

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE 20 AOÛT 55 - SKIKDA

Faculté des Sciences et Sciences de l'Ingéniorat

Département des Sciences Fondamentales

THESE DE DOCTORAT

Présentée Par

Abdelhak CHETTAH

Pour obtenir le grade de Docteur de l'Université 20 Août 55 – Skikda
Spécialité : Physique, Option : Matière condensée

**Etude par simulation du mélange induit dans les
multicouches métalliques nanométriques
irradiées aux ions lourds rapides par
le modèle de la pointe thermique**

Soutenue le : 26/11/2006

Devant le jury :

B. Boudjema	Professeur, Université de Skikda	Président.
M. Djebara	Professeur, USHB, Alger	Examineur
R. Halimi	Professeur, Université de Constantine	Examineur
A. Medour	Professeur, Université de Guelma	Examineur
M. Toulemonde	Directeur de Recherche, CIRIL, Caen, France	Examineur
H. Kucal,	Maître de Conférences, CIRIL, Caen, France	Examineur
A. Meftah	Professeur, Université de Skikda	Rapporteur

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Recherche sur la Physico-Chimie des Surfaces et Interfaces (LRPCSI) de l'Université de Skikda et le Centre Interdisciplinaire de Recherche Ions Lourds Lasers (CIRIL, Caen, France). Les résultats obtenus sont le fruit d'une étroite collaboration entre nos deux équipes de Recherche dirigées par le Professeur Ali MEFTAH, Directeur du LRPCSI pour la partie Algérie et le Docteur Marcel Toulemonde du CIRIL pour la partie Française.

Mes séjours en France ont été financés par l'accord Tassili MDU 573. Je remercie notre gouvernement Algérien et le gouvernement Français pour les facilités qui m'ont été accordées. J'exprime ma profonde reconnaissance au Docteur **Serge Boufard**, Directeur du CIRIL, pour sa gentillesse et pour m'avoir ouvert les portes de son laboratoire.

Je remercie tout particulièrement le professeur **Ali Meftah** pour avoir dirigé ces recherches et pour la formation qu'il m'a permis d'acquérir.

Je remercie le Docteur **Marcel Toulemonde**, Directeur de Recherche au CIRIL, pour l'enthousiasme scientifique qu'il a pu me faire partager tout au long des stages effectués en France. Je le remercie aussi de m'avoir fait bénéficier de ses connaissances sur le modèle de la pointe thermique.

Je tiens aussi à exprimer ma profonde reconnaissance à Madame **Hélène Kucal**, Maître de conférences à l'ENSI de Caen, pour ses nombreux conseils et avoir suivi avec le plus grand soin la progression de ce travail.

Je remercie le Professeur **Boudjema Bouzid** de l'Université de Skikda d'avoir accepté de présider le jury.

Je tiens à remercier les Professeurs **Mohamed Djebara** de l'Université Houari Boumediene (USTHB, Alger), **Rachid Halimi** de l'Université de Constantine et **Atmane Meddour** de l'Université de Guelma pour l'honneur qu'il m'ont fait d'examiner ce travail et de participer au jury.

J'exprime ma reconnaissance à toutes les personnes qui m'ont apporté aide et soutien, en particulier Mr **Ghani Benhamaid** le technicien du laboratoire (LRPCSI).

SOMMAIRE

Introduction	1
 <u>CHAPITRE I</u> : Théorie du ralentissement des ions lourds rapides dans la matière	
I.1. Définitions	3
a. Pouvoir d'arrêt.....	3
b. Parcours.....	4
c. Flux et fluence.....	4
I.2. Diffusion de Rutherford	5
I.3. Expression des pouvoirs d'arrêt	6
I.3.1. Expression du pouvoir d'arrêt nucléaire.....	7
I.3.2. Défauts induits par les collisions nucléaires.....	9
I.3.3. Expression du pouvoir d'arrêt électronique.....	10
a. Le régime des grandes vitesses.....	11
b. Le régime des basses vitesses.....	13
c. Formule finale.....	14
I.3.4. Défauts induits par excitations électroniques.....	15
I.4. L'importance relative des mécanismes de perte d'énergie	16
I.5. Parcours des ions	17
I.6. Processus de formation de la trace latente	17
I.6.1. Mécanisme de conversion: excitation électronique-défaut stable.....	19
a. Excitation électronique individuelle: la radiolyse.....	20
b. Excitation électronique collective : modèle de création de défauts.....	20
I.7. Modèles de création des traces latentes	20
a- Modèle de l'explosion ionique.....	20
b- Modèle de la pointe thermique.....	21
 <u>CHAPITRE II</u> : L'effet de l'irradiation aux ions sur les matériaux massifs et multicouches	
II.1. Défauts induits dans les isolants (oxydes)	23
II.1.1. Détermination de la section efficace d'endommagement et le rayon de traces.....	23
II.1.2. Saturation de l'efficacité d'endommagement et morphologie des traces.....	24
II.1.3. L'effet de vitesse et la dépendance du rayon de la trace en pouvoir d'arrêt électronique.....	25
II.2. Défauts induits dans les métaux purs	28
II.2.1. Résultats expérimentaux.....	28

II.2.2. Etudes théoriques	29
II.3. Modifications induites dans les multicouches par irradiation aux ions lourds.....	33
II.3.1. Régime des Basses énergies	33
A. L'effet balistique	33
A.1. Le mélange par effet balistique : l'approximation de collision de deux corps.....	34
A.2. Le mélange par cascade de déplacement	36
B. L'effet thermodynamique sur le mélange	38
B.1. La température.....	39
B.2. La chaleur de mélange.....	40
B.3. L'énergie de cohésion.....	43
C. Modèles théoriques du mélange.....	44
C.1. Interdiffusion par effet balistique	45
C.2. Interdiffusion dans les pointes thermiques	46
C.2.1. Interdiffusion dans les pointes thermiques locales	46
C.2.2. Interdiffusion dans la pointe thermique globale	47
II.3.2. Régime des hautes énergies	47
A. Les bicouches oxyde/oxyde et métal/oxyde.....	48
B. Les bicouches Métal /Métal	51
C. Etude théorique (simulation) du mélange par le model de la pointe thermique.....	52

CHAPITRE III : Modélisation

III-1. Introduction.....	54
III-2. Etablissement des équations différentielles de la conduction de chaleur	55
a. En considérant uniquement le transport radial d'énergie	55
b. En considérant le transport radial et axial d'énergie	56
III-3. La résolution du système d'équations couplées	59
III.3.1. Discussion de la solution numérique.....	59
III.3.2. Présentation de la solution numérique.....	59
III.3.2.1. Caractéristiques du gaz d'électrons et ses limites d'application.....	60
III.3.2.1.a- La chaleur spécifique C_e	60
III.3.2.1.b- La diffusivité thermique $D_e = K_e/C_e$	62
III.3.2.2. Caractéristiques du sous-système atomique	67
III.3.2.3. L'interaction électron – phonon	67
III.3.2.4. La répartition spatio-temporelle du dépôt d'énergie $A(r, t)$ et $B(r, t)$	68

a- Le dépôt sur les électrons : $A(r, t)$	68
- La dépendance en temps	68
- Dépendance spatiale.....	70
b- Le dépôt sur les atomes : $B(r, t)$	72
III-4. La résolution mathématique	73
III.4.1. La méthode explicite	73
III.4.2. La méthode implicite	73
III-5. La discrétisation	74
III.5.1. Le code pour les matériaux massifs	74
III.5.2. Le code pour multicouches	79
III-6. Choix de la taille du cylindre (rayon $N_r \Delta r$ et longueur $N_x \Delta x$) et de la durée explorés	80
a- Le Choix de Δr	81
b- Le Choix de Δt	82
III.7. Le super échauffement (superheating)	82
III.8. Données d'entrer (input data) dans le calcul numérique	82

CHAPITRE IV: Résultats et interprétation

IV.1. Introduction	84
IV.2. Les systèmes Fer (x nm) / Aluminium (y nm)	85
IV.2.1. Les systèmes $[Fe(3nm)/Al(y nm)]_{15}$	85
IV.2.1. a. Irradiation aux ions Pb	85
- L'effet de l'épaisseur de l'Aluminium	89
IV.2.1. b. Irradiation aux ions Xe et Kr.....	90
IV.2.2. L'effet de l'épaisseur du Fer : Systèmes $[Fe(x nm)/Al(y nm)]$	93
IV.3. Les systèmes Fe (x nm) / Au (y nm)	94
IV.3.1. Les systèmes Fe (3 nm) / Au (y nm)	95
IV.3.1. a. Irradiation aux ions Pb	95
-L'effet de l'épaisseur de l'Or (Au)	98
IV.3.1. b. Irradiation aux ions Xe et Kr	100
IV.3.2.L'effet de l'épaisseur du Fer : Systèmes $[Fe(x nm)/Au (y nm)]_{15}$	102
IV.4. Effet du couplage électron-phonon	104
IV.4.1. Système Ti (3nm)/ Au(y nm)	104
IV.4.2. Système Bi (3nm)/ Au(y nm)	104

IV.5. Application du modèle aux systèmes étudiés expérimentalement	107
IV.5.1. Multicouche Fe/Ti et Au/Ti	111
IV.5.2. Multicouche Fe/Au	113
IV.5.3. Multicouches Fe / Ni.....	114
CONCLUSION GENERALE	116
APPENDICE	118
BIBLIOGRAPHIE	130

Introduction

L'interaction rayonnement-matière a fait l'objet de plusieurs travaux de recherche en vue d'étudier le ralentissement du rayonnement dans la matière ainsi que les dégâts occasionnés. L'étude de l'effet des ions lourds rapides dans la matière grâce aux accélérateurs d'ions chargés, comme GANIL : (*Grand Accélérateur National d'Ions Lourds*) à Caen-France et GSI (*Gesellschaft für Schwerionenforschung*) à Darmstadt-Allemagne, a permis de simuler l'effet des rayonnements de hautes énergies dans nombreux cas pratiques rencontrés. Citons par exemple, les composantes électroniques à base de différents types de matériaux, installés sur des satellites de transmission qui subissent des rayonnements cosmiques de hautes énergies. Il s'agit de comprendre pourquoi certains matériaux sont sensibles à tel rayonnement et comment la structure de la matière peut être affectée.

Le ralentissement des ions lourds s'effectue par deux processus indépendants ; les collisions élastiques avec les noyaux (collisions nucléaires) et les collisions inélastiques avec les électrons. A basse énergie (de l'ordre du keV/uma) le ralentissement se fait principalement par collisions nucléaires (ballistiques) conduisant à des défauts ponctuels. Par contre, à haute énergie (quelques MeV/uma), ce ralentissement se fait essentiellement par dépôt d'énergie sur les électrons de la cible conduisant à de forte densité d'excitations et ionisations électroniques le long des trajets des ions. Ces derniers conduisent indirectement à la création de défauts étendus de forme cylindrique appelés traces latentes. Deux modèles ont été développés afin de décrire les mécanismes de création des traces latentes, le modèle de l'explosion ionique et le modèle de la pointe thermique. Le modèle de la pointe thermique, que nous avons utilisé dans cette étude, permet de simuler les rayons des traces latentes et de révéler la sensibilité de différents types de matériaux, en bon accord avec les études expérimentales.

Le transport atomique (mélange) induit à l'interface de deux matériaux différents par l'irradiation aux ions, désigné souvent par IBM (Ion Beam Mixing), a été l'objet d'intenses études expérimentales et théoriques dans le régime des collisions nucléaires. En revanche, l'étude du mélange induit à hautes énergies reste moins affrontée. En effet, très récemment une étude systématique qui porte sur le mélange dans certains types de multicouches a commencé. Parmi ces études, peu sont menées sur le mélange des multicouches métalliques.

Notre travail « Etude par simulation du mélange induit dans les multicouches métalliques irradiées par les ions lourds rapides » est une contribution à la compréhension du phénomène de mélange dans les multicouches métalliques.

Dans le premier Chapitre, nous rappelons la théorie du ralentissement élastique et inélastique des ions dans la matière, les mécanismes de conversion des excitations électroniques en défauts stables et les modèles développés pour décrire la création des traces latentes.

Dans le second chapitre, nous faisons un état des connaissances sur l'effet de l'irradiation par les ions lourds rapides. Nous commençant par les matériaux massifs, isolants et métalliques. Ensuite nous abordons le transport atomique induit dans les multicouches à basse et haute énergie.

Le troisième chapitre, est consacré à la modélisation. Il s'agit de la mise en équation du phénomène du transport de l'énergie dans le matériau cible. C'est-à-dire le développement des équations différentielles décrivant le transfert de la chaleur dans les deux sous-systèmes électronique et atomique, et la solution mathématique proposée.

Dans le quatrième chapitre, nous présentons les résultats de simulation obtenus pour différents types de multicouches métalliques. Nous examinons l'influence du pouvoir d'arrêt électronique, le couplage électron-phonon et l'épaisseur des couches sur le processus du mélange. Enfin, nous appliquons le modèle de la pointe thermique à certaines multicouches étudiées expérimentalement afin de comparer avec les résultats de nos calculs à ceux obtenus expérimentalement dans ces travaux.

CHAPITRE I

Théorie du ralentissement des ions lourds rapides dans la matière

Lorsqu'un ion lourd pénètre dans la matière, il perd son énergie principalement par le biais de deux mécanismes fondamentaux traditionnellement considérés comme indépendants :

- *le ralentissement nucléaire, dominant à basse énergie, dû au transfert d'énergie cinétique de l'ion incident aux noyaux de la cible par des collisions élastiques.*
- *le ralentissement électronique, dominant à haute énergie, dû à l'excitation électronique des atomes de la cible par des collisions inélastiques avec les électrons de la cible.*

Pour des ions énergétiques (quelques centaines de MeV à quelques GeV), le second mécanisme est prépondérant au regard du premier (facteur de l'ordre de 2000). Ces excitations électroniques intenses induisent souvent des réarrangements atomiques dans les solides donnant lieu à de nombreuses modifications comme la création de défauts, le transport atomique ou même des changements de phase. Dans ce premier chapitre, nous commencerons par rappeler quelques définitions concernant le ralentissement. Ensuite, nous décrirons les différents types de l'endommagement induit par les deux processus d'interaction (électronique et nucléaire), et nous rappellerons les deux principaux modèles décrivant la création de la trace latente.

I.1. Définitions

a. Pouvoir d'arrêt:

Quand un ion pénètre dans la matière condensée, son énergie cinétique est progressivement dégradée et son état de charge varie au cours de collisions successives. Pour décrire ces pertes d'énergie, on introduit la notion de pouvoir d'arrêt (stopping power) ; comme l'énergie dissipée par une particule d'énergie E par unité de son parcours dans la cible :

$$S(E) = -\left(\frac{dE}{dx}\right)$$

Exprimée en keV/nm ou en MeV.cm²/g (en divisant par la densité massique ρ).

L'ion incident perd son énergie principalement par deux processus différent :

- Les collisions électroniques (le pouvoir d'arrêt électronique) : $S_e(E)$.
- Les collisions nucléaires (le pouvoir d'arrêt nucléaire) : $S_n(E)$.

et le pouvoir d'arrêt total $S(E)$ peut être considéré comme la somme :

$$S(E) = S_e(E) + S_n(E)$$

b. Parcours:

Le pouvoir d'arrêt permet l'évaluation du parcours L des particules chargées:

$$L = \int_0^E \frac{dE}{\left(-\frac{dE}{dx}\right)}$$

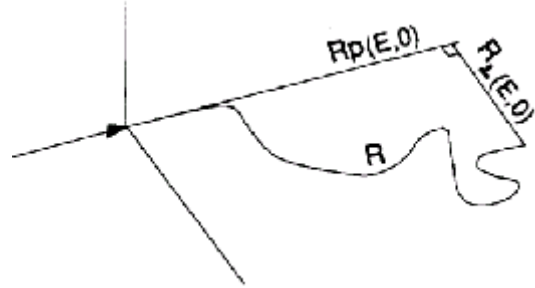


Figure I-1: Parcours réel R , projeté R_p et transversal R_{\perp}

Pour les ions lourds énergétiques (de l'ordre du MeV/uma), le parcours dépend au premier ordre de la vitesse. De ce fait, on peut avoir le même parcours pour différents ions de même vitesse. Le parcours des ions lourds est pratiquement une droite au début du parcours.

c. Flux et fluence:

Le flux est le nombre de particules N qui pénètrent dans la cible par unité de surface et de temps et est exprimé en $N / \text{cm}^2 \cdot \text{s}$.

La fluence est l'intégrale dans le temps du flux d'irradiation. C'est le nombre de particules par unité de surface, envoyées sur la cible durant l'irradiation. Son unité est N/cm^2 .

Nous considérons comme rapides les ions pour lesquels les échanges d'énergie, lors de leur interaction avec la matière, sont largement dominés par les excitations électroniques.

I.2. Diffusion de Rutherford

Dans un solide, une particule chargée perd son énergie cinétique au cours de collisions individuelles (modèle de collisions binaires) entre le projectile et les électrons ou les noyaux de la cible. Ces interactions coulombiennes sont traitées en mécanique classique par la théorie de Rutherford. Le transfert d'énergie T est fonction des masses m_1 , m_2 et des charges q_1 , q_2 respectives de la particule chargée et de la cible, de la vitesse V de la particule chargée et du paramètre d'impact p de la collision (Figure I-1)^[Bal 92]:

$$T = T_{\max} \frac{1}{\left(1 + \left(\frac{2p}{b}\right)^2\right)}$$

$$\text{Où } T_{\max} = 4 \frac{m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} E \quad \text{et} \quad b = \frac{q_1 q_2 (m_1 + m_2) V^{-2}}{2\pi\epsilon_0 m_1 m_2}.$$

b et T_{\max} représentent respectivement la distance minimale d'approche et l'énergie maximale transférée, dans le cas d'une collision frontale.

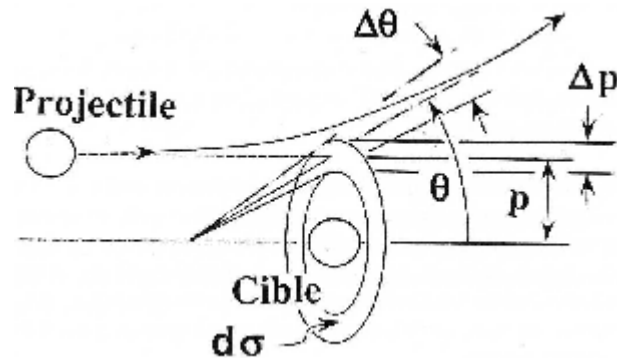


Figure I-2 : Caractérisation classique de l'interaction entre deux corps en fonction du paramètre d'impact p , de l'angle de diffusion θ et de la section efficace différentielle de collision $d\sigma$. Toutes les particules dont le paramètre d'impact est compris dans l'intervalle Δp seront diffusées suivant l'angle compris dans l'intervalle $\Delta\theta$ ^[Bal 92].

La section efficace correspondant à un transfert d'énergie T est donc:

$$d\sigma = 2\pi p dp = \pi \left(\frac{b}{2}\right)^2 T_{\max} \frac{dT}{T^2}$$

La perte d'énergie par unité de parcours peut alors être évaluée en fonction de la densité n des centres diffuseurs dans la cible qui détermine le nombre de collisions :

$$-\frac{dE}{dx} = n \int_{p_{\min}}^{p_{\max}} T d\sigma$$

$$-\frac{dE}{dx} = n \left(\frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \frac{2\pi}{m_2 V^2} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \frac{dT}{T}$$

$$-\frac{dE}{dx} = n \left(\frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \frac{2\pi}{m_2 V^2} \log \frac{T_{\max}}{T_{\min}}$$

La borne inférieure T_{\min} est nécessaire pour éviter la divergence de l'intégrale et se justifie physiquement par les effets d'écran à grande distance.

