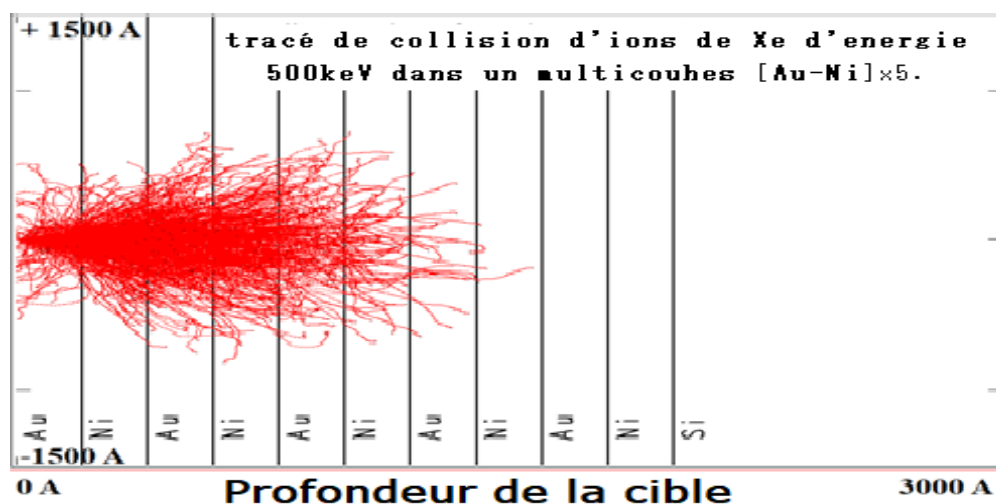


Figure IV.15 Simulation des collisions dans la multicouche [Au/Ni]_{x5}/Si irradiée avec des ions Xe d'énergie de 500 keV.

IV.3. Résultat du calcul avec le modèle de la pointe thermique

La description du modèle de la pointe thermique a été fournie dans le premier chapitre. En effet, ce modèle permet d'obtenir l'évolution de l'énergie par atome cible (équivalent à la température du réseau) en fonction du temps et en fonction de la distance radiale, et par conséquent la possibilité de prédire la transformation de phase solide/liquide autour du trajet des ions incidents. Ceci permettra de proche de l'interface Au/Ni.

Il permet également de déterminer la durée de vie et la section efficace de la phase fondue au niveau de l'interface comme deux paramètres importants pour quantifier le procédé de mélange ionique.

IV.3.1. Discussion des calculs avec le modèle de la pointe thermique

A. Irradiation avec des ions Au de 100 MeV (SHI)

Dans ce cas nous avons utilisé le modèle de la pointe thermique inélastique (I-TSM) car l'énergie déposée sur les atomes cibles est négligeable devant l'énergie déposée sur les électrons ($S_n \ll S_e$).

Dans la figure (IV.16. (a)), nous avons représenté l'évolution de l'énergie maximale transférée par atome [$E_{at}(\max)$] en fonction de la profondeur dans le système [Au (20 nm) / Ni (20 nm)]₅/Si, irradié avec des ions d' Au d'énergie 100 MeV à la température ambiante, pour différentes distances radiales r . On remarque que l'énergie maximale par atome reste bien inférieure à l'énergie requise pour la fusion d' Au ($E_m^{Au} = 0.43 eV$) et le Ni ($E_m^{Ni} = 0.66 eV$).

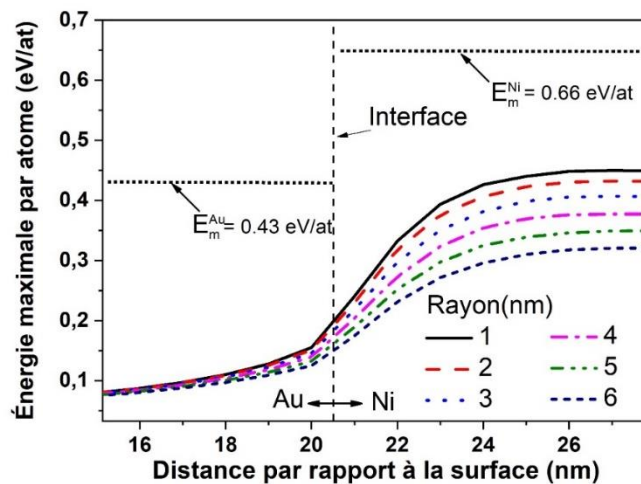


Figure IV.16 : L'évolution de l'énergie maximale par atome en fonction de la profondeur pour différentes distances radiales dans le [Au (20nm)/Ni (20nm)]₅/Si irradié avec (a) 100 MeV d'ions Au.

D'après les résultats de Wang et al. [29] Au est un métal noble avec une faible constante de couplage électron-phonon " g ", donc il est insensible à l'énergie déposée sur le sous-système électronique " S_e " et sa température n'augmente pas significativement. Tandis que le Nickel est aussi insensible pour les valeurs de S_e inférieur à 67 keV/nm [29], en raison, entre autres, de son point de fusion élevé. Dans le cas présent, la valeur de S_e (Ni) est inférieure à cette valeur seuil et égale à 32.4 keV/nm, ce qui explique pourquoi il n'atteint pas la fusion. Cependant, l'énergie par atome E_{at} dans le Ni est beaucoup plus élevée que dans Au comme le montre la

figure (IV.16) car la constante de couplage électron-phonon $g(\text{Ni})$ est ~ 100 fois supérieure à $g(\text{Au})$. Par conséquent, le gradient de température ainsi créé au niveau de l'interface Au/Ni par l'ion incident conduit au flux de la chaleur de Ni vers Au, ce qui explique la diminution de l'énergie par atome (E_{at}) de Ni et son augmentation dans le Au, à proximité de l'interface comme on le voit sur la figure (IV.16).