I.3. Expression des pouvoirs d'arrêt

Les ions, en pénétrant dans la matière, perdent leur énergie par des chocs directs avec les noyaux de la cible, et d'autres par des interactions avec les électrons. Dans le premier cas, le transfert d'énergie conduit à la création directe de défauts (déplacements atomiques) si l'énergie cédée dépasse une certaine valeur seuil (10 à 60 eV). Dans le second cas, la transformation de l'énergie, cédée aux électrons, en défauts va dépendre de la structure électronique et cristalline de la cible, et peut conduire indirectement à la formation de défauts stables (étendus). Nous allons procéder à l'évaluation de la perte d'énergie par ces deux processus d'interaction.

I.3.1. Expression du pouvoir d'arrêt nucléaire

A basse énergie, l'ion n'a pas suffisamment d'énergie pour pénétrer, ce qui ne permet pas le recouvrement des couches électroniques du projectile et celles des atomes cibles. L'interaction ressemble donc à une collision de deux balles de billard (collision

élastique à longue portée). La mécanique classique permet de décrire correctement ce processus de diffusion, en considérant le modèle de collision binaire. Mais, le choix du potentiel d'interaction entre les particules est toutefois délicat sur un large domaine de paramètre d'impact p dépendant de b , la distance minimale d'approche.

- Pour ($b > a_{se}$), l'ion voit l'atome cible neutre, et donc il n'y a pas de transfert d'énergie cinétique,

a_{se} est le rayon de l'effet d'écrantage (screening effect).

- Pour $b < a_{se}$, on considère le potentiel Coulombien $\frac{Z_1 Z_2 e^2}{r}$.

- Lorsque la distance d'approche de l'ion incident et du noyau cible devient plus importante par rapport à a_{se} , on ne peut pas négliger l'effet du nuage électronique (écrantage) et il faut donc introduire des potentiels correctifs. Pour cela, plusieurs potentiels plus réalistes ont été proposés afin de se rapprocher des résultats expérimentaux. Le plus utilisé est celui découlant de la description de Thomas-Fermi de l'atome. Ce modèle consiste à construire une densité électronique autour du noyau, pour éviter l'anisotropie des électrons. Il est donné par :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi(x) \quad , \quad \text{où } (x = r/a_{se})$$

La première partie ($\frac{Z_1 Z_2 e^2}{r}$) correspond à l'interaction avec la charge du noyau. La deuxième partie ($\Phi(x)$) correspond à l'effet d'écran du nuage électronique. Plusieurs expressions approximatives (non analytiques) de a_{se} et $\Phi(x)$ ont été proposées.

Ces potentiels sont utilisés pour décrire l'interaction ion-atome, et exprimer θ en fonction de b . Cette relation (θ en fonction de b) n'est exacte que pour un vrai potentiel coulombien. Pour tous les autres cas, θ (b) est calculée via une estimation du transfert d'impulsion Δp_{\perp} pour les petits angles θ de diffusion, en supposant que la trajectoire de la particule est une droite, approximation valable pour les ions. En choisissant a_{se} et $\Phi(x)$ proposés par Lindhard :

$$a_{se} = \frac{0.8853 a_0}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}}$$

$$\Phi(x) = 1 - \frac{x}{\sqrt{x^2 + 3}}$$

a_0 est le rayon de l'atome de Bohr et $x = r / a_{se}$

Nous obtenons l'expression suivante du pouvoir d'arrêt nucléaire :

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right)_n = 4\pi m a_{se} \left(\frac{m_1}{m_1 + m_2} \right) Z_1 Z_2 e^2 \frac{\ln \varepsilon}{2\varepsilon(1 - \varepsilon^{-1.49})}$$

Où :

$$\varepsilon = \frac{m_2}{(m_1 + m_2)} \frac{E \cdot a_{se}}{Z_1 Z_2 e^2} \quad \text{et} \quad a_{se} = \frac{0.4685}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}} \quad (\text{en } \text{Å}).$$

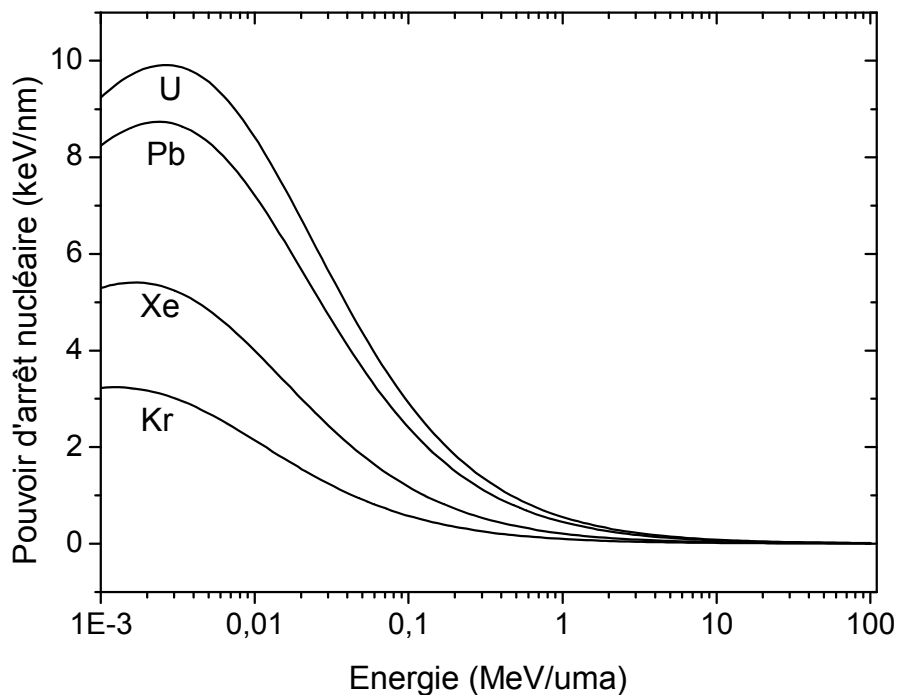


Figure I-3 : Pouvoir d'arrêt nucléaire pour différents ions dans le fer en fonction de l'énergie de l'ion incident. Les courbes ont été déduites du code de calcul SRIM 2003 ^[Bie80].

I.3.2. Défauts induits par les collisions nucléaires

Pour déplacer un atome hors de son emplacement et créer une paire de Franckel, une quantité suffisante d'énergie doit être transférée à cet atome de l'ordre de quelques

dizaines d'eV. L'atome primaire peut déplacer d'autres atomes et induire une cascade de déplacement, si son énergie cinétique est assez grande. Le nombre de défauts N_d que peut créer ce primaire en fonction de son énergie T fut donné initialement par Kinchin et Pease [Kinc55].

$$N_d = \begin{cases} 0 & \text{si } 0 < T < T_d, \\ 1 & \text{si } T_d < T < 2T_d, \\ \frac{T}{2T_d} & \text{si } 2T_d < T. \end{cases}$$

Dans ce dernier cas, Le noyau cible éjecté devient à son tour projectile et emporte suffisamment d'énergie pour qu'une cascade de déplacements puisse apparaître. Ce nombre permet de connaître le nombre moyen d'atomes déplacés $\langle N_d(E_1) \rangle$:

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

Naguib et Kelly [Nag 75] ont étudié les caractéristiques intrinsèques des matériaux isolants permettant de prévoir leur comportement dans le domaine du ralentissement nucléaire. Ils ont observé que lorsque les liaisons chimiques présentent un caractère ionique supérieur à environ 64 %, les matériaux restent cristallins sous irradiation (Figure I-4).

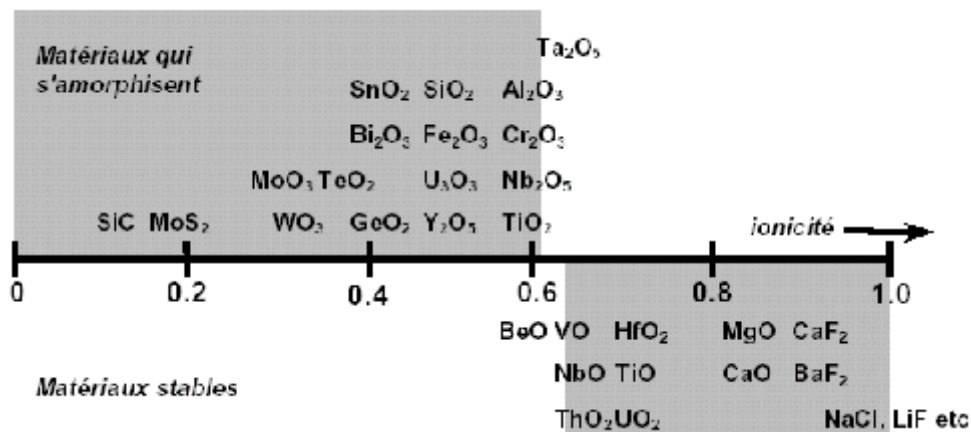


Figure I-4 : Critère d'ionocité pour l'amorphisation d'isolants irradiés aux ions lourds de basse énergie [Nag 75].

I.3.3. Expression du pouvoir d'arrêt électronique

Nous avons jusque là considéré les collisions dont l'énergie cinétique totale reste inchangée avant et après la collision. Mais les électrons, dans la plupart des interactions, ne peuvent pas être considérés comme libres, et en conséquence, l'énergie interne du système noyau électron est modifiée. Si les particules incidentes ont une énergie très supérieure à l'énergie de liaison des électrons atomiques et si les chocs donnent lieu à des transferts d'énergies bien plus grandes que l'énergie liaison, les électrons atomiques peuvent en première approximation être considérés comme libres et indépendants. Ceci revient à traiter les chocs inélastiques comme des chocs élastiques.

Pour l'interaction ion lourd-électron, le transfert d'énergie pour chaque collision individuelle est très faible par rapport à l'énergie de l'ion projectile, à cause de la faible masse des électrons. La trajectoire de l'ion n'est pratiquement pas modifiée.

$$T_{\max} = \frac{4M_1 m_e}{(M_1 + m_e)^2} E_1 \approx 2m_e V^2 \approx \frac{4E_1}{1836}$$

M_1 est la masse l'ion du projectile et m_e est la masse de l'électron.

La perte d'énergie par excitation électronique dépend de la vitesse V de l'ion incident. Deux régimes, fonction de V , sont à distinguer en comparant la vitesse V du projectile à la vitesse orbitale V_e des électrons de la cible au sens de Bohr telle que $V_e = V_0 Z_2^{2/3}$. $V_0 = (e^2 / 4\pi \epsilon_0 h)$ est la vitesse de l'électron dans un atome d'hydrogène (figure I-6).

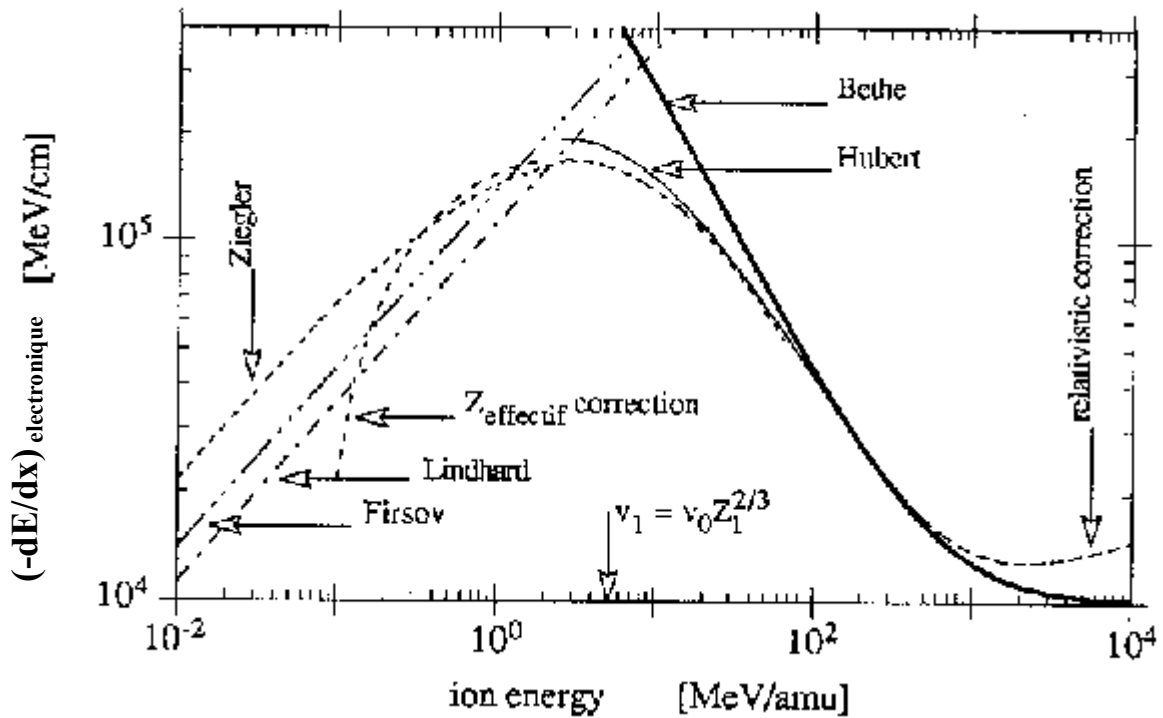


Figure I-6 : Différents calculs du pouvoir d'arrêt électronique des ions Xénon dans une cible d'Aluminium en fonction de l'énergie de l'ion incident ^[Bal 92].

a. Le régime des grandes vitesses

Pour $c > V > V_e$, l'ion incident est complètement dépouillé de ses électrons, où c est la vitesse de la lumière. La charge effective de l'ion incident q_1 est donc $Z_1 e$.

$$\left. -\frac{dE}{dx} \right)_e = n_e \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T \sigma(T) dT$$

n_e est la densité électronique de la cible. $n_e = Z_2 N$, où N est sa densité atomique.

T_{\min} est l'énergie moyenne de première ionisation I des atomes cibles.

On obtient pour le pouvoir d'arrêt électronique la formule suivante :

$$\left. -\frac{dE}{dx} \right)_e = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{m_e V_1^2} N \frac{1}{2} Z_2^2 \ln\left(\frac{2m_e V_1^2}{I}\right)$$

Les collisions avec les électrons de la cible, considérées binaires et coulombiennes à courte portée, correspondent à des grands transferts d'énergie et provoquent l'ionisation des atomes cibles. Dans la formule précédente, nous n'avons pas considéré la contribution des phénomènes d'excitation au pouvoir d'arrêt électronique. Bethe a mené des calculs en prenant en compte les interactions inélastiques qui conduisent à des phénomènes d'excitations (en plus des ionisations). La relation obtenue par Bethe possède une valeur double de la précédente et le potentiel I est remplacé par \hat{I} qui représente l'énergie d'excitation moyenne des électrons dans la cible.

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

Le calcul de \hat{I} est complexe, mais il existe des formules semi-empiriques, comme $\hat{I} \text{ (eV)} = 10 Z_2$, qui donnent une bonne estimation (Figure I-7).

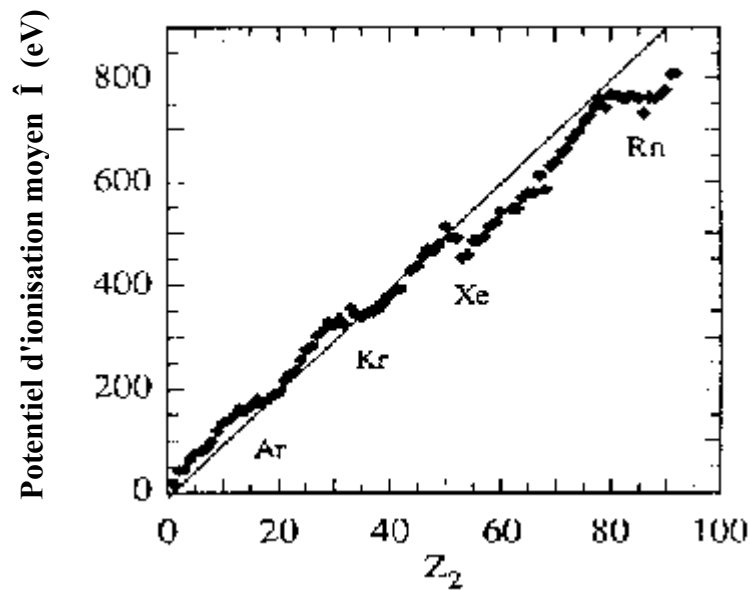


Figure I-7: Le potentiel d'ionisation moyen \hat{I} pour différents atomes. La droite correspond à $\hat{I} = 10 Z_2$ [Bal 92].

Dans cet intervalle, le pouvoir d'arrêt électronique est donc proportionnel à $\frac{\ln E}{E}$. Ce qui explique l'augmentation du pouvoir d'arrêt lorsque la particule est ralentie. On remarque

aussi qu'il est indépendant de la masse du projectile : c'est donc la vitesse incidente de l'ion

et non son énergie qui est le paramètre important : $-\frac{dE}{dx}_e \propto \frac{\ln V^2}{V^2} \approx \frac{1}{V^2}$.

b. Le régime des basses vitesses

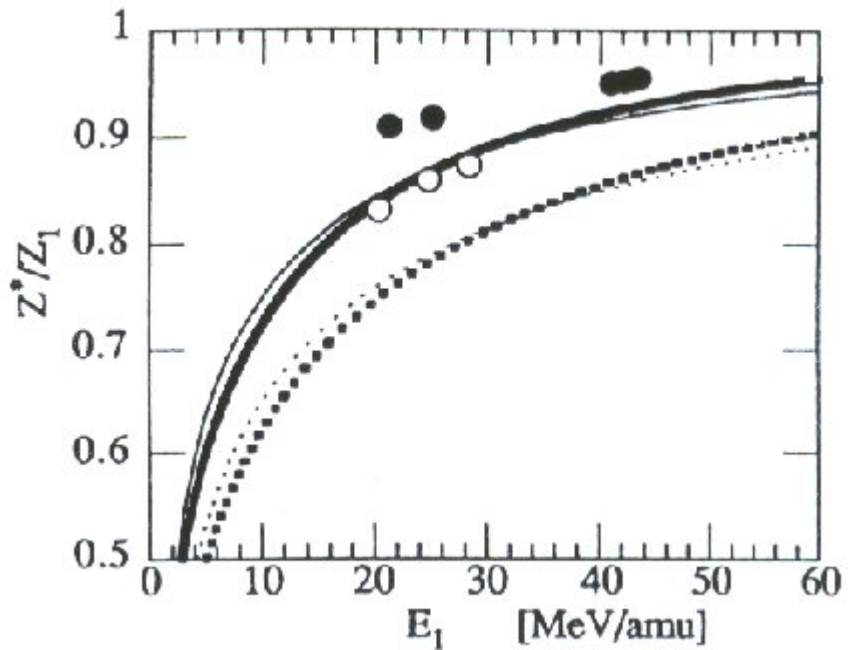
La relation de Bethe a été développée pour des projectiles de grande vitesse afin de permettre un traitement en perturbation. Pour étendre le domaine de validité de la formule de Bethe aux basses vitesses, il faut introduire la charge effective Z_1^* de l'ion. Lorsque V_1 diminue et devient comparable à V_0 , l'ion n'est plus épluché. Sa charge réelle résulte d'une compétition entre les processus de capture électronique et d'ionisation. L'ion atteint une charge d'équilibre Z_1^* qui dépend de la vitesse. Nous pouvons alors évaluer Z_1^* grâce à la formule de Barkas ^[Bar 63] :

$$Z_1^* = Z_1 \left[1 - \exp(-125 \beta Z_1^{-2/3}) \right], \text{ (Voir figure I-8).}$$

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

Figure I-8 : La charge efficace en fonction de l'énergie des ions. Les cercles ouverts correspondent aux ions Pb, tandis que les cercles fermés aux ions de Xe.

Les courbes en traits épais correspondent à la formule de Barkas, et les courbes en traits fins correspondent à l'expression de Hubert (les lignes continues et discontinues sont pour les ions Xe et Pb respectivement). La cible est une plaque d'Aluminium ^[Bal 92].



c. Formule finale

Afin d'étendre le domaine de validité de la formule de Bethe, plusieurs termes correctifs ont été proposés, en plus du terme de la charge effective, la correction de couches profondes vers les basses vitesses et la correction relativiste et de densité pour les hautes vitesses. La formule finale est:

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = 2NZ_2 \left(\frac{q_1 e}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \frac{2\pi}{m_e V^2} \left[\log \frac{2m_e V^2}{\hat{I}} - \beta^2 - \ln\left(\frac{1}{1-\beta^2}\right) - \frac{C}{Z_2} - \delta \right]$$

Avec :

$\beta = V/c$, où c : est la vitesse de la lumière,

δ est la Correction de l'effet de polarisation pour les moyennes et hautes vitesses.

Le terme $(-C/Z_2)$ représente la correction de couches profondes.

(C) est donné par la formule empirique ^[Bar 64] :

$$C = (0.4224\eta^{-2} + 0.0304\eta^{-4} - 0.000381\eta^{-6})10^{-6} I^2 + (3.8502\eta^{-2} - 0.1668\eta^{-4} + 0.001579\eta^{-6})10^{-9} I^3$$

$$\eta = \frac{\beta}{\sqrt{1-\beta^2}}$$

I est le potentiel moyen d'ionisation.

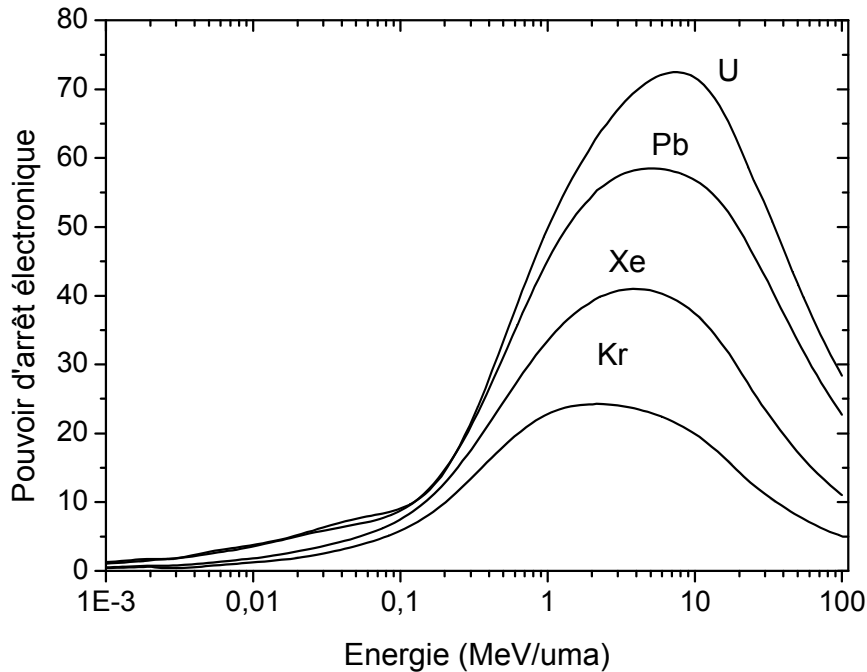


Figure I-9 : Pouvoir d'arrêt électronique pour différents ions dans le fer en fonction de l'énergie de l'ion incident. Les courbes ont été déduites du code de calcul SRIM 2003 ^[Bie 80].

I.3.4. Défauts induits par excitations électroniques

Le dépôt d'énergie par des excitations électroniques, localisé le long du parcours de l'ion, conduit à l'éjection de nombreux électrons et à une ionisation multiple des atomes cibles. La description de ce qui suit reste controversée. Différents modèles et mécanismes ont été proposés et seront exposés dans la partie suivante. Après relaxation de cette énergie, des défauts stables appelés traces latentes peuvent être observés dans la plupart des matériaux isolants au delà d'un seuil de pouvoir d'arrêt électronique. Ces traces sont formées d'une zone cylindrique le long du parcours des ions ; fortement endommagée, de plus faible densité atomique et entourée d'une couronne moins affectée.

I.4. L'importance relative des mécanismes de perte d'énergie

Il est difficile d'évaluer quantitativement l'importance relative des deux processus de ralentissement. Cependant, on peut affirmer que dans le domaine des basses vitesses, les chocs nucléaires dominent. Tandis qu'aux grandes vitesses, le ralentissement se fait principalement par les chocs électroniques. Ainsi un projectile rapide au début de son parcours dans la cible subira principalement des collisions inélastiques, tandis que vers la fin de son parcours, il sera ralenti essentiellement par les collisions élastiques.

Des calculs approximatifs permettent la comparaison entre les deux pouvoirs d'arrêt (figure I-10). Leur rapport est évalué, à hautes énergies, comme suit:

$$(dE/dx)_e / (dE/dx)_n \approx 2000.$$

C'est-à-dire que le pouvoir d'arrêt nucléaire est négligeable devant le pouvoir d'arrêt électronique.

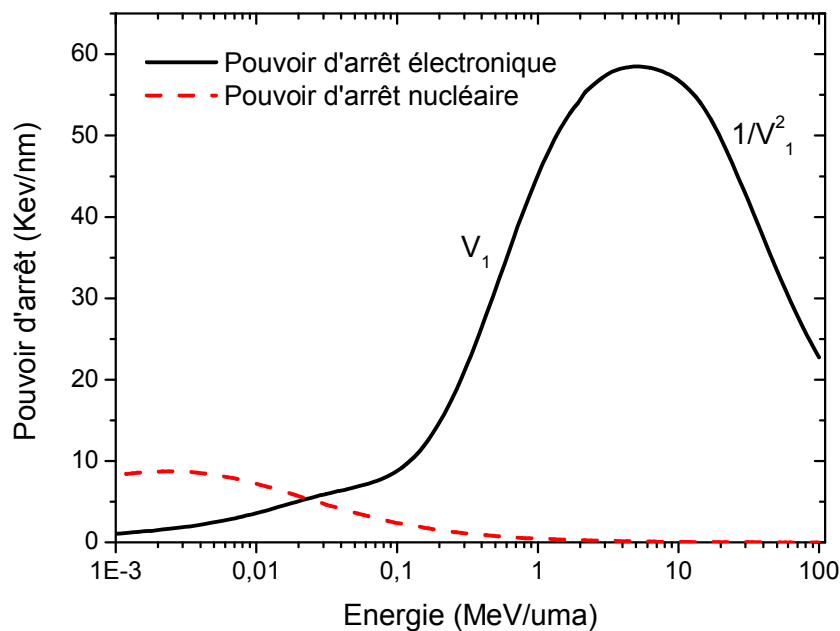


Figure I-10 : Pouvoir d'arrêt nucléaire et électronique d'un ion Plomb dans le fer en fonction de l'énergie (d'après le code de calcul SRIM 2003^[Bie 80]).

I.5. Parcours des ions:

La figure I-11 montre clairement que le parcours est plus important dans le cas des ions légers. Ceci est dû au fait que l'énergie transmise aux atomes cibles, dans chaque interaction individuelle, est plus importante pour les projectiles lourds. Donc, plus l'ion est lourd, plus le parcours diminue.

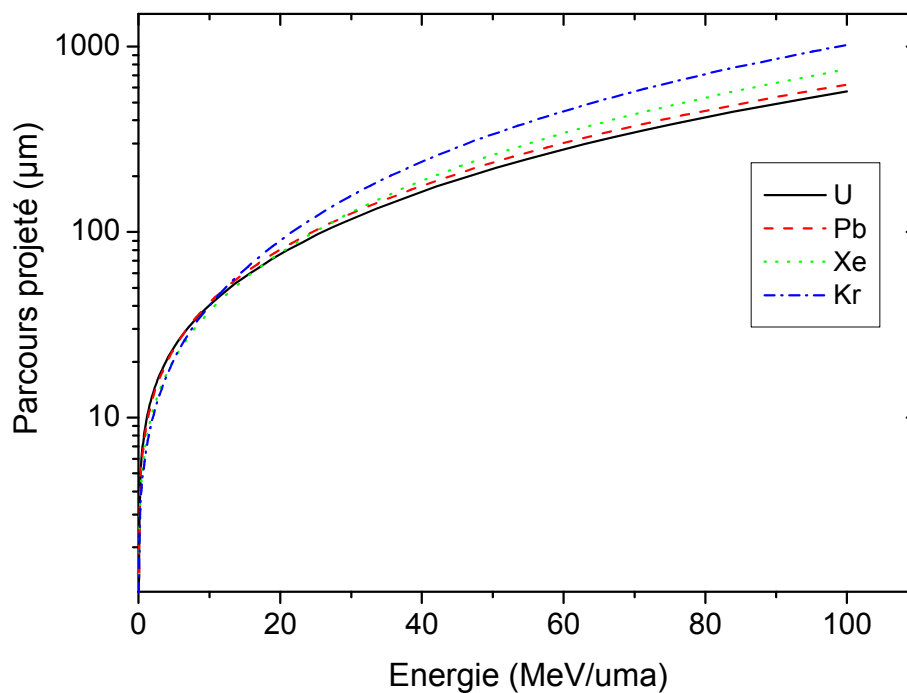


Figure I-11 : Parcours de divers ions dans le fer en fonction de l'énergie (d'après le code de calcul SRIM 2003^[Bie 80]).

I.6. Processus de formation de la trace latente

Dans cette partie, nous discuterons les processus d'endommagements liés aux très forts dépôts d'énergie par excitation électronique. Le ralentissement d'un ion lourd d'énergie supérieure à quelques MeV/uma se fait essentiellement par excitation des électrons de la cible. Cette perte d'énergie linéique peut atteindre des valeurs extrêmement importantes: plusieurs dizaines de keV par nanomètre de parcours de l'ion. L'ion incident va ainsi céder plusieurs centaines d'eV à environ quatre atomes de la cible chaque fois qu'il

parcourt une distance interatomique. Ces atomes vont être plusieurs fois ionisés. Des expériences et des calculs montrent que pour un ion krypton de 35 MeV/uma, la probabilité d'ioniser plus de deux fois un même atome d'argon est supérieure à 50%. Ainsi 10^{-16} seconde après le passage d'un ion, un nombre important d'atomes plusieurs fois ionisés sont regroupés dans un cylindre d'environ un nanomètre, et plusieurs électrons sont éjectés de manière plus ou moins isotrope. Les ordres de grandeurs des temps et des dimensions caractéristiques sont donnés dans le tableau I.1.

La connaissance du pouvoir d'arrêt électronique ne permet pas à elle seule d'expliquer les différences de valeurs de rayons de traces observées lors de l'irradiation des oxydes magnétiques ($Y_3Fe_5O_{12}$) avec des ions de même pouvoir d'arrêt électronique et de vitesse différente. Meftah et al. ^[Mef 93] ont montré que le pouvoir d'arrêt n'est pas un paramètre suffisant pour décrire la conversion énergie-défauts stables et qu'un deuxième paramètre, qui est la vitesse, joue un rôle important. Ils ont montré que l'extension radiale du dépôt d'énergie augmente avec la vitesse de l'ion. Donc, au fur et à mesure que la vitesse augmente, le dépôt d'énergie devient moins localisé, et par conséquent la trace ainsi créée est de diamètre moins grand. C'est *l'effet de la vitesse*.

Waligorski et al ^[Wal 86] ont proposé une expression de la dose en tenant compte de l'énergie déposée sur les électrons primaires et secondaires (électrons δ) émis le long du passage de l'ion. Cette dose varie approximativement en $1/r^2$ (figure I-12).

Temps Caractéristiques	Durée de l'interaction ion-atome	10^{-17} s
	Retour des électrons sous l'action du champ électrique créé par les atomes ionisés	10^{-14} s
	Equipartition de l'énergie entre les électrons éjectés	10^{-14} s
	Mouvement d'un ion d'une distance interatomique sous l'effet de la répulsion coulombienne	10^{-13} s
	Vibration atomique	10^{-13} s
	Piégeage des excitons	10^{-11} à 10^{-10} s
	Durée de vie des excitons auto-piégés	10^{-9} à 10^{-3} s
Dimensions caractéristiques	Paramètre d'impact maximum pour les multi-ionisations	1 nm
	Diamètre des traces latentes	5 à 10 nm

Tableau I.1 : Ordres de grandeurs des temps et des dimensions Caractéristiques^[Bou 89].

I.6.1. Mécanisme de conversion; *excitation électronique - défauts stables*

Les matériaux sensibles (ou insensibles) à la radiolyse sont les matériaux qui s'endommagent (ou pas) lorsqu'ils sont soumis à une irradiation peu ionisante (photons (uv, x, γ) ou électrons). Lors de la radiolyse, l'excitation électronique, générée au passage du projectile, est transmise aux atomes du réseau pour créer un défaut ponctuel. Une succession d'évènements individuels peut conduire à la création d'un défaut stable (étendu ou trace latente). Ceci n'est concevable que pour les matériaux non radiolysables.

- Les *matériaux sensibles* à la radiolyse regroupent les isolants à grand gap et à faible énergie de déplacement. C'est le cas des composés ioniques (halogénures alcalins) et des composés covalents (polymères).

- Les *matériaux insensibles* à la radiolyse (non radiolysables), sans gap et à grande énergie de déplacement, regroupent essentiellement, les métaux, les semi conducteurs et de nombreux oxydes.

a. Excitation électronique individuelle : la radiolyse

L'excitation électronique ou radiolyse induit des défauts (ponctuels) lorsque les conditions suivantes sont réunies:

- L'énergie déposée sur les électrons doit être localisée sur quelques sites atomiques de même ordre de grandeur que E_s l'énergie seuil de déplacement d'un atome.
- La durée de l'excitation électronique doit être de l'ordre de grandeur du temps de vibration du réseau (10^{-13} s).
- Les transitions électroniques non radiatives, permettant de transférer l'énergie cinétique à un atome, doivent prévaloir sur les transitions électroniques radiatives.

Dans le cas des métaux où les excitations électroniques sont annihilées en quelques femtosecondes, la création des traces étendues induites par irradiation avec les ions lourds énergétiques n'est observée que pour les hautes valeurs de $(dE/dx)_{ele}$. Là, on a alors affaire à des *phénomènes d'excitation collectifs* qui transmettent l'énergie des électrons vers le réseau atomique, et non plus à des phénomènes individuels.

b. Excitation électronique collective : modèles de formation de traces

La distribution des ionisations ou de l'énergie transportée par les électrons ne suffit malheureusement pas pour décrire les modifications structurales induites dans les matériaux. Pour cela, il faut élaborer un modèle expliquant comment l'énergie est transformée en mouvement d'atomes. Des modèles expliquant les différents aspects du dépôt d'énergie ont été proposés.

I.7. Modèles de création des traces latentes

a. Modèle de l'explosion ionique : (Proposé en 1965 par Fleisher, Price et walker).

Ce modèle ^[Fle 65] sans doute le plus souvent invoqué, est basé sur le fait que le passage d'un ion laisse dans son sillage une zone dans laquelle les ions sont plusieurs fois ionisés. Cette accumulation de charge positive entraîne une forte répulsion coulombienne entre les ions qui peut conduire à une véritable explosion locale. Ce champ électrique va,

par ailleurs, créer une force de rappel pour les électrons éjectés. Pour aboutir à une explosion, il faut que le nombre d'électrons éjectés soit suffisant pour que la force de répulsion dépasse un certain seuil fonction des constantes élastiques du matériau et que, de plus, les ions restent chargés suffisamment longtemps pour que les déplacements atomiques aient lieu. Pour cela, le nombre d'électrons libres et leur mobilité ne doivent pas être trop importants. C'est pourquoi, ce modèle a été développé pour les cristaux isolants. Le principe de ce modèle est schématisé sur la figure I-12.

b- Modèle de la pointe thermique : (Proposé en 1923 par Desauer et amélioré par la suite)

Dans les métaux, Seitz et Koehler ^[Sei 56] ont développé le modèle de la pointe thermique ^[Desa23] basé sur le transfert d'énergie des électrons vers le réseau atomique par interaction électrons-électrons et électrons-atomes. Ce transfert d'énergie entraîne une augmentation de température suivie d'une trempe ultra rapide avec possibilité de changement de phase sur le parcours de l'ion. Kaganov et al ^[Kag 56] ont proposé un développement analytique de ce modèle. Ils ont montré que, lorsque les systèmes électroniques et atomiques sont hors équilibre, l'interaction electron-phonon prend la forme $g(T_e - T_a)$, où g est la constante de couplage électron-phonon, T_e et T_a sont les températures du systèmes électroniques et atomiques respectivement. En appliquant cette formulation aux métaux nobles, où la constante de couplage g est faible, Lifshitz et al. ^[Lif 60] ont calculé que l'énergie transmise par des fragments de fission de l'uranium induit une augmentation de température de quelques dizaines de degrés Kelvin. Ils ont déduit que la pointe thermique ne pouvait expliquer la création de défauts dans les métaux nobles irradiés. Le principe de ce modèle est schématisé sur la figure I-12.

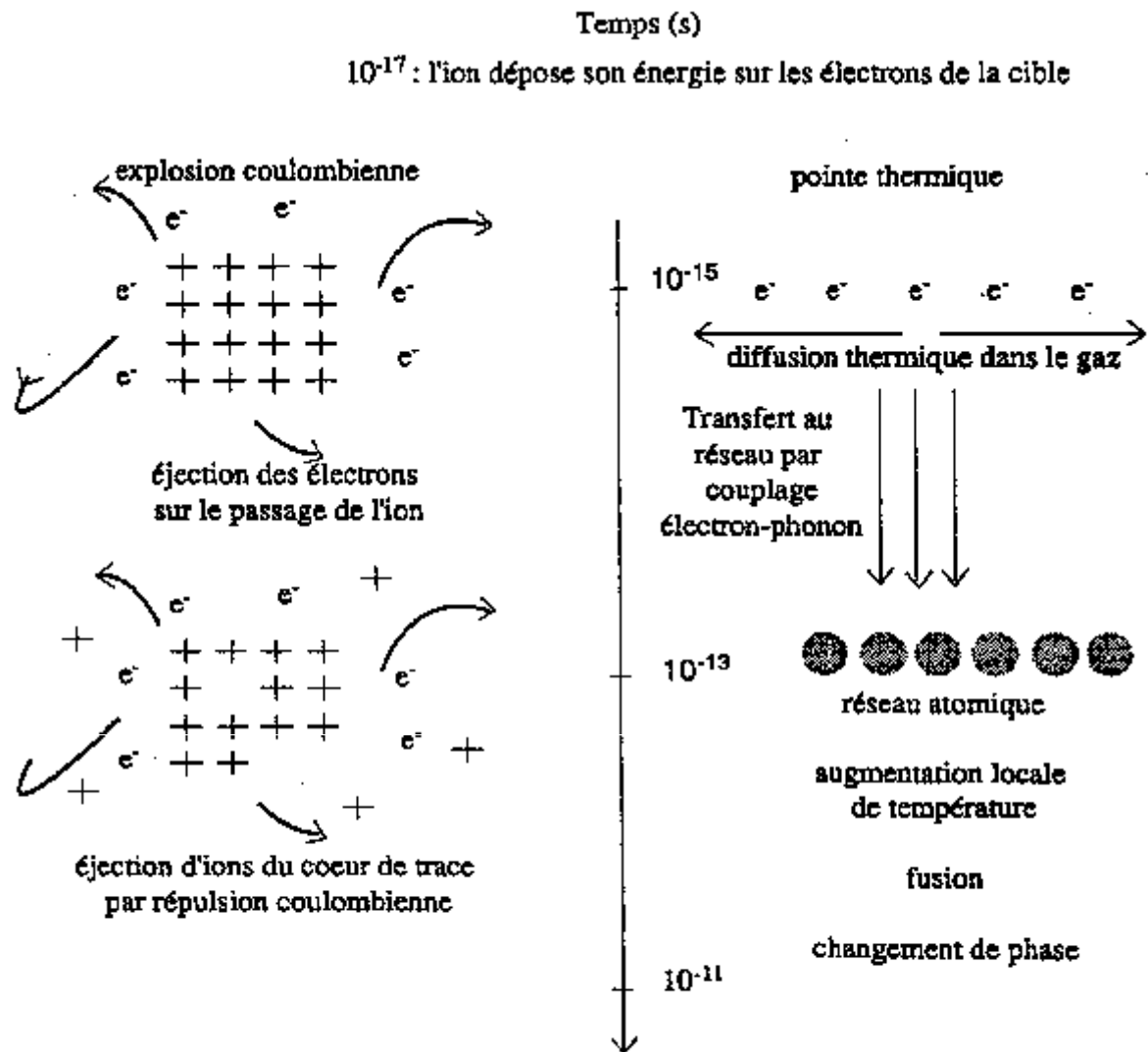


Figure I-12 : Le principe des deux modèles : le modèle de l'explosion ionique et le modèle de la pointe thermique.