En conclusion, le mélange à l'interface Au/Ni dans ce cas de l'irradiation à haute énergie (100 MeV) est clairement inattendu. Ce résultat est en bon accord avec les investigations expérimentales via DRX et SEM.

B. Irradiation avec des ions de Xe à énergie de 500 keV

Pour les faisceaux d'ions à basse énergie, nous avons utilisé le modèle élastique de la pointe thermique « Elastic Thermal Spike (E-TSM), car le dépôt d'énergie électronique (S_e) est très faible dans ce cas et sa contribution au processus d'échauffement du réseau local est négligeable. Donc on ne considère que l'effet du dépôt d'énergie nucléaire, c'est-à-dire $A(r, t) = 0$ l'équation (I.13). La valeur de S_n proche de la première interface Au/Ni a été calculé via le code de simulation TRIM et trouvé égale à ~ 7 keV/nm. Les calculs E-TSM dans le cas de basse énergie (500 keV Xe ions) ont été réalisés avec cette valeur de S_n afin de calculer l'énergie par atome au niveau de la première interface.

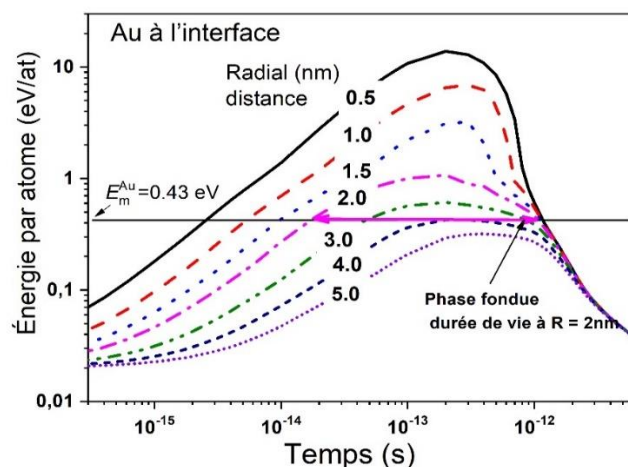


Figure IV.17: L'évolution de l'énergie maximale par atome en fonction de la profondeur pour différentes distances radiales dans le $[\text{Au} (20\text{nm})/\text{Ni}(20\text{nm})]_5/\text{Si}$ irradié avec 500 keV d'ions Xe.

La figure (IV.17) présente l'évolution de l'énergie maximale de chaque atome en fonction de la profondeur pour différentes distances radiales dans [Au (20 nm)/Ni (20 nm)]₅/Si irradié avec des ions Xe d'énergie 500 keV.

Contrairement au cas précédent de l'irradiation à haute énergie, nous remarquons que l'énergie maximale déposée par atome E_{am} pour Au et Ni dépasse l'énergie nécessaire pour fondre dans un volume cylindrique de rayons de 4 et 3 nm pour Au et Ni, respectivement.

En accord avec les prédictions théoriques [30], ce résultat révèle la formation de pointes thermiques élastiques de phases fondues le long de l'interface Au/Ni. Par conséquent, le mélange ionique (IBM) pourrait être significativement accéléré grâce à la grande mobilité atomique (diffusion) dans les métaux fondus, au-dessus de la température de fusion, de l'ordre de 10^{-5} à 10^{-4} cm²/s [30]. Tant que les calculs de la pointe thermique fournissent l'évolution de l'énergie par atome en fonction du temps et la distance radiale, il est possible de quantifier l'extension et la durée de vie de phase fondue. Sur cette base, nous allons analyser les résultats expérimentaux dans référence [28] pour comprendre mieux le phénomène de mélange (IBM) par irradiation aux ions d'énergie relativement faible.

Du fait que le mélange induit avec ions lourds à haute énergie (SHI) a été décrit avec succès par l'inter-diffusion transitoire dans des pistes en fusion, nous allons examiner la validité de ce mécanisme de mélange par l'inter-diffusion dans les irradiations de faible énergie. Pour cette raison, la même formule utilisée par Kraft et al. [31] va être utilisée ici pour tenir en compte de l'inter-diffusion dans les zones en fusion :

$$k = (2D_a t_m) \pi R^2 \dots\dots\dots (IV.2)$$

Où :

- ✓ k : le taux de mélange,
- ✓ πR^2 : la section transversale moyenne de la phase fondue,
- ✓ R : est le rayon de la zone fondue cylindrique (pointe),
- ✓ t_m : la durée de vie de la phase fondue,
- ✓ D_a : la diffusivité.

Nous avons utilisé les valeurs expérimentales des taux de mélange mesurés dans les bicouches Au/Ni à différentes énergies d'irradiation rapportées dans les travaux de Datta et al. [28]. Ces valeurs ont été revues dans le cadre des calculs E-TSM pour évaluer la diffusivité en phase liquide à partir de la formule ci-dessus : $D_a = k_{exp} / (2t_m) R^2$.