CHAPITRE II

L'effet de l'irradiation aux ions sur les matériaux massifs et multicouches

Dans ce chapitre, nous allons d'abord rappeler les différents résultats obtenus, sur l'endommagement des matériaux massifs, isolants et métalliques, irradiés par les ions lourds rapides. Ensuite, nous ferons un état de connaissances sur le transport atomique à l'interface des multicouches induit par collisions nucléaires et les différents modèles développés afin de l'expliquer. Puis, nous passerons aux résultats très récents du mélange à l'interface des multicouches dans le régime des pertes d'énergie électroniques.

II.1. Défauts induits dans les isolants (oxydes) :

II.1.1. Détermination de la section efficace d'endommagement et le rayon de traces

Les isolants et en particulier les isolants magnétiques ont fait l'objet d'une étude intensive par les ions lourds de haute énergie du grand accélérateur national d'ions lourds (GANIL, Caen, France) dans le but de caractériser les défauts induits par excitation électronique collective, de comprendre les mécanismes d'endommagement et d'induire de nouvelles propriétés physiques. Des zones amorphes sous forme cylindrique, appelées traces latentes, ont été observées dans de nombreux matériaux. Plusieurs méthodes de caractérisation ont été utilisées pour la description de ces endommagements : la spectrométrie Mössbauer, la magnétométrie à échantillon vibrant et la microscopie électronique haute et moyenne résolution.

Lorsque l'endommagement mesuré par Rétrodiffusion de Rutherford en canalisation, la spectrométrie Mössbauer... présente une évolution exponentielle suivie d'une saturation, on peut tirer la section efficace d'endommagement en utilisant la loi de Poisson.

Il a été trouvé que le rayon R de la trace latente déterminé par la microscopie électronique à haute résolution est directement corrélé à la section efficace d'endommagement A déduite par RBS-C ou par spectrométrie Mössbauer à travers la relation $A = \pi R^2$ (cercle). Ce qui revient à considérer que le dépôt d'énergie radial est isotrope. La détermination de la section efficace d'endommagement permet donc la détermination du rayon de trace.

II.1.2. Saturation de l'efficacité d'endommagement et morphologie des traces

En utilisant l'attaque chimique, combinée avec les observations de microscopie électronique moyenne et haute résolution, Studer et al.^[Stu 91] ont proposé une description de la morphologie de ces traces latentes créées dans le sillage des ions incidents en fonction du dépôt d'énergie électronique. Les expériences ont été effectuées sur le grenat ferrimagnétique $Y_3Fe_5O_{12}$ et l'hexaferrite de baryum $BaFe_{12}O_{19}$ pour des valeurs de perte d'énergie comprises entre 6 et 45 keV/nm. Les résultats obtenus en microscopie électronique permettent de distinguer cinq domaines de pouvoir d'arrêt électronique (figure II-1).

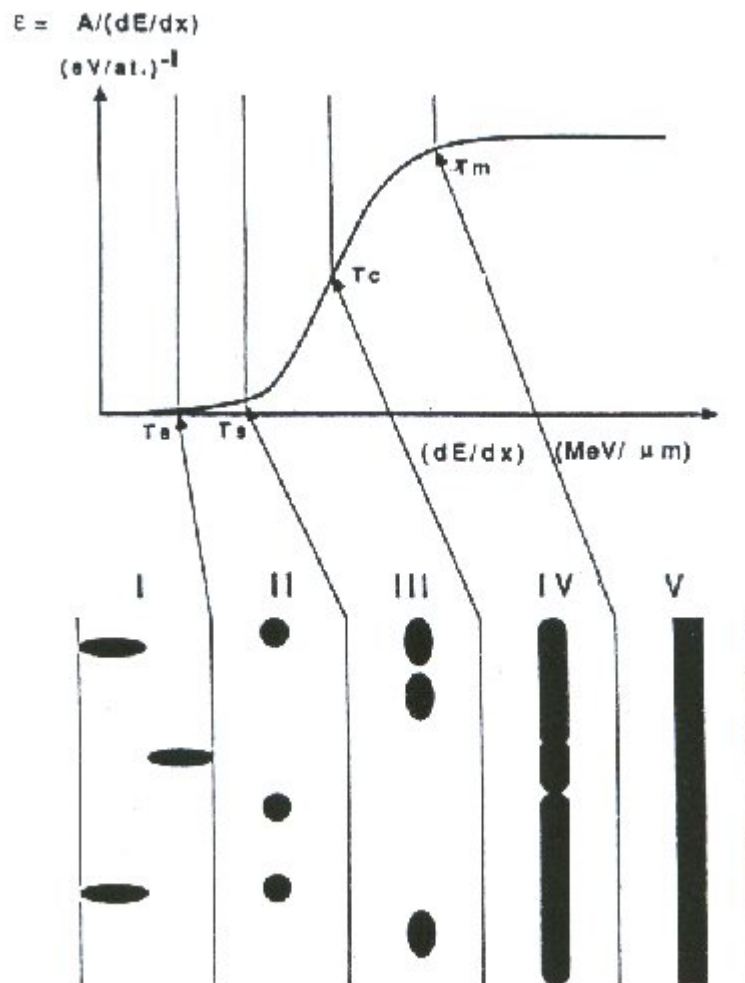


Figure II-1 : Haut de la figure : Variation de l'efficacité d'endommagement ($A/(dE/dx)$) en fonction du dépôt d'énergie électronique dans $Y_3Fe_5O_{12}$.

Bas de la figure : Morphologie des défauts en fonction du dépôt d'énergie électronique ^[Stu 91]

- Zone I* : Pour $dE/dx < T_e$ le dommage est induit uniquement par chocs nucléaires.
- Zone II* : Pour $T_e < dE/dx < T_s$, le dommage par dE/dx devient supérieur à celui des chocs nucléaires. Des défauts sphériques (diamètre 3nm) sont observables.
- Zone III* : Pour $T_s < dE/dx < T_c$, c'est la région de transition dans laquelle les défauts sphériques deviennent des défauts cylindriques discontinus (diamètre 3nm).
- Zone IV* : Pour $T_c < dE/dx < T_m$, les traces latentes sont en forme de cylindre. T_c est le seuil d'attaque chimique.
- Zone V* : $T_m < dE/dx$, le dommage est cylindrique et continu.

Les valeurs de T_e , T_s , T_c et T_m sont spécifiques à chaque type de matériau. Dans le cas de $Y_3Fe_5O_{12}$, $T_s = 8$ keV/nm, $T_c = 15$ keV/nm, $T_m = 22$ keV/nm. Dans cette description, seule la valeur de T_e reste non déterminée. En effet, les sections efficaces d'endommagement dans cette zone de faible dE/dx sont très petites. La détermination expérimentale de T_e nécessiterait un temps de faisceau important.

En utilisant le modèle de Dartyge et Sigmund ^[Dar 85], basé sur les fluctuations du taux d'ionisation associé à deux irradiations (alpha de 2 MeV et argon de 510 MeV), Meftah et al. ^[Mef 93a] ont déterminé par extrapolation la valeur de T_e . Pour le $Y_3Fe_5O_{12}$, cette valeur est égale à (4.5 ± 1.0) keV/nm. Elle était trois fois plus petite que T_c ; seuil d'apparition de l'attaque chimique. Ce résultat a montré que l'attaque chimique n'est pas un bon critère pour dire qu'un matériau est sensible à la création de dommage par dépôt d'énergie électronique.

II.1.3. L'effet de vitesse et la dépendance du rayon de trace en pouvoir d'arrêt électronique

Pour un même dE/dx , l'efficacité d'endommagement est plus grande avec des ions de faible vitesse qu'avec des ions de grande vitesse. Meftah et al. ^{[Mef 93]b} ont montré que le pouvoir d'arrêt ne peut être le seul paramètre dans la création de défauts et que la vitesse doit être prise en compte.

La section efficace d'amorphisation (donc le rayon) dans les matériaux non radiolysables dépend de la valeur du dE/dx et de sa distribution radiale (figures II-2 et II-3).

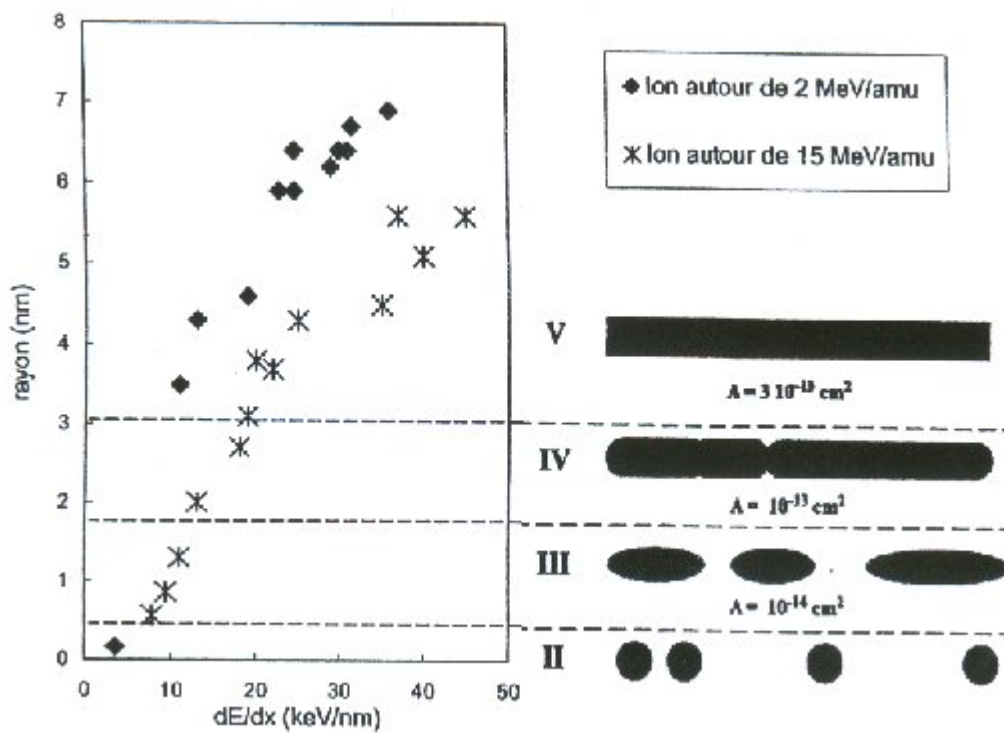
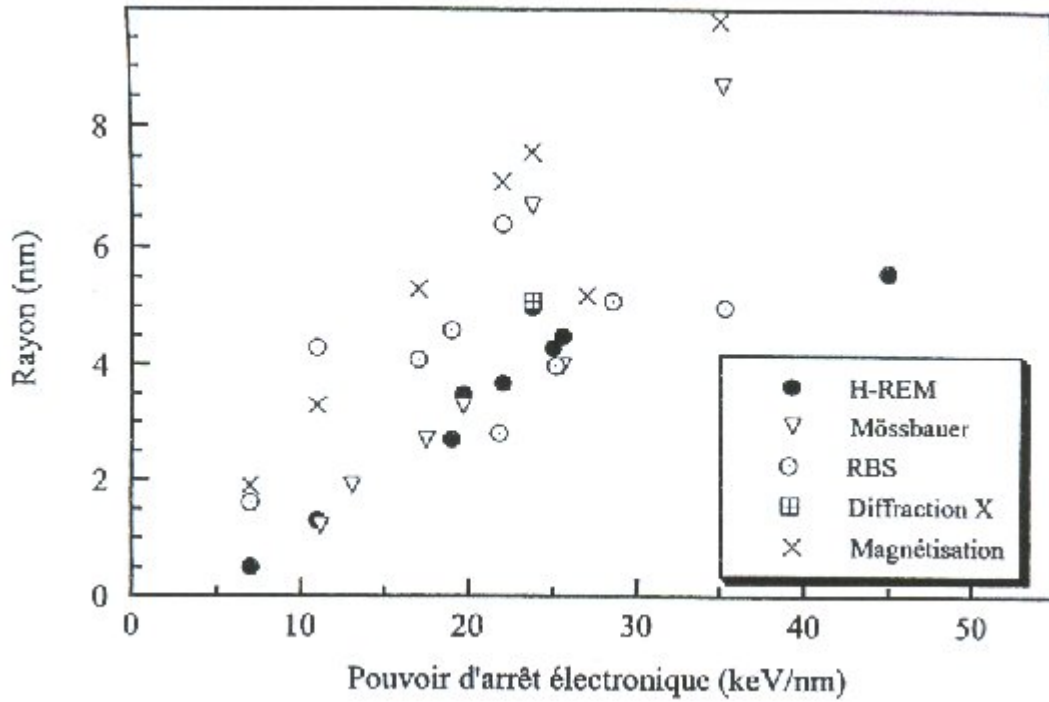


Figure II-2 : Haut : Rayons de trace dans le $Y_3Fe_5O_{12}$ déterminés par différentes techniques après irradiation aux ions lourds.

Bas : Rayons de trace pour deux vitesses différentes dans le $Y_3Fe_5O_{12}$ et morphologie des traces correspondantes (A représente la section efficace mesurée)^{[Mef 93]b}

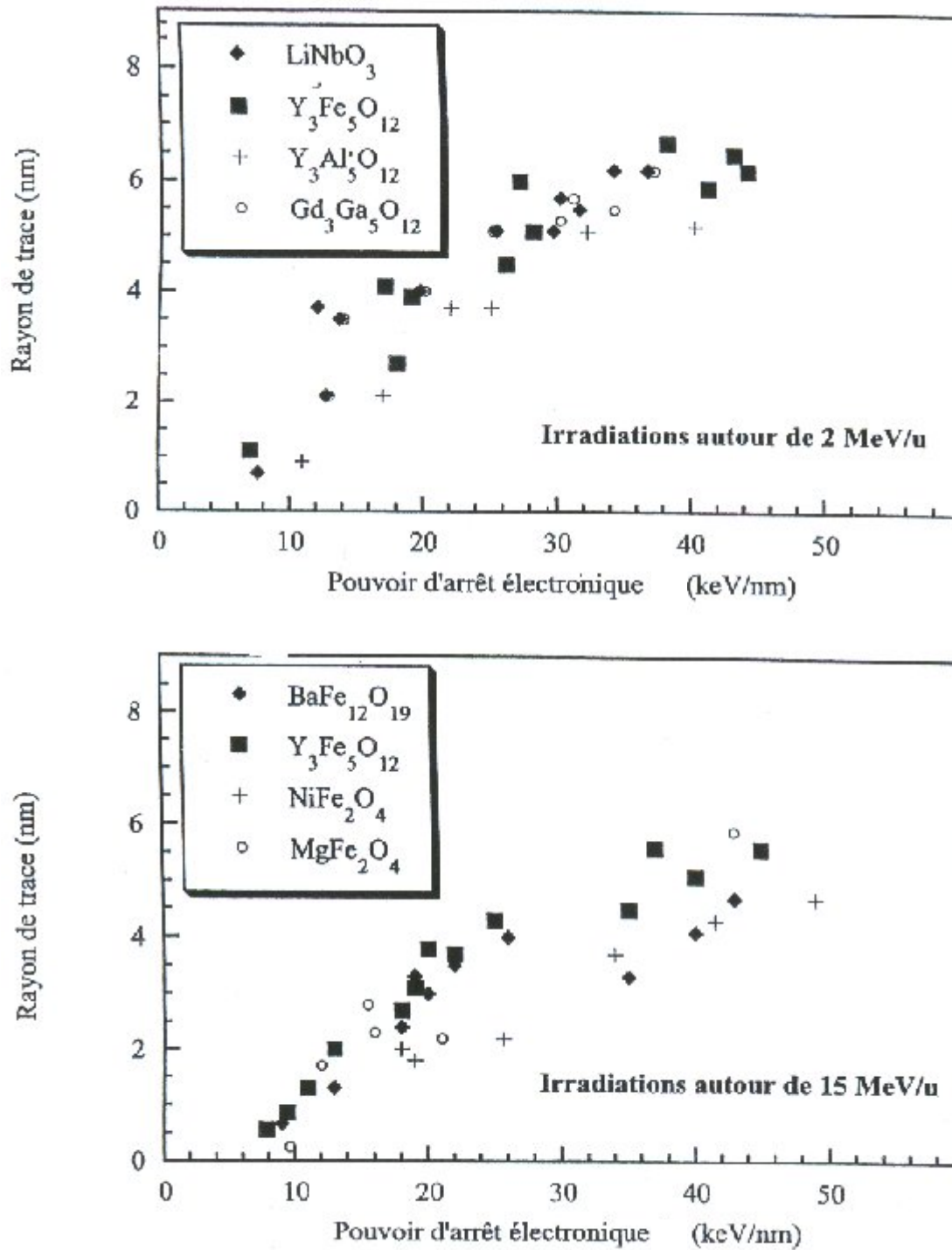


Figure II-3: Rayons des traces latentes pour deux vitesses différentes (2 MeV/uma et 15 MeV/uma) dans divers oxydes. Y₃Fe₅O₁₂^[Mef 93], LiNbO₃^[Can 96], Y₃Al₅O₁₂^[Mef 97], Gd₃Ga₅O₁₂^[Mef 98], BaFe₁₂O₁₉^[Stu 91], NiFe₂O₄ et MgFe₂O₄^[Tou 94]

II.2. Défauts induits dans les métaux purs

II.2.1. Résultats expérimentaux :

Une large étude a été menée par l'équipe française (Dunlop et ses collaborateurs) en vue d'étudier l'endommagement induit dans les matériaux métalliques (massifs) irradiés dans le régime des pertes d'énergie électroniques. Il a été mis en évidence que les forts dépôts d'énergie sur les électrons des matériaux métalliques peuvent induire des modifications structurales comme : la création de défauts ponctuels [Dun 89, 94], transformation de phase [Aud 90] et [Bar 92], et même la création de traces latentes [Dam 93 a] et [Bar 91]. Ces défauts ont été toujours déterminés via les mesures in situ de la résistance. L'augmentation de la résistivité électrique ($\Delta\rho$) par ions/cm² est proportionnelle à la création de défauts. L'efficacité d'endommagement $\xi = \Delta\rho / (\sigma_n \rho_f)$ où σ_n est la section efficace d'endommagement nucléaire et ρ_f la résistivité d'une paire de Frenkel, est tracée en fonction du pouvoir d'arrêt électronique S_e dans les métaux purs suivants : Ni [Iwa 88], Ti [Dun 93], Fe [Dun 94], Ag [Iwa 92] et [Dun 93], Bi [Duf 93] (figure II-4).

Les principaux résultats dans les métaux purs sont :

i. Dans certains métaux comme (Ag, Cu, W...), l'endommagement mesuré est égal à celui induit par les collisions nucléaires, c'est-à-dire que l'énergie déposée sur les électrons est transportée loin par les électrons de conduction [Iwa 87] et [Duf 92].

ii. Dans d'autres métaux comme (Ni, Nb, Pd, Pt...), le dépôt d'énergie sur les électrons induit une recombinaison des défauts créée par les collisions nucléaires. Ce qui est traduit par une diminution de l'efficacité d'endommagement [Iwa 87] et [Duf 92].

iii. Dans des métaux comme (Fe, Bi, Ti, Co, Zr [Leg 92] ...), le dépôt sur les électrons est capable d'introduire des endommagements. Par exemple : dans le cas du Ti, l'endommagement est très efficace au-delà d'un faible seuil en pouvoir d'arrêt électronique (8 keV/nm) [Dun 93]. En effet, l'endommagement du Ti consiste en la transformation de phase cristalline. Dans le Fe, l'endommagement consiste en la création de défauts ponctuels isolés au-delà d'un seuil de 40 keV/nm [Dun 94]. La figure II-4 montre l'efficacité d'endommagement en fonction du pouvoir d'arrêt électronique pour différents métaux.

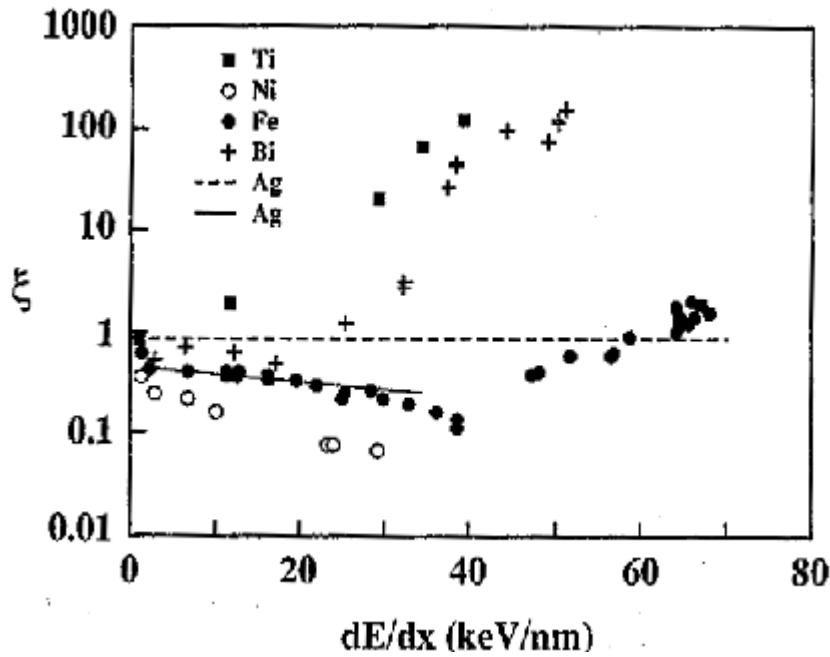


Figure II-4 : L'efficacité d'endommagement tracée en fonction du pouvoir d'arrêt électronique pour différents métaux ^[Tou 95].

II.2.2. Etudes théoriques :

En parallèle de cette étude expérimentale, M. Toulemonde et Ch. Dufour ont développé un code numérique basé sur le modèle de la pointe thermique inélastique qui permet de calculer les températures, atomiques et électroniques, atteintes après le passage de l'ion incident (voir chapitre III). Ce modèle a été appliqué par Wang et al. ^[Wan 94] sur différents métaux : Fe, Ti, Zr, Co, Al, Cu, Nb, Ag, Be, ... en utilisant un seul paramètre libre z : le nombre d'électron de valence inclus dans l'expression du facteur du couplage électron-phonon suivante :

$$g = \frac{\pi^4 (k_B n_e s)^2}{18 K_e (T_e)}, \quad \text{où } n_e = z n_a,$$

n_a : La densité atomique.

$K_e (T_e)$: La conductivité thermique électronique.

k_B : La constante Boltzmann.

n_e : Le nombre d'électrons de valence.

s : La vitesse du son dans le métal liée à la température de Debye T_D et la

densité atomique n_a par :
$$s = \frac{k_B T_D}{\hbar (6\pi^2 n_a)^{1/3}}.$$

Pour un choix de $z = 2$, les valeurs seuils Se_s de la création de défaut ont été calculées. Ces résultats sont en bon accord avec les résultats expérimentaux (voir le tableau II.1).

Metal	g ($\times 10^{11}$) ($W\ cm^{-3}\ K^{-1}$)	$E_{incidente}$ ($MeV\ amu^{-1}$)	Se_s (calculé) (keV/nm)	Se_s (mesuré) (keV/nm)
Ti	92.8	3-20	11-14	< 15 [Dun 93]
Fe	49.8	4-20	54-62	~ 40 [Dun 93]
Co	34.5	5-20	28-34	30- 40 [Dun 93]
Zr	35.0	5-20	27.5-31	25-35 [Dun 93]
Bi	8.20	7-30	11-13	17-24 [Duf 93]

Tableau II.1 : Comparaison entre les valeurs seuils Se_s , calculées et mesurées, de création de traces

Pour la même valeur de z , les calculs suggèrent que les métaux : Al, Cu, Nb et Ag sont insensibles à Se (voir le tableau II.1). Dans le cas de Be, Ga et Ni, les calculs montrent qu'ils doivent être sensibles à Se au-delà des valeurs seuils suivantes 11, 5 et 49 keV/nm respectivement. Par contre, le Mg ne doit pas être sensible. La figure II-5 reporte les rayons de la phase liquide calculés et expérimentaux pour différentes valeurs d'énergie en fonction du pouvoir d'arrêt électronique Se , pour $z = 2$.

Cette étude aboutit à la conclusion que la sensibilité d'un métal aux excitations électroniques dépend de :

- La température de fusion T_m : Plus la température de fusion est faible plus le matériau est sensible aux Se.
- Le couplage électron-phonon g , proportionnel à T_D^2 , z^2 et $1/K_e$. Plus g est grand, plus le métal est plus sensible à Se.

En général, les résultats obtenus dans le cadre du modèle de la pointe thermique inélastique sont en bon accord avec les résultats expérimentaux et représentent un bon moyen pour prédire la sensibilité des matériaux aux excitations électroniques.

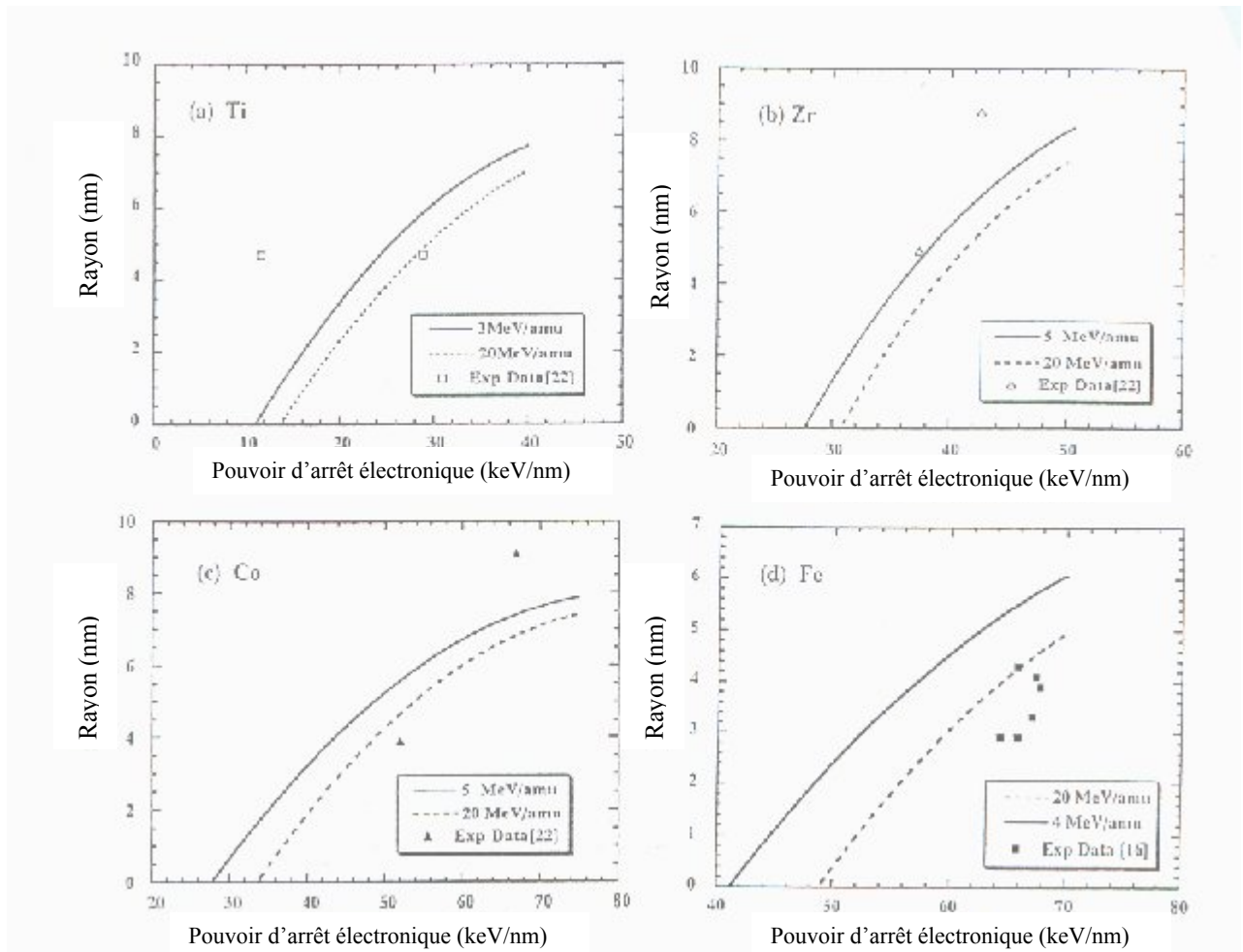


Figure II. 5 : rayons de la phase liquide en fonction du pouvoir d'arrêt électronique S_e pour différentes valeurs d'énergie

Métal	Se (TRIM 91) (keV/nm)	g ($\times 10^{11}$) ($\text{W cm}^{-3} \text{K}^{-1}$)	L'effet de Se suivant le modèle de la pointe thermique	L'effet de Se selon l'expérimental
Be	23	293	oui	-
Mg	20	6.82	Non	-
Al	28	8.14	Non	Non [Iwa 85]
				Se \leq 15 keV/nm
Ti	42	92.8	Oui	Oui [Dam 93 b]
V	52	66.4	Oui	-
Cr	63	94.0	Oui	-
Mn	63	444	Oui	-
Fe	70	49.8	Oui	Oui [Dun 93]
Co	75	34.5	Oui	Oui [Dam 93 b]
Ni	77	40.5	Oui	Non [Dun 91, 93]
				Se* \leq 67 keV/nm
Cu	73	4.94	Non	Non [Dun 93]
				Se* \leq 65 keV/nm
Ga	46	19.6	Oui	Oui [Pau 89]
Zr	48	35.0	Oui	Oui [Dam 93 b]
Nb	63	15.0	Non	Non [Dun 93]
				Se* \leq 62 keV/nm
Pd	81	13.9	Oui	Non [Dun 91]
				Se* \leq 75 keV/nm
Ag	70	1.26	Non	Non [Dun 91, 93]
				Se* \leq 68 keV/nm
Sn	45	3.69	Oui	-
W	93	12.4	Non	Non [Dun 91]
				Se* \leq 80 keV/nm
Pt	109	10.03	Non	Non [Dun 93]
				Se* \leq 90 keV/nm
Au	99	0.91	Non	-
Pb	55	1.56	Non	-
Bi	50	8.20	Oui	Oui [Duf 93b]
U	95	12.4	Oui	-

Tableau II.2 : Prédiction de la sensibilité d'un nombre de métaux choisis. Se est la valeur maximale qui peut être atteinte dans l'irradiation. Se* sont les valeurs maximales obtenues expérimentalement.

II.3. Modifications induites dans les multicouches par irradiation aux ions lourds :

Les matériaux sous irradiation aux ions subissent un très grand réarrangement atomique. L'exemple le plus simple de ce phénomène est le mélange atomique (atomic intermixing) et la formation des alliages au niveau des interfaces qui séparent deux matériaux différents. Il y a maintenant plus de 30 années que Lee et al. [Lee 73] et Van-der-weg et al. [Van 74], indépendamment l'un de l'autre, ont trouvé que l'irradiation de la bicouche Pd/Si par les ions P et Ar conduit à un mélange et à la formation d'une silice à l'interface. C'est-à-dire l'irradiation par les ions est susceptible d'initier un processus de transport atomique très efficace même à basse température.

Ensuite plusieurs travaux ont été lancés afin d'expliquer les différents mécanismes de ce transport atomique. Des résumés concernant les résultats de ces études sur les métaux, semi-conducteurs et isolants se trouvent, à titre d'exemple, dans les références suivantes : Cheng et al. [Che 90], Nastasi et al. [Nas 94], Bolse et al. [Bol 94], Kelly et al. [Kel 96].

Comme nous l'avons mentionné précédemment, on distingue deux régimes d'irradiation par les ions lourds : le premier à basse énergie, quelques KeV/u, où la perte d'énergie se fait principalement par collisions nucléaires. Le deuxième, c'est le régime des pertes d'énergie par excitations et ionisations électroniques à hautes énergies (MeV/u). Seulement le premier régime a été considéré jusqu'au début des années 90, c'est-à-dire le mélange induit par collisions nucléaires.

L'effet des ions lourds *rapides* sur le mélange des bi- et multicouches n'a été étudié systématiquement que très récemment.

Nous allons, dans ce chapitre, faire l'état de connaissances sur ce phénomène de transport atomique par irradiation aux ions lourds. Nous commençons d'abord par le régime à basse énergie où nous allons examiner le processus de transport atomique en considérant seulement l'effet balistique et cinétique associés aux collisions du projectile et la cible. Puis nous examinerons l'influence des propriétés du matériau-cible, la chaleur de mélange et l'énergie de cohésion ainsi que l'effet de la température, sur le processus du mélange. Ensuite nous passerons au régime des hautes énergies.

II.3.1. Régime des Basses énergies

A. l'effet balistique :

Lorsqu'un ion de faible énergie (\sim KeV/u) pénètre dans un solide, il est ralenti par le dépôt direct de l'énergie aux atomes de la cible. Ces derniers peuvent être déplacés de leurs

sites et occuper plusieurs autres sites plus loin. Lorsque ce processus a lieu à la limite entre deux matériaux différents, nous assistons à un phénomène de mélange par effet balistique.

A.1. Le mélange par effet balistique : l'approximation de collision de deux corps

La figure II-7 présente la géométrie de la diffusion de l'ion incident dans l'approximation classique de deux corps (two-body collision). Dans ce schéma, un ion de masse M_1 d'énergie d'incidence E_0 pénètre dans un film métallique et heurte un de ses atomes de masse M_2 qui se trouve à l'interface Métal-Substrat. Pour atteindre l'interface, l'ion dans sa pénétration perd une énergie $\Delta E = E_0 - E$. Durant la collision, l'ion d'énergie E transfère une entité d'énergie T à l'atome-cible considéré initialement au repos. L'atome-cible recule dans le repère du laboratoire avec un angle θ . L'énergie transférée est donnée par la relation (II-1) [Zie 85] :

$$T = \frac{(4M_1M_2)}{(M_1 + M_2)^2} E \cos^2 \theta \quad (\text{II-1})$$

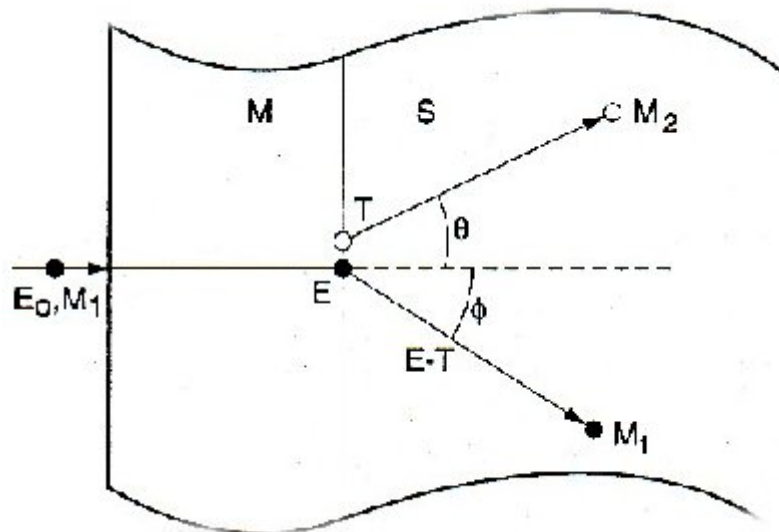


Figure II.6 : La géométrie de la diffusion de l'ion incident dans l'approximation classique de deux corps.

Cette énergie dépend de la masse de l'atome de recul, de la masse et l'énergie de l'ion incident et de la direction du déplacement. Nous voyons aussi que l'énergie transférée est maximale pour $\theta = 0$, c'est-à-dire collision frontale. Le fait que le processus de la collision et le recul est statistique, il est nécessaire de déterminer la probabilité d'un recul avec une énergie entre T et $T+dT$ par unité de fluence (ions/cm²). En utilisant le potentiel d'écrantage de Coulomb ^[Lin 63, 68], la section efficace est donnée par ^[Fel 68] :

$$d\sigma = \frac{\pi^2 Z_1 Z_2 a_{ZBL}}{4T_{\max}^{1/2}} \frac{M_1}{(M_1 + M_2)} T^{-3/2} dT \quad (\text{II-2})$$

Avec : a_{ZBL} est le rayon d'écrantage Zeigler-Biersack-Littmark ^[Zie 85].

Où $a_{ZBL} = \frac{0.8853a_0}{(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})}$, a_0 est le rayon de Bohr égale à 0.0529 nm.

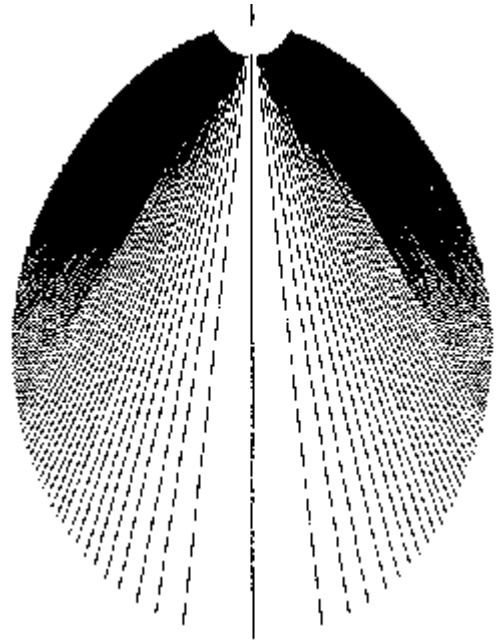
Le tableau II.3 contient les valeurs de T et $d\sigma/dT$ calculées à partir des deux relations précédentes (1) et (2).

θ (°)	T (keV)	$d\sigma/dT$ (x 10 ¹⁹ cm ² keV ⁻¹)	$R_p(T)$ (nm) du Pt dans Si (TRIM)
0	56.5	0.27	32
20	49.89	0.32	29
40	33.15	0.59	23
60	14.12	2.13	14
70	6.61	6.67	10
80	1.70	50.96	5.6
85	0.43	403.00	3.4
89	0.02	5.02 x 10 ⁴	1.2

Tableau II.3

Les résultats de ce tableau montrent bien que les collisions les plus probables sont celles qui se produisent à grands angles de recul menant à de faibles transferts d'énergie. De tels atomes auront un parcours de quelques nm seulement. La distribution des atomes de reculs en fonction de l'angle θ est illustrée dans la figure II.7.

Figure II.7 : Présentation graphique de la distribution des reculs en fonction de l'angle. La longueur des segments correspond à l'énergie de recul relative pour un angle θ donné par rapport à la direction initiale d'incidence ^[Mat 82].



Comme nous l'avons déjà montré, lorsque l'ion incident frappe l'atome d'un métal proche de l'interface Métal-Substrat, une partie de son énergie cinétique est transférée à l'atome. Dans le cas des reculs qui correspondent à des grands transferts d'énergie, l'atome est déplacé loin de son site initial. Ce processus de déplacement par une seule collision entre l'ion incident et l'atome cible, est la forme simple du mélange balistique.

Pour que le mélange par ce processus soit significatif, les atomes reculés doivent traverser le substrat avec un parcours le plus grand possible. Ce parcours est important pour des reculs autour de $\theta \sim 0$, cependant leur probabilité étant très faible. Lorsque θ est relativement grand par rapport à une collision frontale, l'énergie transférée à l'atome cible ainsi que le parcours sont relativement faibles. En plus, la trajectoire de ces atomes ne serait pas directe. Par conséquent, le nombre d'atomes qui contribuent au mélange par le processus de recul serait faible.