Pour les valeurs de la durée de vie (t_m) de la phase fondue et le rayon de la pointe thermique R ont été obtenus à partir des calculs E-TSM effectués dans le présent travail, et le taux de mélange à partir des résultats expérimentaux Datta et al.[28].

Le tableau 1 regroupe les différents paramètres utilisés dans cette procédure ; t_m , R , k_{exp} et les diffusivités calculées D_a . Il rapporte également les valeurs des taux de mélange théoriques selon les modèles ; balistique, de la pointe thermique locale et globale décrits dans le chapitre II.

Pour calculer ces taux de mélange théorique on utilise la densité d'énergie déposée (F_D) évaluée près de l'interface en utilisant le code SRIM. F_D peut être calculé à partir de cette équation [32] :

$$F_D = (2n_v + n_r).E_d \quad (VI.3)$$

- ✓ n_v : est le nombre de lacunes produites par nm à une profondeur donnée.
- ✓ n_r : est le nombre de collisions de remplacement à la même profondeur.
- ✓ E_d : est l'énergie seuil de déplacement des atomes cibles.

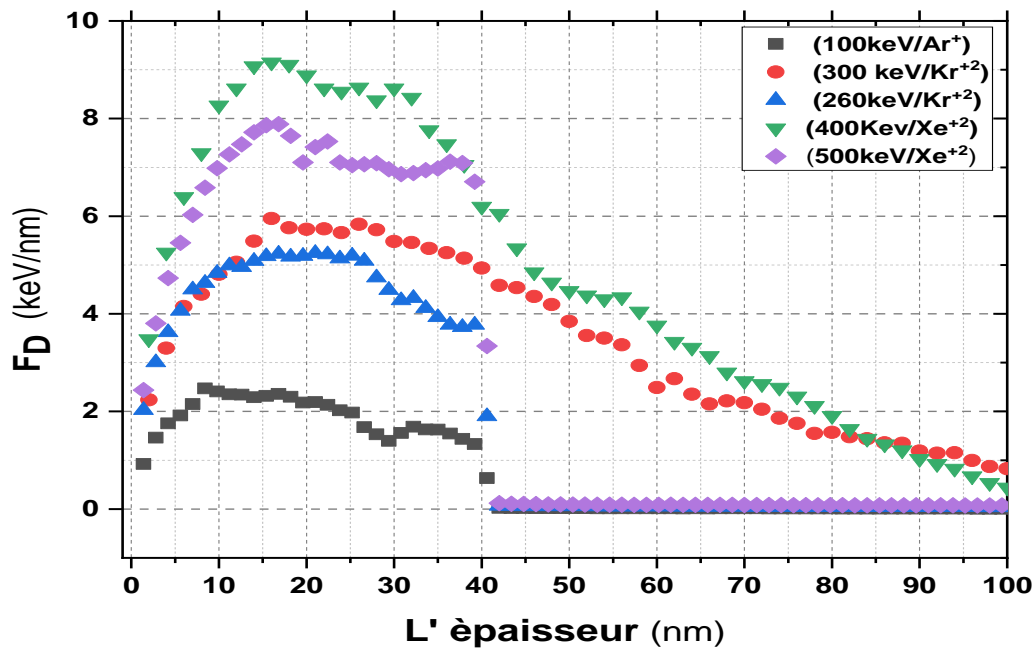


Figure IV.18 : La variation de F_D sur la profondeur de l'échantillon.

Tableau IV.4 : Espèces et énergie d'irradiation ionique et les taux de mélange expérimentaux [28] ainsi que le calcul une fois selon les modèles balistiques, à pointes locales et à pointes globales.

Projectile et Energy (keV)	Densité d'énergie déposée F_D keV/nm	Le taux de mélange expérimental k_{exp} (nm ⁴)	Taux de mélange calculé (k_{cal})			TSM élastique		Diffusivité D_a (cm ² /s)
			Balistique (nm ⁴)	Local (nm ⁴)	Global (nm ⁴)	t_m (10^{13} s)	πR^2 (nm ²)	
Ar 100	1.2	3.7	0.11	3.23	0.41	3.3	3.80	1.5×10^{-2}
Kr 300	3.7	4.1	0.38	9.97	3.5	6.8	15.89	1.9×10^{-3}
Kr 260	4.2	5.3	0.43	11.32	4.9	7.8	23.5	1.4×10^{-3}
Xe 400	5.0	6.9	0.53	13.48	7.1	9.41	33.1	1.1×10^{-3}
Xe 500	7.0	-	0.75	18.78	14.1	9.81	38.5	1.86×10^{-3}

À partir des données du tableau (IV.4), le taux de mélange théorique fourni par le modèle de la pointe thermique global correspond assez bien à celui obtenu empiriquement pour l'irradiation aux ions de Xe (d'énergie 400 keV). Il devient un peu sous-évalué pour des masses d'ions relativement plus légères (Kr), et clairement sous-estimé pour les ions légers (Ar). D'autre part, le modèle de pointe thermique local s'adapte nettement mieux au taux de mélange mesuré pour l'ion Ar et donne des valeurs surestimées pour les ions Kr et Xe.

Les données montrent également que les valeurs du modèle balistique ne correspondent pas aux taux de mélange expérimentaux, ce qui implique que ces résultats ne peuvent pas être expliqués uniquement en termes de processus de mélange balistique. D'après l'analyse précédente, il est évident que le modèle de la pointe thermique locale peut représenter adéquatement le mélange ionique (IBM) pour les ions légers uniquement. Lors de l'utilisation d'ions de grande masse, tels que les ions Xe, les pointes thermiques ou sous-cascades locales commencent à se chevaucher et créent probablement une seule pointe avec des cascades à haute densité (pointe thermique globale), conformément aux conclusions de Bolse et al. [33]

De plus, les calculs E-TSM montrent qu'à mesure que la couche déposée s'épaissit, la durée de vie de la phase fondue (t_m) et la région à travers laquelle se produit le mélange (R^2) augmentent de 3.3×10^{-13} à 9.81×10^{-13} s et de 3.8 à 38.5 nm², respectivement. Lorsque la densité d'énergie déposée augmente (F_D) augmente de 1.2 à 5 keV/nm.

Selon les valeurs observées rapportées qui allaient de 3.7 à 6.9 nm⁴, cela semble améliorer le taux de mélange. Cependant, les diffusivités prédites pour les ions légers (Ar) étaient supérieures de deux ordres de grandeur (10^{-2} cm²/s) aux valeurs normales des métaux liquides [30,34,35]. Les diffusivités des ions Kr et Xe dans les métaux liquides ne sont que quelques fois supérieures. Ces résultats sont, en fait, en accord avec les modèles théoriques de pics thermiques exposés dans le paragraphe précédent.

Les diffusivités estimées pour les irradiations Xe et Kr étaient typiques de la diffusion en phase fondue à des températures supérieures au point de fusion. En revanche, la valeur de diffusivité plus élevée signalée pour les ions Ar de faible masse, où des pointes dispersées dans l'espace (pointes thermiques locales) sont plus susceptibles de se produire, peut être considérée comme l'application E-TSM étant incorrecte dans cette situation en raison de l'absence de cohérence cylindrique production de pointes. En conséquence, les valeurs dérivées de R^2 et t_m étaient inexactes, entraînant une valeur non fiable de diffusivité D_a . (Tableau IV.4).

Sur la base de l'étude ci-dessus, la valeur du taux de mélange de la multicouche Au/Ni irradiée avec des ions Xe de 500 keV a pu être calculée en utilisant la formule théorique du modèle de pointe global (voir tableau 1). Ce nombre, ainsi que les valeurs de R^2 et t_m , nous ont permis de calculer la diffusivité atomique, $D_a = 1.86 \times 10^{-3}$ cm²/s, qui était responsable des observations expérimentales susmentionnées d'inter-diffusion atomique et d'alliage Au-Ni.

Le phénomène de croissance des grains observé sur les images FESEM, Figure (VI.2) et (VI.4), peut être décrit qualitativement dans le cadre du modèle de la pointe thermique. Selon ce modèle, chaque ion provoque la formation de zones liquides autour du trajet de l'ion (pointes thermiques) avec une section efficace d'environ 38 nm² (Tableau VI.3), qui persiste pour quelques picosecondes. Quand ces pointes thermiques sont induits au niveau des joints de grains, ils provoquent des déplacements atomiques dans cette région et conduisent à la migration des joints de grains et la croissance des grains. Plusieurs Modèles ont été développés afin de révéler les mécanismes de la croissance de grains induite par l'irradiation aux ions [5,36].

Une étude théorique basé sur le modèle de la pointe thermique a aboutie à une loi parabolique (l'exposant $n = 2$ dans la relation **IV.1**) qui relie la taille des grains D avec les paramètres de l'irradiations (Φ et t), a été établie par Alexander et al.[13] comme suit : $D^2 - D_0^2 = K\Phi t$.

Récemment, Kaoumi et al.[10] ont amélioré le modèle précédent en prenant en considération la nature de la structure de cascades de déplacements et la géométrie des grains et montré que la loi de la croissance de grains doit être cubique (l'exposant $n = 3$), en bon accord avec les résultats expérimentaux.

Dans la figure **IV. 3**, nous avons tracé les résultats de la tailles des grains mesuré à partir des images FESEM (Figure **IV.2,4**) des multicouches irradié par des ions Xe d'énergie 500 keV avec ceux obtenues dans [28]. Ces deux résultats ont été ajustés en utilisant la relation (**IV.1**). L'ajustement dans les deux cas a permis de d'obtenir une valeur de $n \approx 3$ ($n = 2.82 \pm 0.22$ les résultats du présent travail et $n = 2.98 \pm 0.57$ pour les résultats de Réf [28]).

Il est très important de noter ici qu'il existe une certaine similitude entre le phénomène de mélange ionique et le phénomène de croissance de grains concernant leur dépendance en fonction de F_D ainsi que les paramètres thermochimiques comme : ΔH_{mix} , ΔH_{coh} ,...En plus, les deux phénomènes présentent les régimes en fonction de la températures.

De cette discussion, il est clair que la croissance des grains observée dans les images FESEM (Figures**IV.2.4**) et IBM dans (Figures**IV.11, 12, 13,14**) sont deux phénomènes interconnectés. En fait, le mélange total obtenu à la fluence la plus élevée a coïncidé avec la valeur mesurée la plus élevée de la taille des grains, (191.5 ± 6.00) nm. Par conséquent, lorsque le joint de grain migre à travers l'interface Au/Ni, il contribue massivement au transport atomique à travers les multiples interfaces Au/Ni conduisant à l'interdiffusion atomique.