A. 2. Le mélange par cascade de déplacement :

En addition au phénomène simple du mélange par recul, d'autres phénomènes balistiques sont possibles durant l'implantation ionique. De multiples déplacements atomiques peuvent avoir lieu par un seul ion incident. Durant ce processus, l'atome initialement déplacé déplace un autre atome et ce dernier à son tour déplace d'autres atomes. La séquence de déplacements atomiques est appelée « cascade de déplacement ». Le fait que ces

déplacements sont de faibles énergies, la direction initiale de l'ion incident est rapidement perdue et le mouvement des atomes dans les séquences des déplacements devient isotropique.

La diffusivité effective dans une cascade de collision est donnée par l'expression suivante^[And 79] :

$$D_{cas}t = \frac{n_d \langle r^2 \rangle}{6},$$

Avec :

$\langle r^2 \rangle$ est la moyenne du carré du parcours des atomes cibles déplacés.

t est le temps de vie de la cascade.

n_d est le nombre de cascades induites par atome.

Pour une dose bien déterminée, n_d est donné par la relation^[Sig 69] : $n_d = \frac{0.4F_D\phi}{E_d N_0}$.

Où : F_D : la densité de l'énergie perdue.

Φ : la dose de l'irradiation.

N_0 : la densité atomique.

E_d : l'énergie minimale nécessaire pour déplacer un atome.

Nous obtenons finalement la formule suivante de la diffusivité effective dans une cascade de collision :

$$D_{cas}t = 0.067 \frac{F_D \langle r^2 \rangle}{N_0 E_d} \phi,$$

La figure II.8 présente les différentes interactions balistiques possibles de l'ion incident dans un solide.

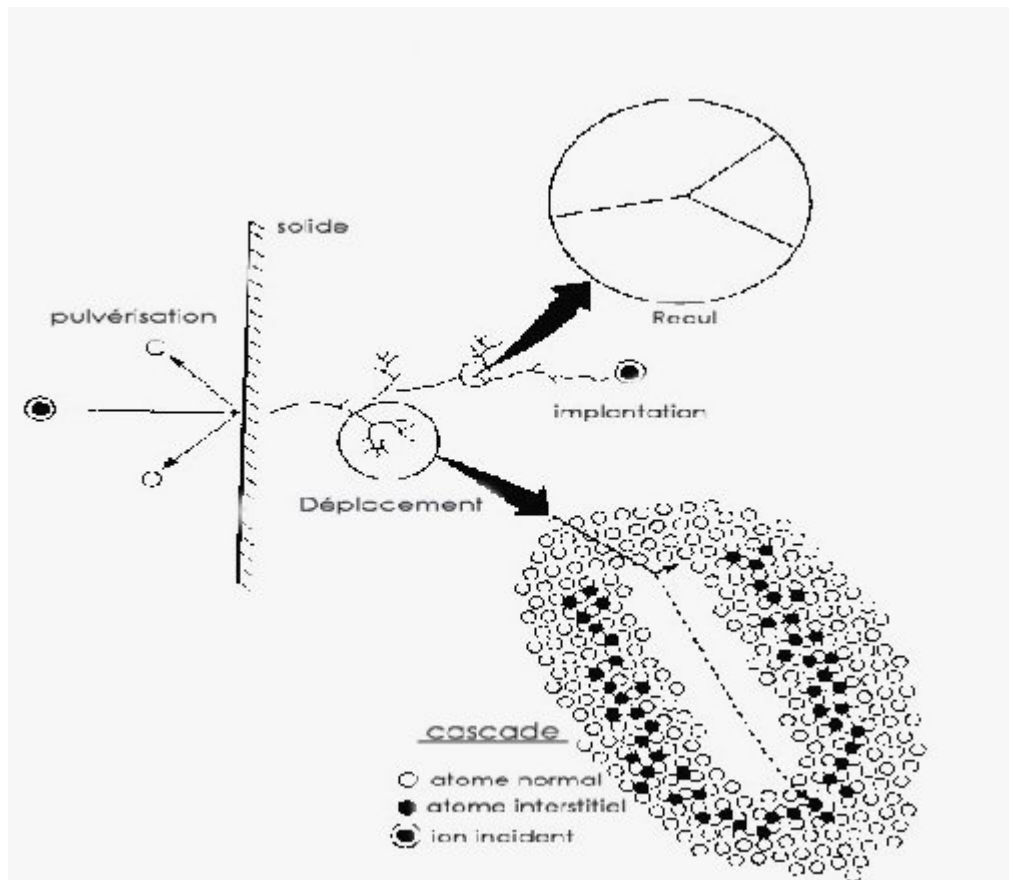


Figure II.8 : Les différentes interactions balistiques d'un ion incident, de basse énergie, dans un solide

B. L'effet thermodynamique sur le mélange :

La concentration atomique $C(x)$ à l'interface de deux métaux A et B, en ne considérant que le gradient de concentration, peut être ajustée à une fonction d'erreur comme suit ^[Nas 94] :

$$C(x) = a \cdot \operatorname{erfc} \left[\frac{(x-b)}{c} \right] \quad (\text{II-3})$$

Où : $a = \frac{c_0}{2}$, c_0 est la concentration initiale avant l'irradiation.

$b = x_0$ pour déterminer le centre du profile.

$c = (4\tilde{D}t)^{1/2}$, \tilde{D} est le coefficient d'interdiffusion chimique.

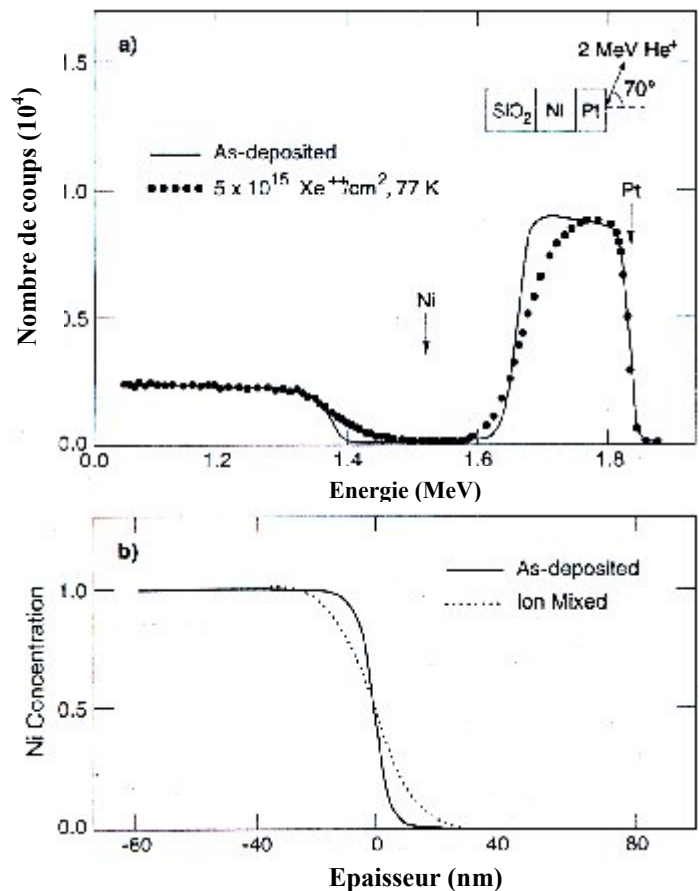
Pour une bicouche A-B, \tilde{D} est donné par :

$$\tilde{D}_{AB} = D_A X_B + D_B X_A \quad (\text{II-4})$$

\tilde{D}_{AB} est le coefficient d'interdiffusion chimique d'une solution idéale due à un gradient de concentration. D_i et X_i sont la diffusivité intrinsèque et la fraction molaire successivement de l'élément i .

La figure II.9.a montre le spectre RBS de la bicouche Pt-Ni avant et après irradiation à la température 77 K. La concentration normalisée en fonction de l'épaisseur pour le Ni est représentée dans la figure II.9.b.

Figure II.9 : Le spectre RBS de la bicouche Pt-Ni avant et après l'irradiation avec des ions de Xe à la température 77K (a), et la concentration du Ni normalisée par l'épaisseur (b).



B. 1. L'effet de la température :

Il existe deux régimes ; à basse température où le taux de mélange ne change pas avec la température du substrat. Au-delà d'une température critique, le taux de mélange devient très sensible à la variation de la température. La figure II.10 illustre le comportement de la bicouche Cr-Si irradiée par des ions Xe d'énergie 300 keV avec une fluence 10^{16} cm^{-2} en fonction de la température. A une température inférieure à la température $\sim 0 \text{ C}^\circ$, la quantité de mélange mesurée est relativement insensible à la température de l'échantillon durant l'irradiation. Cependant lorsque la température monte au delà de 100 C° , le mélange devient très sensible au changement de la température.

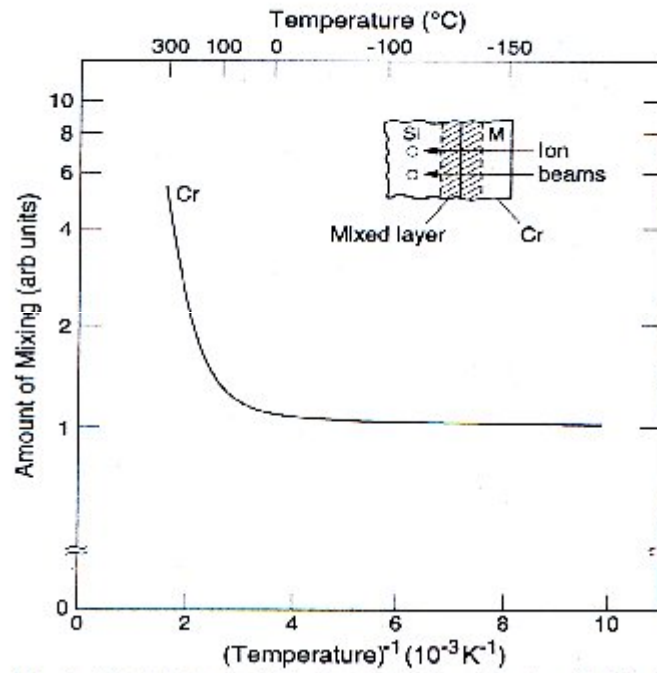


Figure II.10: La quantité de mélange du Si dans le Cr dans la bicouche Cr-Si en fonction de l'inverse de la température.

B. 2. L'effet de la chaleur de mélange :

L'effet des forces chimiques, négligé dans les modèles balistiques, joue un rôle très important dans le mélange par irradiation aux ions lourds lors de la formation des alliages à l'interface. On prend deux systèmes, Au/Cu et W/Cu. Ces deux systèmes ont presque les mêmes paramètres d'interaction ion-solide : densité atomique, nombre atomique et la masse atomique et par conséquent, l'effet balistique dans ces deux systèmes doit être identique.

Les résultats de RBS pour ces deux systèmes sont montrés sur la figure II.11 ^[Wes 82]. Pour le système Au/Cu, le profil de Au montre que le Au est bien diffusé dans le Cu. Par contre celui de W, montre qu'il y a presque aucune différence avant et après l'irradiation. Ces résultats ont été attribués à la différence de miscibilité entre les deux systèmes. En effet, le Au et le Cu sont complètement miscibles dans l'état liquide ainsi que dans l'état solide. Cependant W et Cu ne le sont pas ni dans l'état solide ni dans l'état liquide. Ce même résultat a été obtenu dans le cas des deux systèmes ^[Ros 81] Hf/Ni et Hf/Ti où le mélange dans le premier système a été trouvé très important par rapport au deuxième système. Toujours pour la même cause dans le premier système : Hf et Ni sont complètement miscibles, alors que Hf

et Ti ne le sont pas. Le tableau II.4 contient les valeurs de dE/dx et ΔH_{mix} pour les 4 systèmes discutés ci-dessus.

système	ΔH_{mix} ($\text{kJ g}^{-1} \text{at}^{-1}$)	dE/dx ($\text{eV} / \text{\AA}$)
Au-Cu	-9	310
W-Cu	+36	322
Hf-Ni	-62	329
Hf-Ti	0	335

Tableau II.4 : La chaleur de mélange et le pouvoir d'arrêt de quelques bicouches

Où : dE/dx est le pouvoir d'arrêt nucléaire et ΔH_{mix} est la chaleur de mélange donnée par :

$$\Delta H_{\text{mix}} = X_A X_B \Omega_H \quad , \quad \text{où} : \Omega_H = Z_C N_a [H_{AB} - 1/2(H_{AA} + H_{BB})]$$

Z_C : nombre de coordination, N_a : nombre d'Avogadro.

H_{ij} : le potentiel moyen des paires d'atomes.

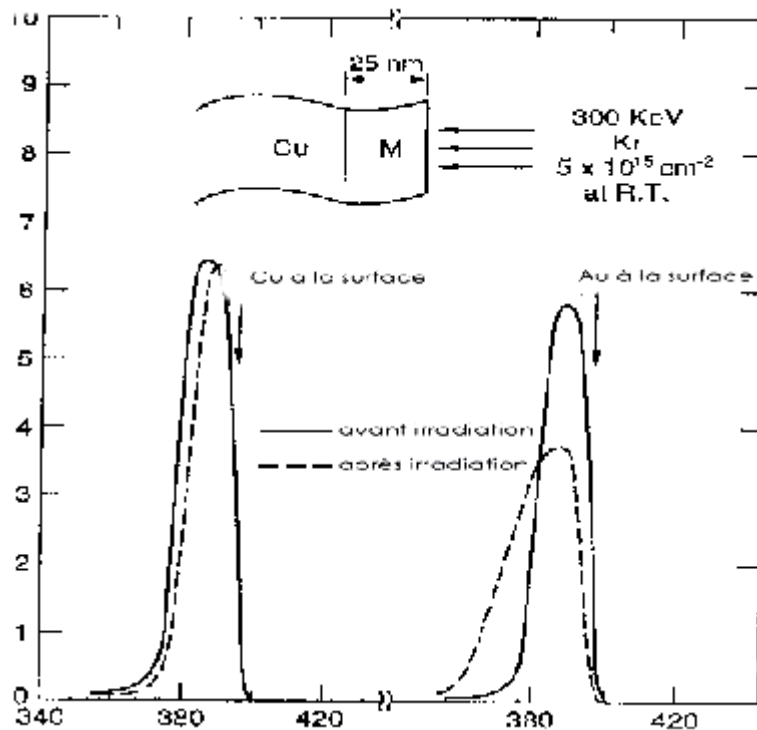


Figure II.11 : Résultats RBS du mélange des deux bicouches W-Cu et Au-Cu similaires du point de vue balistique.

Plus la chaleur de mélange ΔH est négative, plus il y a tendance à la formation des liaisons A-B. Si la chaleur de mélange est positive, l'irradiation peut conduire à un mélange à basse température. Cependant lorsque la température de l'échantillon augmente, les atomes reviennent à leur composé initial par ségrégation (de-mixing).

La figure II.12 montre bien que plus la chaleur est négative, plus le taux du mélange est important. Dans ce cas, l'équation (II-3) n'est plus valable parce que nous n'avons pris en considération que le gradient de concentration, c'est-à-dire, nous avons supposé un mélange idéal sans interaction chimique ($\Delta H_{\text{mix}} = 0$). En effet, pour prendre en considération cette interaction chimique, il faut rajouter le terme de Darken [She 63].

$$\check{D} = (D_1^* X_2 + D_2^* X_1) \left(1 + \frac{d \ln Y_1}{d X_1}\right),$$

D_i^* , X_i et Y_i sont la diffusivité thermodynamique (si $\Delta H_{\text{mix}} = 0$, $D^* = D$), fraction molaire et le coefficient d'activité de l'élément i respectivement.

On obtient [Nas 94] :
$$\check{D} = \check{D}_0 \left(1 - \frac{2\Delta H_{\text{mix}}}{K_B T}\right)$$

T est la température locale dans la cascade de collision et non pas la température moyenne de l'échantillon durant l'irradiation. Le taux de mélange est définie comme [Nas 94] :

$$(4 \check{D} t / \Phi) = (4 \check{D}_0 t / \Phi) \left(1 - \frac{2\Delta H_{\text{mix}}}{K_B T}\right) \quad (\text{II-5})$$

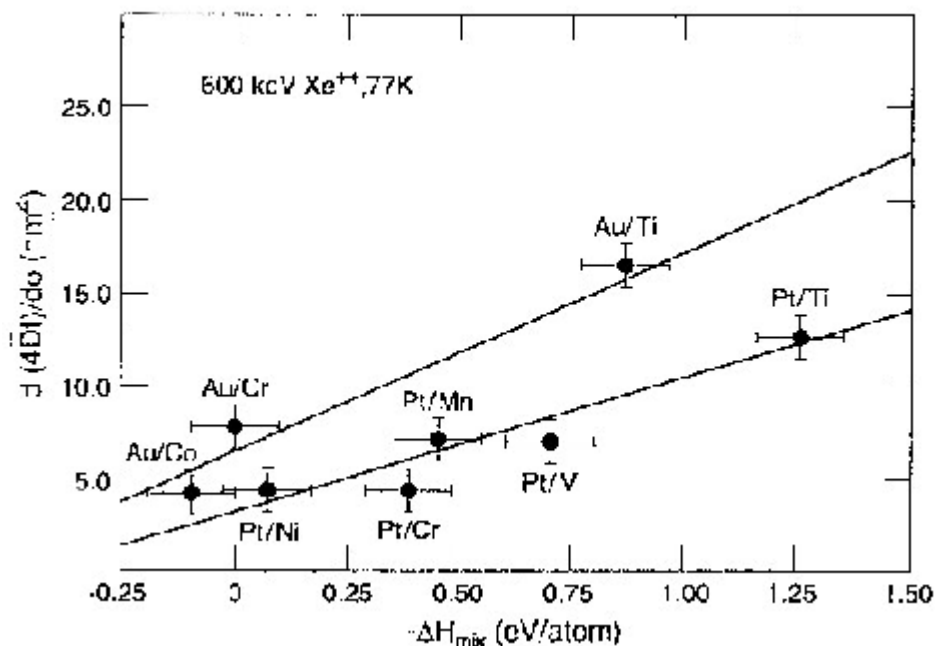


Figure II.12: Le taux de mélange expérimental et ΔH_{mix} pour différents alliages métalliques irradiés avec des ions Xe d'énergie 600 keV à une température 77 K [Che 84].

B. 3. L'énergie de cohésion

Le tableau II.5^[Che 90] présente le taux de mélange pour plusieurs bicouches possédant un $\Delta H_{\text{mix}}=0$ et presque le même effet balistique (le même pouvoir d'arrêt F_D). Les valeurs expérimentales du taux de mélange ont été obtenues pour une irradiation avec des ions Xe d'énergie 600 keV à une température $T=77\text{K}$ ^[Ros 85]. Les valeurs calculées ont été obtenues en utilisant la formule de l'équation (II-4). Ces résultats montrent qu'il n'y a aucune corrélation entre les valeurs expérimentales et les valeurs prédites par l'équation(II-4) malgré que tous ces systèmes possèdent le même $\Delta H_{\text{mix}}=0$ et F_D . Cependant une corrélation a été observée entre le taux de mélange expérimental et l'énergie de cohésion^[Ros 85]. Cette corrélation est illustrée sur la figure II.13. Cette figure montre que les systèmes de basse énergie de cohésion ΔH_{coh} ont un taux de mélange plus élevé, le fit de ces données permet d'écrire : $(4\check{D}t/\Phi) \propto (\Delta H_{\text{coh}})^{-2}$. En effet, l'énergie de cohésion est l'énergie susceptible de garder le matériau cohérent. Plus elle est grande, plus le matériau aura une température de fusion plus élevée.