Bibliographies

- [1] Binary Alloy Phase Diagrams-Second edition. T. B. Massalski, H. Okamoto, P. R. Subramanian, L. Kacprzak, Editors. ASM International, Materials Park, Ohio, USA. December 1990. pp.628-629 3 vol., n.d. <https://doi.org/10.1002/ADMA.19910031215>.
- [2] D.Kanjilal, G. O. Rodrigues, U. K. Rao, C. P. Safvan, and A. Roy, *Ind. Jour. Pure Appl. Phys.* 39, 25, (2001).
- [3] P. Kumar, G. Rodrigues, U. Rao, C. Safvan, D. Kanjilal, A. Roy, *Pramana* 59, 805, (2002).
- [4] J.F. Ziegler, SRIM : the stopping and range of ions in matter, SRIM—The Stopping Range Ions Matter. <Http://Www.Srim.Org/>. (2013). <http://www.srim.org/> (accessed August 22, 2021).
- [5] P. Wang, D.A. Thompson, W.W. Smeltzer, Implantation of Ni thin films and single crystals with Ag ions, 7–8 (n.d.). [https://doi.org/10.1016/0168-583X\(85\)90536-1](https://doi.org/10.1016/0168-583X(85)90536-1).
- [6] P. Wang, D.A. Thompson, W.W. Smeltzer, Implantation and grain growth in ni thin films induced by Bi and Ag ions, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms.* 16 (1986) 288–292. [https://doi.org/10.1016/0168-583X\(86\)90025-X](https://doi.org/10.1016/0168-583X(86)90025-X).
- [7] H.A. Atwater, C. V. Thompson, H.I. Smith, Ion-bombardment-enhanced grain growth in germanium, silicon, and gold thin films, *J. Appl. Phys.* 64 (1988) 2337–2353. <https://doi.org/10.1063/1.341665>.
- [8] J.C. Liu, J. Li, J.W. Mayer, Temperature effect on ion-irradiation-induced grain growth in Cu thin films, *J. Appl. Phys.* 67 (1990) 2354–2358. <https://doi.org/10.1063/1.345530>.
- [9] J.C. Liu, M. Nastasi, J.W. Mayer, Ion irradiation induced grain growth in Pd polycrystalline thin films, *J. Appl. Phys.* 62 (1987) 423–428. <https://doi.org/10.1063/1.339815>.
- [10] D. Kaoumi, A.T. Motta, R.C. Birtcher, A thermal spike model of grain growth under irradiation, *J. Appl. Phys.* 104 (2008). <https://doi.org/10.1063/1.2988142>.
- [11] D.C. Bufford, F.F. Abdeljawad, S.M. Foiles, K. Hattar, Unraveling irradiation induced grain growth with in situ transmission electron microscopy and coordinated modeling, *Appl. Phys. Lett.* 107 (2015). <https://doi.org/10.1063/1.4935238>.
- [12] D.E. Alexander, G.S. Was, L.E. Rehn, Ion-induced grain growth in multilayer and coevaporated metal alloy thin films, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms.* 59–60 (1991) 462–466. [https://doi.org/10.1016/0168-583X\(91\)95260-K](https://doi.org/10.1016/0168-583X(91)95260-K).
- [13] D.E. Alexander, G.S. Was, Thermal-spike treatment of ion-induced grain growth: Theory and experimental comparison, *Phys. Rev. B.* 47 (1993) 2983–2994. <https://doi.org/10.1103/PHYSREVB.47.2983>.
- [14] D.E. Alexander, G.S. Was, L.E. Rehn, The heat-of-mixing effect on ion-induced grain growth, *J. Appl. Phys.* 70 (1998) 1252. <https://doi.org/10.1063/1.349580>.

- [15] D. Kaoumi, A.T. Motta, R.C. Birtcher, A thermal spike model of grain growth under irradiation, *J. Appl. Phys.* 104 (2008) 073525. <https://doi.org/10.1063/1.2988142>.
- [16] J.B. Wiskel, J. Lu, O. Omotoso, D.G. Ivey, H. Henein, Characterization of precipitates in a microalloyed steel using quantitative X-ray diffraction, *Metals (Basel)*. 6 (2016) 1–13. <https://doi.org/10.3390/met6040090>.
- [17] Galina Abrosimova and Alexandr Aronin, Amorphous and Nanocrystalline Metallic Alloys, in: *Prog. Met. Alloy.*, 2016: pp. 45–83. <https://doi.org/http://dx.doi.org/10.5772/64499>.
- [18] G.E. Abrosimova, A.S. Aronin, Evolution of the amorphous-phase structure in metal–metal type metallic glasses, *J. Surf. Investig.* 9 (2015) 887–893. <https://doi.org/10.1134/S1027451015050031>.
- [19] N. Ishikawa, K. Takegahara, Radiation damages in CeO₂ thin films irradiated with ions having the same nuclear stopping and different electronic stopping powers, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms.* 272 (2012) 227–230. <https://doi.org/10.1016/J.NIMB.2011.01.071>.
- [20] A. Harte, T. Seymour, E.M. Francis, P. Frankel, S.P. Thompson, D. Jädernäs, J. Romero, L. Hallstadius, M. Preuss, Advances in synchrotron x-ray diffraction and transmission electron microscopy techniques for the investigation of microstructure evolution in proton- and neutron-irradiated zirconium alloys, *J. Mater. Res.* 30 (2015) 1349–1365. <https://doi.org/10.1557/jmr.2015.65>.
- [21] T. Seymour, P. Frankel, L. Balogh, T. Ungár, S.P. Thompson, D. Jädernäs, J. Romero, L. Hallstadius, M.R. Daymond, G. Ribárik, M. Preuss, Evolution of dislocation structure in neutron irradiated Zircaloy-2 studied by synchrotron x-ray diffraction peak profile analysis, *Acta Mater.* 126 (2017) 102–113. <https://doi.org/10.1016/J.ACTAMAT.2016.12.031>.
- [22] Z. Swiatkowska-Warkocka, A. Pyatenko, F. Krok, B.R. Jany, M. Marszalek, Synthesis of new metastable nanoalloys of immiscible metals with a pulse laser technique, *Sci. Reports* 2015 51. 5 (2015) 1–6. <https://doi.org/10.1038/srep09849>.
- [23] A. Herz, D. Wang, P. Schaaf, Dewetting of Au/Ni bilayer films on prepatterned substrates and the formation of arrays of supersaturated Au-Ni nanoparticles, *J. Vac. Sci. Technol. B, Nanotechnol. Microelectron. Mater. Process. Meas. Phenom.* 32 (2014) 021802. <https://doi.org/10.1116/1.4863320>.
- [24] A. Herz, D. Wang, T. Kups, P. Schaaf, Solid-state dewetting of Au/Ni bilayers: The effect of alloying on morphology evolution., *J. Appl. Phys.* 116 (2014). <https://doi.org/10.1063/1.4891448>.
- [25] S.K. Sengar, B.R. Mehta, Govind, Size and alloying induced changes in lattice constant, core, and valence band binding energy in Pd-Ag, Pd, and Ag nanoparticles: Effect of in-flight sintering temperature, *J. Appl. Phys.* 112 (2012). <https://doi.org/10.1063/1.4731714>.
- [26] C.F. Holder, R.E. Schaak, Tutorial on Powder X-ray Diffraction for Characterizing Nanoscale Materials, *ACS Nano*. 13 (2019) 7359–7365. <https://doi.org/10.1021/ACSNANO.9B05157>.
- [27] L.R. Doolittle, Algorithms for the rapid simulation of Rutherford backscattering

- spectra, Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms. 9 (1985) 344–351. [https://doi.org/10.1016/0168-583X\(85\)90762-1](https://doi.org/10.1016/0168-583X(85)90762-1).
- [28] D. Datta, S.R. Bhattacharyya, Mechanism of ion-induced mixing phenomena in Gold-Nickel bilayer on Si substrate, Appl. Phys. A Mater. Sci. Process. 116 (2014) 1455–1466. <https://doi.org/10.1007/S00339-014-8259-9>.
- [29] C. Dufour, Z.G. Wang, M. Levalois, P. Marie, E. Paumier, F. Pawlak, M. Toulemonde, Sensitivity of metallic materials under irradiation with swift heavy ions, Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms. 107 (1996) 218–222. [https://doi.org/10.1016/0168-583X\(95\)01030-0](https://doi.org/10.1016/0168-583X(95)01030-0).
- [30] M. Nastasi, J.W. Mayer, Ion beam mixing and liquid interdiffusion, Radiat. Eff. Defects Solids. 130–131 (1994) 367–385. <https://doi.org/10.1080/10420159408219797>.
- [31] S. Kraft, B. Schattat, W. Bolse, S. Klaumünzer, F. Harbsmeier, A. Kulinska, A. Löffl, Ion beam mixing of ZnO/SiO₂ and Sb/Ni/Si interfaces under swift heavy ion irradiation, J. Appl. Phys. 91 (2002) 1129–1134. <https://doi.org/10.1063/1.1425439>.
- [32] G.H. Vineyard, Thermal spikes and activated processes, Radiat. Eff. 29 (1976) 245–248. <https://doi.org/10.1080/00337577608233050>.
- [33] W. Bolse, W. Bolse, Mater. Sci. Eng. A253 (1998) 194–201., Sci. Eng. A253 (1998) 194–201.
- [34] N. Dubinin, Self-diffusion in liquid copper, silver, and gold, Metals (Basel). 10 (2020) 1–8. <https://doi.org/10.3390/MET10121651>.
- [35] M. Walbrühl, A. Blomqvist, P.A. Korzhavyi, Atomic diffusion in liquid nickel: First-principles modeling, J. Chem. Phys. 148 (2018). <https://doi.org/10.1063/1.5026348>.
- [36] P. Wang, D.A. Thompson, W.W. smeltzer, nucl. inst. methods phys. res. b 16 (1986) 288–292., (n.d.).

Conclusion générale

Dans ce travail de thèse, nous avons réalisé deux types d'expériences liées à l'étude du mélange de faisceaux ioniques, qui conduit à la formation d'un alliage après irradiation. Nous avons choisi le système multicouche [Au (20nm)/Ni (20nm)]₅/Si qui est déposé par évaporation thermique, ou les deux métaux utilisés, Au et Ni, non miscibles à l'état d'équilibre.

La première expérience a été irradiée avec des ions Xe d'une énergie de 500 keV produits par un accélérateur de type 'LEIBF' situé à New Delhi, utilisant différentes fluences, avec caractérisation par des techniques : RBS, DRX et FESEM.