L'énergie de cohésion d'un alliage A-B peut être écrite en fonction des énergies de cohésion des éléments A et B individuellement :

$$\Delta H_{\text{coh}} = (X_A \Delta H_B^0 + X_B \Delta H_A^0) + \Delta H_{\text{mix}} \quad (\text{II-6})$$

ΔH_i^0 est l'énergie de cohésion des éléments individuels A ou B.^[Kit 76]

Système	F_D (eV/A°)	E_d (eV)	\check{N}_0 (nm ⁻³)	$(4\check{D}t/\Phi)_{\text{exp}}$ (nm ⁴)	$(4\check{D}t/\Phi)_{\text{calc}}$ (nm ⁴)
Pt-Pd	5950	32.8	67.1	4.5	1.6
Hf-Zr	3751	22.5	44.0	2.6	2.3
W-Mo	5527	40.0	63.6	1.6	1.3
Ta-Nb	4807	32.3	55.6	1.4	1.6
Au-Ag	5287	30.2	58.8	23.7	1.8

Tableau II.5 : Le mélange dans des bicouches avec $\Delta H_{\text{mix}} = 0$. \check{N}_0 est la densité atomique du mélange A-B.

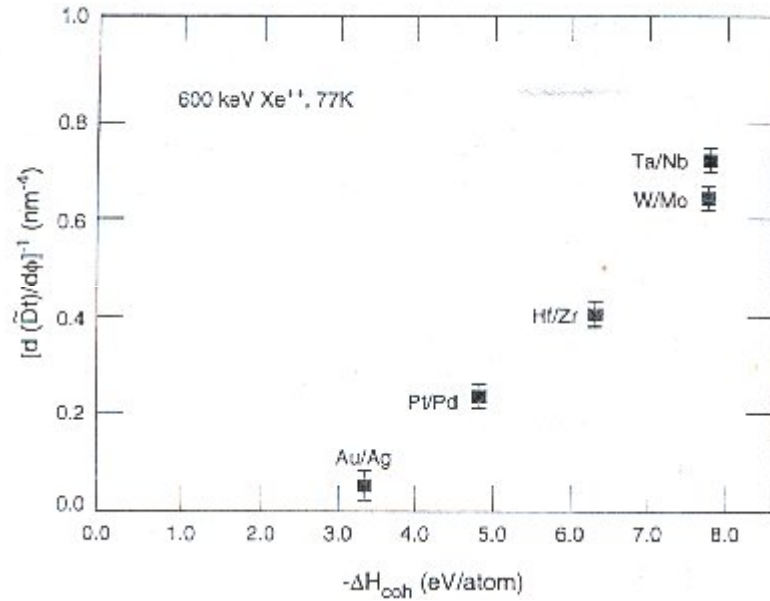


Figure II.13: Le taux de mélange expérimental et ΔH_{mix} pour différents alliages métalliques irradiés avec des ions Xe d'énergie 600 keV à une température 77 K [Che 84].

C. Modèles théoriques du mélange

Dans les sections précédentes, nous avons vu l'influence des paramètres thermodynamiques tels que la chaleur du mélange ΔH_{mix} et l'énergie de cohésion ΔH_{coh} . Johnson et al. [Joh 85] ont développé une expression phénoménologique pour le taux du mélange explicitement en fonction de ΔH_{mix} et ΔH_{coh} basée sur les résultats expérimentaux du taux du mélange d'une irradiation par des ions Xe de 600 keV à 77 K (figure II.14).

$$\frac{4d\tilde{D}t}{d\phi} = \frac{K_1 F_D^2}{N_0^3 (\Delta H_{coh})^2} \left(1 + K_2 \frac{\Delta H_{mix}}{\Delta H_{coh}}\right) \quad (\text{II-7})$$

où : F_D est la densité d'énergie déposée.

N_0 est la densité atomique moyenne.

K_1 et K_2 sont les paramètres d'ajustement.

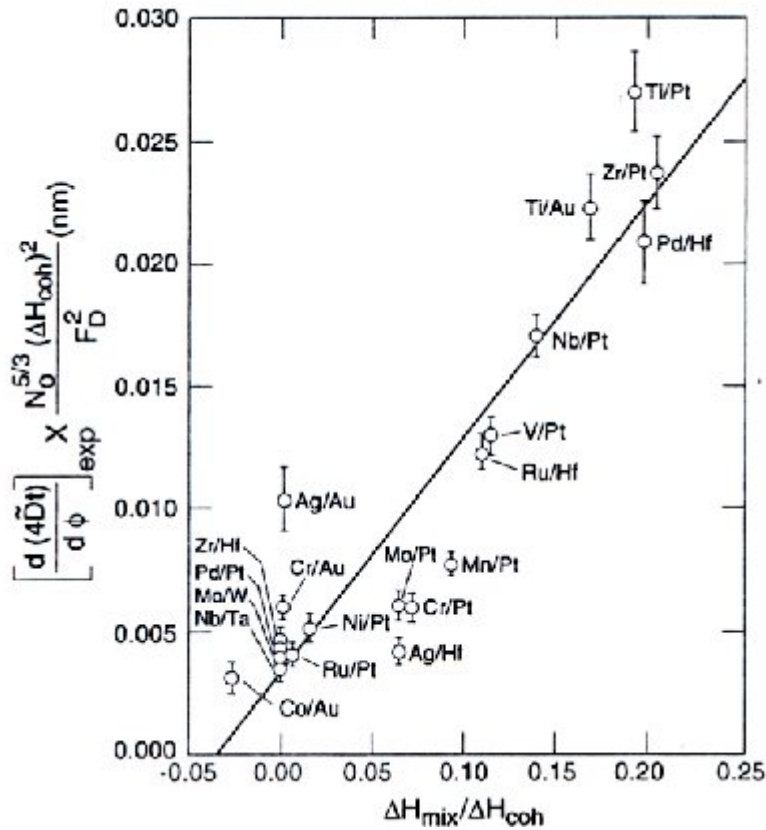


Figure II.14: Résultats expérimentaux montrant la dépendance linéaire du taux de mélange

$$\frac{d(4\tilde{D}t)}{d\phi} (\times N_0^{5/3} (\Delta H_{coh})^2 F_D^{-2}) \text{ en fonction de } \Delta H_{mix} / \Delta H_{coh} \text{ [Che 90].}$$

Le fait que cette expression n'a été obtenue qu'en utilisant une seule espèce d'ion (Xe) sur des échantillons similaires de point de vue cinétique, implique que seulement un petit intervalle de valeur de F_D a été parcouru. Par conséquent, la dépendance en F_D^2 dans cette expression ne peut pas être considérée comme générale.

Une étude, plus détaillée reportée par Bolse ^[Bol 94], montre que la dépendance en F_D^2 du taux du mélange n'a été observée que dans le cas de l'irradiation avec les ions très lourds. Cette étude nous permet de mieux classifier l'interdiffusion des métaux par irradiation aux ions suivant le nombre atomique du métal irradié ainsi que le type de l'ion du bombardement.

C. 1. Interdiffusion par effet balistique :

Dans le cas des métaux légers (ayant un nombre atomique moyen $Z < 20$), il a été montré que le mélange est dominé par l'effet balistique ^[Sig 81]. Les cascades de déplacement ne sont

pas assez denses et la plupart des atomes sont au repos. L'efficacité de l'interdiffusion dans ce cas, varie entre 0.05 et 0.2 nm⁵/keV.

C. 2. Interdiffusion dans les pointes thermiques :

Une pointe thermique est «un volume limité où la majorité des atomes sont temporairement en mouvement induit par chaque ion incident». C'est-à-dire excitation collective, autour du trajet de chaque ion, de très grande densité de cascades.

C. 2. 1. Interdiffusion dans les pointes thermiques locales :

Dans le cas des métaux avec un nombre atomique moyen ($Z > 20$), les pointes thermiques sont spatialement séparées. A l'intérieur de ces zones chaudes et probablement fondues, un processus de transport atomique peut avoir lieu. Ce transport atomique est peut être chimiquement guidé, et notamment lorsque les deux couches métalliques présentent une grande différence d'affinité chimique. Dans ce cas, l'effet thermodynamique (chimique) emporte sur l'effet balistique.

L'expression du taux de mélange peut être écrit sous la forme :

$$\frac{4d\tilde{D}t}{d\phi} = \lambda_1 \left(\frac{F_D Z_t^x}{N^y \Delta H_{coh}^z} \right) \left\{ 1 + \frac{\lambda_2 \Delta H_{mix}}{\Delta H_{coh}} \right\}$$

- En supposant une forme cylindrique des pointes thermiques, d'après Bolse ^[Bol 93], les deux paramètres d'ajustement ainsi que les exposants prennent les valeurs:

$$\lambda_1 = 2.7(\pm 0.3)10^{-5} nm^3 keV \quad \text{et} \quad \lambda_2 = 50(\pm 4). \quad [Con 95]$$

et $x = 1.77$, $y = 2/3$ et $z = 2$.

- Si on considère une forme sphérique, d'après Borgesen et al. ^[Bor 90], ces paramètres deviennent : $\lambda_1 = 8.6(\pm 0.4)10^{-5} nm keV^{2/3}$ et $\lambda_2 = 33(\pm 2)$. ^[Con 95]

et $x = 1.5$, $y = 4/3$ et $z = 5/3$.

Donc pour l' irradiation avec des ions qui ne sont pas très lourds, le taux de mélange présente une dépendance linéaire en F_D en plus d'une dépendance explicite en Z_t . le terme contenant λ_2 représente la contribution de l'effet thermodynamique dans le mélange.

C. 2. 2. Interdiffusion dans la pointe thermique globale :

Pour l'irradiation avec des ions très lourds comme le Au, Pb..., les cascades de collision deviennent plus denses et peuvent se recouvrir pour former ce qu'on appelle : une pointe thermique globale cylindrique le long du trajet de l'ion.

II.3.2. Régime des hautes énergies :

Comme nous l'avons déjà cité plus haut, ce n'est que récemment (1993) que les chercheurs ont commencé à s'intéresser au mélange induit par les ions lourds rapides (SHIBM : Swift Heavy Ion Beam Mixing), c'est-à-dire dans le régime des pertes d'énergie par excitations et ionisations électroniques. L'une des premières indications du mélange atomique aux interfaces solides par excitations et ionisations électroniques a été reportée par Wang et al. [Wan 93,95], qui ont étudié l'amélioration de l'adhésion des couches de cuivre (Cu) déposées sur du Téflon après irradiation par des ions rapides. Cette amélioration d'adhésion a été attribuée au mélange des atomes de la couche du Cu avec ceux du Téflon et la formation des liaisons CuF₂. Ensuite Leguy et al. [Leg 95, 97] ont mené une étude dont le but était de voir si les hautes excitations électroniques peuvent induire l'interdiffusion à l'interface des bicouches métalliques. Ils ont irradié des bicouches de Ni/Ti avec des ions de Ta d'énergie de 890 MeV. Plusieurs méthodes de caractérisations (les rayons X, la réflectométrie neutronique, la microscopie électronique ...) ont été utilisées pour déterminer le mélange avant et après le bombardement. Pour une fluence de $5.7 \cdot 10^{13}$ ions/cm², ils ont trouvé une épaisseur de mélange de 5 nm, ce qui correspond à un taux de mélange égal à 5 nm⁴.

D'autre part, dans la bicouche Fe/Si irradiée par 650 MeV à une fluence de 10^{13} cm⁻², Bauer et al. [Bau 97] ont observé un très grand mélange. Jaouen et al. [Jao 99] ont aussi mené une étude sur le Fe/Zr irradié par des ions d'uranium d'énergie de 811 MeV.

Ces études montrent clairement que l'irradiation dans le régime des pertes d'énergie électroniques, tout comme le régime nucléaire, conduit au mélange aux interfaces des bicouches. Cependant, une étude systématique n'a été entamée que très récemment par Bolse et ses collaborateurs. Ils ont d'abord commencé par l'étude du mélange dans une série de bicouche céramique-céramique (NiO₂/SiO₂, ZnO/SiO₂, CuO_x/SiO₂, Ni₃N/SiO₂ ...), Métal-céramique (Ni/SiO₂, Fe/SiO₂, Cu/SiO₂) et très récemment Métal-métal (Fe/Au, Fe/Ag, Zr/Si, Ti/Fe, Ti/Au).

Les bicouches étudiées étaient constituées de couches d'épaisseur d'environ 100 nm produits par pulvérisateur magnétron. Ces bicouches ont été partiellement irradiées par les ions Ar, Kr, Xe et Au d'énergie entre 90 et 350 MeV. Ce qui a permis de varier le pouvoir d'arrêt électronique entre 60 et 640 eV/(at/nm²). La contribution de la perte d'énergie par collisions nucléaires était inférieure à 1% de la perte d'énergie totale. La fluence de l'irradiation varie de $\Phi = 10^{13}$ à $\Phi = 10^{16}$ cm⁻². La température des échantillons durant l'irradiation a été gardée inférieure à 80K.

La méthode principale d'analyse du mélange utilisée dans cette étude est la RBS (la spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford) qui permet d'obtenir les profils de concentration de part et d'autre de l'interface. Ces profils ont été ajustés par une fonction d'erreur Gaussienne. L'effet de mélange après irradiation à une fluence Φ a été déterminé par l'augmentation de la variance ($\Delta\sigma^2(\Phi) = \sigma^2(\Phi) - \sigma^2(0)$) comparée par rapport à la partie non irradiée. Et le taux de mélange k est déterminé par : $k = d\sigma^2 / d\Phi$.

Le passage des ions lourds énergétiques à travers une cible conduit, au-delà d'un seuil en pouvoir d'arrêt électronique, à la formation des traces latentes (zones cylindriques le long du trajet des ions ayant une température au-delà de la température de fusion pendant quelques picosecondes). Le mélange atomique observé dans cette étude systématique à hautes énergies a été expliqué par l'interdiffusion dans ces traces latentes. Nous allons présenter les principaux résultats de cette étude.

A. Les bicouches oxyde/oxyde et métal/oxyde :

La figure II.15 présente les spectres RBS du ZnO/SiO₂ après irradiation avec les ions Ar, Kr et Xe d'énergie 100, 260 et 200 MeV ^[Bol 02a], respectivement. Un très grand mélange apparaît dans le cas des ions Xe et un effet relativement moins dans le cas des ions Kr. Tandis qu'aucun effet ne s'observe pour les ions Ar. Ce mélange ainsi observé peut être clairement attribué au transport atomique induit par les excitations et les ionisations électroniques, l'effet de ce mélange dans le cas de l'irradiation avec les ions Xe d'énergie 200 MeV était trouvé 75 fois important par rapport à l'irradiation avec les mêmes ions mais d'énergie 900 keV (dans le régime des pertes nucléaires) ^[Bol 02].

La figure II.16 présente les profils de la concentration du Ni dans la bicouche NiO/SiO₂ après irradiation aux ions lourds rapides ^[Bol 03]. La largeur de la fonction d'erreur augmente clairement avec la fluence et le pouvoir d'arrêt électronique.

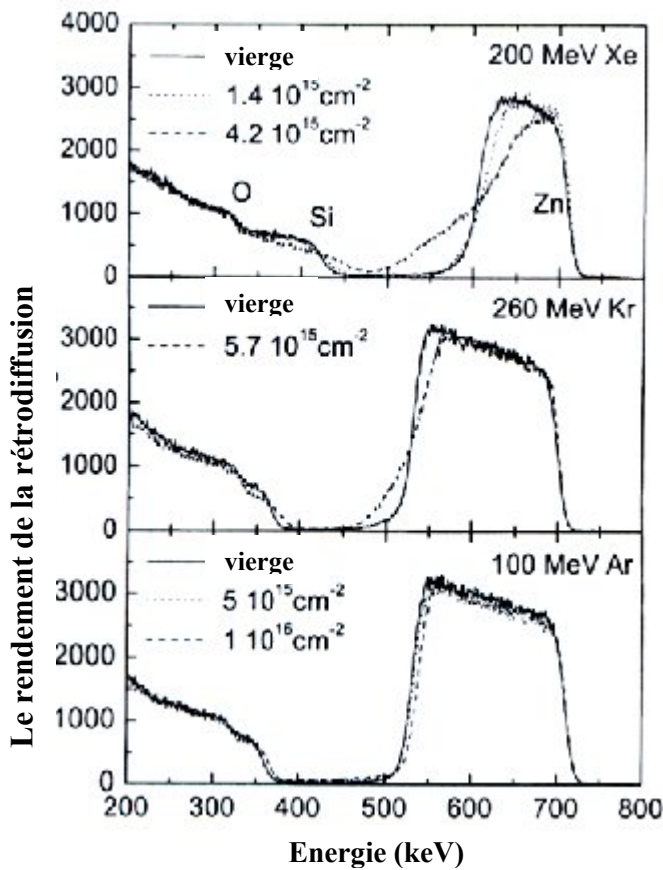


Figure II.15 : Spectres RBS du ZnO/SiO₂ après bombardement par des ions de hautes énergies Ar, Kr et Xe d'énergie 100, 260 et 200 MeV respectivement.

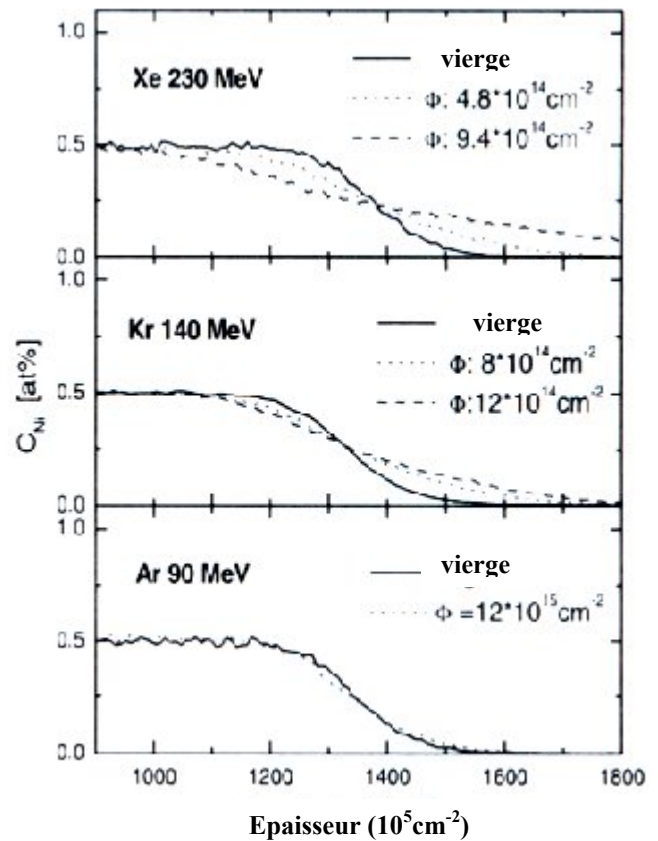


Figure II.16 : Les profils de la concentration du Ni dans la bicouche NiO/SiO₂ en fonction de l'épaisseur après bombardement par les ions Ar, Kr et Xe d'énergie 90, 140 et 230 MeV respectivement.

Bolse et al. ont montré que le modèle de la « pointe thermique globale » développé pour le régime nucléaire, qui prédit une proportionnalité entre le taux de mélange et le carré de la densité de la perte d'énergie (S_n), ne correspond pas au bon ajustement des résultats expérimentaux. En effet, ils ont montré que le taux de mélange est proportionnel à S_n et non pas avec le carré de S_n ^[Bol 94]. Très récemment, ces mêmes auteurs ont montré que le modèle de « la pointe thermique globale » est plutôt valable pour le régime des pertes d'énergie électroniques que pour le régime nucléaire^[Bol 04]. C'est-à-dire que le taux de mélange varie en fonction de S_e^2 :

$$k = \eta^2 (S_e - S_{ec})^2 \quad \text{ou bien : } \sqrt{k} = \eta(S_e - S_{ec})$$

où η une sorte d'efficacité du mélange et S_{ec} le seuil de mixing.