La deuxième expérience a été irradiée avec des ions Au d'énergie 100 MeV produits par un accélérateur Tandem de 15MV situé à New Delhi, avec différentes fluences, la caractérisation est réalisée par : RBS, DRX et FESEM.

Le mélange ionique observé dans les deux cas a été expliqué avec succès dans le modèle de pointe thermique, suggérant que l'interdiffusion atomique est renforcée par la formation de phase fondue le long du trajet des ions.

Les résultats obtenus sur les images FESM, pour l'irradiation avec des ions Xe d'énergie de 500 keV, montrent une augmentation de la taille des grains avec la fluence d'ions, on note que la taille des grains de l'échantillon non irradié est égale à (45.10 ± 4.46) nm, pour la fluence la plus élevée 1×10^{16} ions/cm² (100 ions/nm²) la taille des grains atteint la valeur de (191.50 ± 6.00) nm. Dans le deuxième régime (ions Au d'une énergie de 100 MeV), aucune modification de la morphologie de surface et aucune évolution de la taille des grains.

Les diffractogrammes de DRX de diffraction des rayons X des multicouches obtenus avant et après irradiation avec les ions Xe d'énergie 500 keV à différentes fluences montrent des changements considérables dans la position et l'intensité des pics ; indiquant de grands changements structuraux et de composition dans notre système multicouche [Au/Ni] avec une fluence croissante. Un pic asymétrique a également été observé dans les spectres, indiquant la superposition de deux pics distincts. Selon la littérature, l'asymétrie caractéristique du pic Au(111) et l'apparition de pics intermédiaires avec une fluence croissante, indiquent la formation d'une solution solide ou d'un alliage métallique Au-Ni.

Pour les échantillons irradiés à haute énergie de 100 MeV avec des ions Au, nous avons observé que tous les diffractogrammes DRX avec des fluences différentes avaient presque la même forme. La position et la largeur du pic (FWHM) sont restées presque les mêmes ; ce qui indique que la formation de solution solide ou d'alliage métallique Au-Ni est absente.

Conclusion générale

Nous utilisons la spectroscopie de rétrodiffusion (RBS) pour montrer l'interdiffusion atomique aux interfaces Au/Ni par irradiation aux ions Xe à basse énergie (500 keV). Les spectres RBS montrent que les trois bicouches supérieures des multicouches sont complètement mélangées à la fluence la plus élevée. Une épaisseur de couche mixte d'environ 100 nm et une efficacité de pulvérisation élevée ont été mises en évidence, indiquant une miscibilité élevée entre les éléments Au et Ni et la formation probable de nouvelles phases.

Nous utilisons le modèle de pointe thermique inélastique (I-TSM), dans le cas d'une irradiation avec des ions Au de 100 MeV (SHI) car l'énergie déposée sur les atomes cibles est négligeable par rapport à l'énergie déposée sur les électrons ($S_n \ll S_e$). Les calculs de modèle montrent que l'énergie maximale par atome reste (32.4 keV/nm) bien inférieure à l'énergie nécessaire à la fusion de Au ($E_m^{Au} = 0.43\text{eV}$) et le Ni ($E_m^{Ni} = 0.66\text{eV}$), ce qui explique pourquoi le mélange à l'interface Au/Ni dans ce cas de l'irradiation à haute énergie (100 MeV) est clairement inattendu. Ce résultat est en bon accord avec les investigations expérimentales via DRX et SEM.

Pour les faisceaux d'ions à basse énergie (500KeV Xe), nous utilisons le modèle élastique de la pointe thermique « Elastic Thermal Spike (E-TSM), car le dépôt d'énergie électronique (S_e) est très faible dans ce cas et sa contribution au processus d'échauffement du réseau local est négligeable. D'après les calculs, nous remarquons que l'énergie maximal déposé par atome E_{am} pour Au et Ni dépasse l'énergie nécessaire pour fondre dans un volume cylindrique de rayons de 4 et 3 nm pour Au et Ni, respectivement.

Ce travail complète l'étude de Datta et al. Les résultats ont été analysés dans le cadre de modèle de la pointe thermique (u-TSM) afin de comprendre les mécanismes sous-jacents responsables de mélange ionique (IBM) et d'évaluer le processus d'inter-diffusion.

En conclusion, le modèle de pointe thermique (u-TSM) a fourni une description cohérente du phénomène de mélange ionique causé par les ions d'énergie moyenne et élevée, et une méthode alternative proposée pour comprendre les résultats expérimentaux d'IBM. Cependant, en régime de moyenne énergie, ces calculs sont plus fiables pour des rayonnements comportant des pointes thermiques globaux qui émettent des ions très lourds.

Etude du phénomène d'interdiffusion atomique dans les multicouches nanométriques métal/métal et métal/ semi-conducteur induit par irradiation aux ions lourds.

RESUME

Dans le présent travail, nous avons étudié le mélange par faisceau d'ion et la croissance des grains induits dans la multicouche [Au/Ni] \times 5/Si par une irradiation d'ions Xe de 500 keV à différentes valeurs de fluence, en utilisant la microscopie électronique à balayage d'émission de champ (FESEM), la diffraction des rayons X (XRD) et Rétrodiffusion de Rutherford (RBS). La croissance des grains induite par les ions a été mise en évidence à l'aide de l'analyse FESEM et comparée avec succès aux expériences précédentes (littérature) et aux modèles théoriques. La RBS a montré un mélange total pour la fluence ionique la plus élevée et une pulvérisation significative de la surface (érosion). Les mesures XRD ont offert un excellent moyen d'éclaircir la cinétique de mélange par faisceaux d'ions et la formation de nouvelles phases. Les calculs du modèle de la pointe thermique combinés aux résultats expérimentaux disponibles dans la littérature sur les taux de mélange nous ont permis d'estimer la diffusivité et d'examiner la validité de l'inter-diffusion à l'état liquide. Pour le cas d'irradiation avec des ions Xe d'énergie de 500 keV, la diffusivité atomique a été estimée à 1.86×10^{-3} cm²/s. En ce qui concerne l'irradiation par des ions rapides de Au de 100 MeV, les résultats XRD ont exclu la formation de nouvelles phases et la taille des grains n'a pas changé après l'irradiation, même pour la fluence ionique la plus élevée, comme en témoignent les images FESEM. Ces résultats sont en bon accord avec la simulation dans le cadre du modèle de la pointe thermique inélastique, qui ne prévoyait aucune transition de phase solide à liquide pour les multicouches irradiés par des ions Au de 100 MeV, et donc aucun mélange d'Au et de Ni aux interfaces, en bon accord avec les résultats expérimentaux.

Mots clés :

Multicouches Au/Ni, Mélange par faisceau d'ion, Modèle de la pointe thermique, formation d'alliage Au-Ni

Study of the atomic intermixing phenomenon in metal/metal and metal/semiconductor nanometric multilayers induced by heavy ion irradiation.

ABSTRACT

In the present work, we investigated ion beam mixing and grain growth induced in [Au/Ni] \times 5 /Si multilayer by 500 keV Xe ion irradiation at different fluence values, using Field Emission Scanning Electron Microscopy (FESEM), X-ray Diffraction (XRD) and Rutherford Backscattering (RBS). Ion-induced grain growth has been evidenced using FESEM analysis and successfully compared to previous experiments and theoretical models. RBS showed total mixing at the highest ion fluence and significant surface sputtering. XRD measurements offered an excellent way to bring light on ion beam mixing kinetics and new phases formation. Thermal spike model calculations combined with the available experimental results in literature of mixing rates enabled us to estimate the diffusivity and examine the validity of inter-diffusion in liquid state. For present work, the atomic diffusivity was estimated to 1.86×10^{-3} cm²/s. As for swift Au ion irradiation of 100 MeV, the XRD results excluded the formation of new phases and the grain size did not change after irradiation even for the highest ion fluence as evidenced by FESEM images. These results are in good agreement with the inelastic thermal spike model (I-TSM) simulation, which predicted no solid to liquid phase transition for 100 MeV Au ion irradiated multilayers, and thus no intermixing of Au and Ni, in good agreement with experimental results.

Keywords:

Au/Ni multilayer, ion beam mixing, thermal spike model, Au-Ni alloy formation.

دراسة ظاهرة لامتزاز الايوني ناتجة عن قذف بأيونات مشعة ثقيلة في عدة طبقات نانومتريه المعدن/المعدن و معدن/شبه موصل.

ملخص

في هذا العمل تمت دراسة عملية الامتزاز الايوني في عدة طبقات نانومتريه مكونة $5 \times [\text{Au/Ni}]$ على قاعدة سليكون. من خلال قذف العينات بأيونات ذات طاقات مختلفة بتدفقات مختلفة ($500\text{keV Xe } 100\text{MeV Au}$;) لمراقبة التغيرات المورفولوجية على سطح العينات نستخدم المجهر الالكتروني FESEM و جهاز الأشعة السينية (XRD) لتحديد تكوين محاليل صلبة على سطح العينات قبل وبعد القذف الايوني. للحصول على التركيبية البدائية للعينات والانتشار الذري بين الطبقات نستعمل جهاز مطيافية رذرفورد (RBS). تم إثبات نمو حجم الحبيبات باستخدام تحليل FESEM بعد القذف بالأيونات 500keV Xe وتم مقارنته بنجاح مع التجارب السابقة والنماذج النظرية. أظهرت اطياف RBS امتزاز كلي عند أعلى قيمة تدفق. كما قدمت قياسات XRD طريقة ممتازة لإلقاء الضوء على حركيات الخلط الأيوني حيث عند أعلى قيمة تدفق تشكلت محاليل صلبة وخالط جديدة. تتوافق النتائج التي تم الحصول عليها مع النتائج السابقة في نظام Ni / Au وتؤكد تكوين سبائك Ni-Au ومحلل الصلب.

تم تقدير الانتشار الذري المسؤول عن الامتزاز الملحوظ، في هذا العمل، بنحو $1.86 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$. من خلال الجمع بين حسابات نموذج الذروة الحرارية والنتائج التجريبية المتوفرة في الاعمال السابقة وفحص صحة الانتشار في السائل. توقع نموذج الذروة الحرارية أن العينات المشعة باستخدام أيونات الذهب الثقيل ذو طاقة 100 MeV لن تختلط، وهو ما يتفق مع نتائج XRD و FESEM .

الكلمات المفتاحية Ni / Au :متعدد الطبقات، الامتزاز الأيوني، نموذج الذروة الحرارية، تشكيل سبيكة.