Comme observé pour la formation des traces latentes dans les isolants, le mélange aussi est un phénomène de seuil. Pour qu'il ait un mélange, le dépôt d'énergie électronique doit dépasser les seuils d'apparition des traces latentes dans les deux matériaux constituant la bicouche, voir figure II.17 [Bol 04]. C'est-à-dire que les deux cotés de l'interface doivent se transformer en phase liquide. Dans le cas des oxydes (isolants), le seuil d'apparition de traces est relativement faible par rapport au cas des métaux, et par conséquent le seuil d'apparition du mélange dans les bicouches isolant/isolant est aussi faible ~ 12 keV/nm [Bol 02b].

Trois bicouches métal /oxyde ont été incluses dans cette étude : (Ni/SiO₂, Cu/SiO₂, Fe/SiO₂) [Sch 04]. Aucun mélange n'a été observé pour les deux premiers systèmes même après irradiation avec des ions de Au d'énergie 350 MeV (S_e (Ni)= 57 keV/nm, S_e (Cu)=54 keV/nm). D'après les calculs théoriques de Wang et al. [Wan 94] basés sur le model de la pointe thermique, la création de traces latentes dans le Cu massif n'est pas prédit à cette énergie. Effectivement, aucun mélange n'a été observé dans la Cu/SiO₂. Tandis que pour le Ni massif, ces même calculs théoriques prédisent l'apparition de traces latentes au-delà d'un seuil égale à ~ 49 keV/nm qui est inférieur au pouvoir d'arrêt obtenu avec les ions Au d'énergie 350 MeV. Cependant aucun mélange n'a été observé dans la Ni/SiO₂. En effet, aucun effet n'a été observé expérimentalement dans le Ni même après l'irradiation avec C₆₀ d'un pouvoir d'arrêt ~ 85 keV/nm [Dam 98]. Par contre, dans la Fe /SiO₂, le mélange a été observé au-delà de ~ 18 keV/nm malgré que cette valeur est inférieure à la valeur seuil d'apparition de traces prédite dans le Fe (S_{es} = 41- 49 keV/nm) [Wan 94]. Dans la figure II.18, le taux de mélange est tracé en fonction du pouvoir d'arrêt électronique pour différentes bicouches.

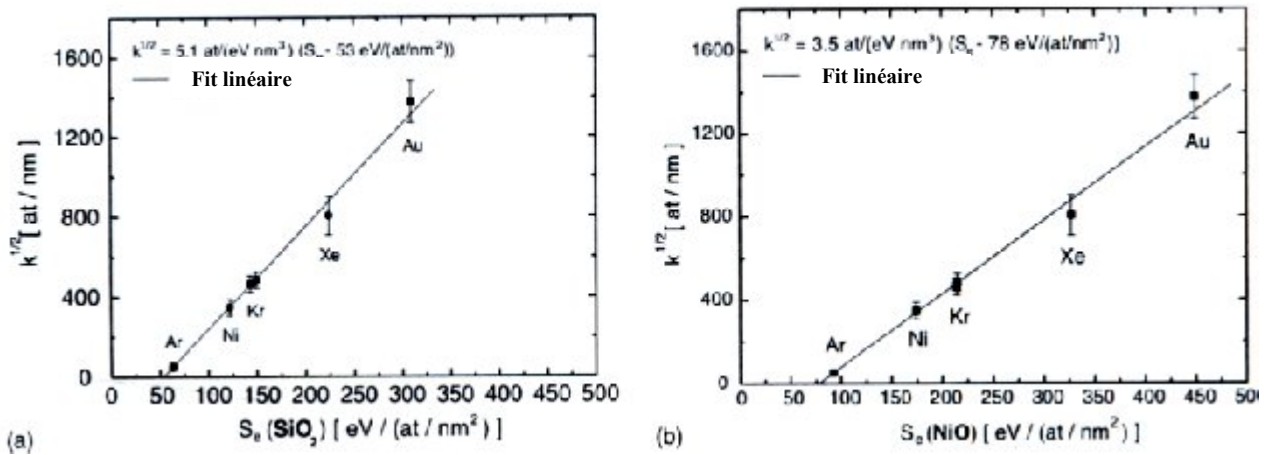


Figure II.17 : La racine du taux de mélange dans la bicouche NiO/SiO₂ en fonction du pouvoir d'arrêt électronique dans (a) le substrat et (b) dans la couche du haut.

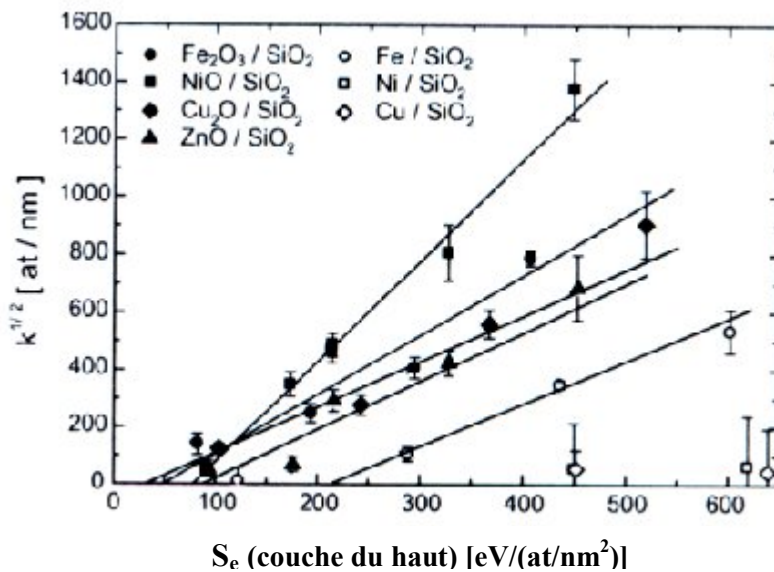


Figure II.18 : La racine du taux de mélange pour différentes bicouches en fonction du pouvoir d'arrêt électronique de la couche du haut.

B. Les bicouches Métal /Métal :

Récemment, Sisodia et al. [Sis 05] ont étudié la création du Silice du Zr Par IBM (Ion Beam Mixing) en irradiant le système Zr/Si par des ions Au⁺²⁶ d'énergie 350 MeV pour

différentes fluences. Les résultats de RBS ont montré que la couche de mélange à l'interface est de l'ordre de 50 Å et la GIXRD a révélé la formation de la silice ZnSi.

Une autre mise en évidence du mélange dans les bicouches métalliques a été réalisée par Srivastava et al. ^[Sri 05] dans la bicouche Fe/Ni. L'abaissement considérable de la résistivité de la bicouche ainsi que le changement de la dépendance de la résistivité en fonction de la température ont été expliqués par le mélange. La formation des nouvelles phases, FeNi₃ et FeNi, a été révélée par la XRD et la XRR. Cette étude a conduit aussi à la conclusion que le mélange est la conséquence de l'interdiffusion durant la phase liquide transitoire créée de part et d'autre de l'interface suivant le modèle de la pointe thermique. Ces résultats montrent bien que le Ni insensible aux excitations électroniques en massif devient sensible en contact avec un métal sensible (Fe), en accord avec le résultat de Leguay et al. ^[Leg 97].

De même, très récemment, Rumbolz et al. ^[Rum 06] ont montré que le Au, insensible aux excitations électroniques en état massif, devient sensible lorsqu'il est en contact avec le Fe (Fe/Au irradié par Kr de 1.7 MeV/a). Tandis qu'aucun effet n'a été observé dans le cas de la bicouche Fe/Ag.

D'autre part, Kumar et al. ^[Kum 06] ont investigué le mélange dans les bicouches Ti/Fe et Ti/Au. Dans le cas du système Ti/Fe, le mélange augmente avec la fluence, la perte d'énergie électronique et la température de l'irradiation. Le mélange dans le deuxième système (Ti/Au) s'avère moins important par rapport au premier système. Ceci est dû au fait que le Ti et le Fe sont sensibles aux excitations électroniques tandis que le Au n'est pas sensible. Le mélange dans le cas du système Ti/Au a été expliqué par la fusion d'une couche mince du Au à l'interface malgré que ce dernier ne soit pas sensible aux excitations électroniques via le transfert d'énergie de la couche du Ti à l'interface. Une estimation des coefficients de diffusion a été réalisée (10^{-6} et 10^{-7} m²/s respectivement pour les systèmes Ti/Fe et Ti/Au) confirmant ainsi que le mélange s'effectue dans la phase liquide.

C. Etude théorique (simulation) du mélange par le modèle de la pointe thermique :

Le code étendu pour les multicouches a été appliqué par Wang et al. ^[Wan 03] dans la bicouche Ni/Ti irradiée par des ions Ta et U de l'ordre de GeV. Les résultats de ces calculs montrent bien que l'irradiation par les ions Ta et U d'énergie 0.89 et 0.64 GeV

respectivement induit la fusion du Ni et Ti à l'interface malgré que le Ni, en état massif, n'est pas sensible aux excitations électroniques (voir figure II.19).

En effet, le Ni fond 1nm à l'interface à cause du transfert d'énergie de la couche du Ti sensible aux excitations électroniques en bon accord avec les résultats de Leguay et al. [Leg 97].

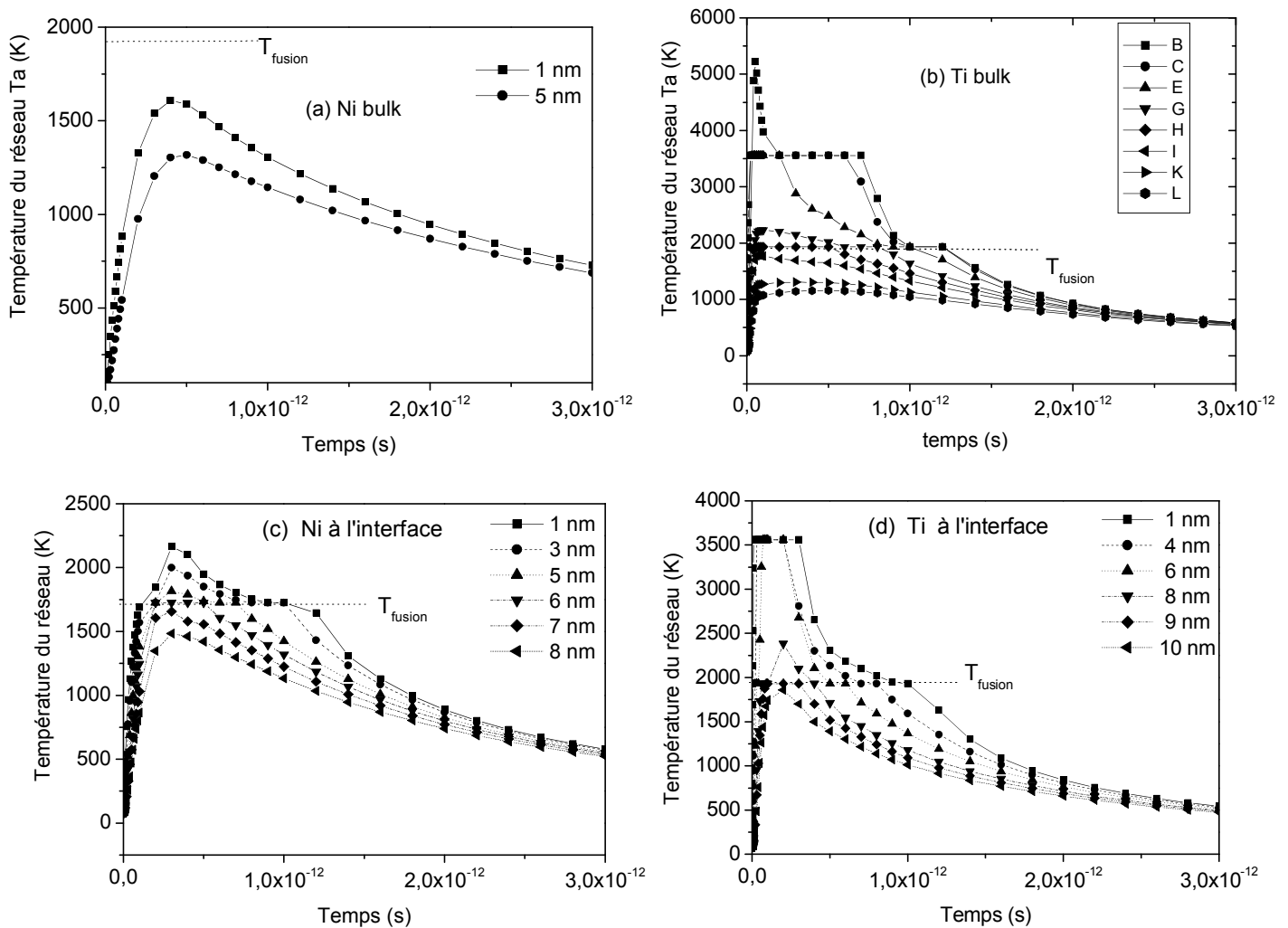


Figure II.19 : Evolution de la température du réseau en fonction du temps. (a) Ni bulk, (b) Ti bulk, (c) et (d) sont respectivement Ni et Ti à l'interface du bicouche Ni160Å / Ti 140 Å déposé sur un substrat de Si.

CHAPITRE III

Modélisation

III-1. Introduction

Dans la formulation du modèle de la pointe thermique [DUF 93a, TOU 92], le matériau cible est considéré comme un ensemble de deux systèmes physiques continus en interaction : le gaz d'électrons et le réseau atomique. Ces deux systèmes seront traités comme des plasmas hors d'équilibre l'un par rapport à l'autre qui se mettent en équilibre par interaction électron-phonon. Les phénomènes de transport électrique et thermique sont régis par l'équation de transport de Boltzmann de laquelle découlent les définitions de diffusivité électrique applicables aussi bien au gaz d'électrons qu'au réseau atomique. Quelles valeurs de conductivité électrique et de diffusivité thermique doivent être prises en compte ici ? Les données expérimentales qui nous sont fournies prennent nécessairement en compte les caractéristiques des deux systèmes en interaction sans distinction de la contribution de chacun d'eux aux valeurs de conductivité électrique et thermique. Si les électrons constituaient effectivement un gaz d'électrons libres, la diffusivité thermique électronique serait infinie.

A la suite d'une excitation, les électrons ne peuvent se thermaliser que par interaction électron-électron et électron-réseau. Les électrons subissent trois types d'interaction :

- 1) Les interactions électron-électron.
- 2) L'interaction avec le potentiel périodique du réseau.
- 3) Les interactions avec les vibrations du réseau ou les phonons.

Nous introduirons les deux premiers types d'interaction dans la diffusivité thermique électronique qui caractérise la vitesse de transport de l'énergie thermique dans le gaz d'électrons quasi-libre. Nous choisirons les valeurs données par un gaz d'électrons quasi libre tel qu'il existe dans les métaux nobles (Au, Cu ou Ag). Le troisième type d'interaction concerne les collisions des électrons avec les phonons que nous reprendrons dans le terme de couplage électron-phonon.

Les deux systèmes se présentent comme suit :

- Le système électronique (gaz d'électrons quasi-libres) décrit par la distribution de Fermi-Dirac :

$$f(\varepsilon) = \frac{1}{\exp\left(\frac{\varepsilon - \mu}{K_B T_e}\right) + 1}$$

où : ε est l'énergie d'un électron,

μ est le potentiel chimique dont la valeur à 0 K est égale à l'énergie de Fermi ;

T_e est la température des électrons.

➤ Le système du réseau atomique considéré comme un ensemble de phonons est décrit par la distribution de Bose–Einstein :

$$f(\varepsilon) = \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\omega}{K_B T_a}\right) - 1} \quad \text{(III-2)}$$

où : $\hbar\omega$ est l'énergie d'un phonon dont la valeur maximale est l'énergie de Debye $\hbar\omega_D$.

T_a est la température du réseau atomique.

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

III-2. Etablissement des équations différentielles de la conduction de chaleur :

a- En considérant uniquement le transport radial d'énergie :

Le bilan de transfert d'énergie s'établit donc de la manière suivante : Dans une géométrie cylindrique dont l'axe (x) est porté par la trajectoire de l'ion incident (figure III-1), une couche cylindrique du système i (i=e pour les électrons et les i=a pour les atomes) à la distance r de la trajectoire de l'ion de volume égale à $2\pi r dr dx$, est caractérisée par sa chaleur spécifique C_i et sa conductivité thermique K_i à la température T_i . Son énergie varie de dE_i pendant l'intervalle de temps dt,

$$\frac{dE_i}{dt} = C_i \frac{dT_i}{dt} 2\pi r dr dx$$

Cette variation est due ::

1- à l'apport d'énergie par conduction à travers la surface dS_1

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

2- à la perte d'énergie par conduction à travers dS_2

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

En utilisant le théorème de la moyenne : $f(x \pm dx) = f(x) \pm \frac{\partial f}{\partial x} dx$,

Le bilan de cette conduction s'écrit par unité de volume : $(a) - (b) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_i \frac{\partial T_i}{\partial r} \right)_{r_i}$

3- à l'énergie déposée par l'ion incident sur les électrons $A(r, t)$, et sur les atomes $B(r, t)$.

4- au couplage électron phonon : $-g(T_e - T_a)$ pour les électrons et $+g(T_e - T_a)$ pour les atomes.

L'évolution en température des deux systèmes est régie par le système d'équations différentielles couplées et non linéaires du fait de la dépendance en température de tous les coefficients :

$$\begin{cases} C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right) - g(T_e - T_a) + A(r, t) & \text{Pour les électrons} \\ C_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial r} \right) + g(T_e - T_a) + B(r, t) & \text{Pour les atomes} \end{cases} \quad (III-3)$$

b- En considérant le transport radial et axial d'énergie :

Le passage au code pour multicouches se fait en rajoutant aux équations (a) et (b) l'apport et la perte d'énergie axiale à travers les surfaces dS_3 et dS_4 (figure III-1). Dans ce cas, la variation d'énergie dE/dt est due :

1- à l'apport d'énergie par conduction dans la direction radiale à travers la surface dS_1 et dans la direction axiale à travers dS_3 .

$$\begin{aligned}
& -K_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial r} \right)_{r_i-dr/2} dS_1 - K_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial x} \right)_{x_i-dx/2} dS_3 = \\
& -K_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial r} \right)_{r_i-dr/2} 2\pi(r_i - dr/2)dx - K_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial x} \right)_{x_i-dx/2} 2\pi r_i dr
\end{aligned} \tag{a')}$$

2- à la perte d'énergie par conduction dans la direction radiale à travers la surface dS_2 et dans la direction axiale à travers dS_4 .

$$\begin{aligned}
& -K_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial r} \right)_{r_i+dr/2} dS_2 - K_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial x} \right)_{x_i+dx/2} dS_4 = \\
& -K_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial r} \right)_{r_i+dr/2} 2\pi(r_i + dr/2)dx - K_i \left(\frac{\partial T_i}{\partial x} \right)_{x_i+dx/2} 2\pi r_i dr
\end{aligned} \tag{b')}$$

En utilisant le théorème de la moyenne : $f(x \pm dx) = f(x) \pm \frac{\partial f}{\partial x} dx$,

Le bilan de la conduction thermique s'écrit par unité de volume ($2\pi r dr dx$) :

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

3- à l'énergie déposée par l'ion incident sur les électrons $A(r, t)$, et sur les atomes $B(r, t)$.

4- au couplage électron phonon : $-g(T_e - T_a)$ pour les électrons et $+g(T_e - T_a)$ pour les atomes.

D'où les nouvelles équations :

$$\begin{cases} C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_e(T) \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) - g(T_e - T_a) + A(r, t) \\ C_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_a(T) \frac{\partial T_a}{\partial x} \right) + g(T_e - T_a) + B(r, t) \end{cases} \tag{III-4}$$

Dans le cadre du modèle de la pointe thermique, le transfert d'énergie des ions incidents vers le matériau se fait suivant les temps caractéristiques suivants :

1. L'énergie déposée sur les électrons en un temps de l'ordre de 10^{-15} s.
2. L'énergie déposée directement sur les atomes en un temps de l'ordre de 10^{-13} s.
3. L'énergie transférée des électrons vers les atomes en un temps entre 10^{-15} s à 10^{-13} s.

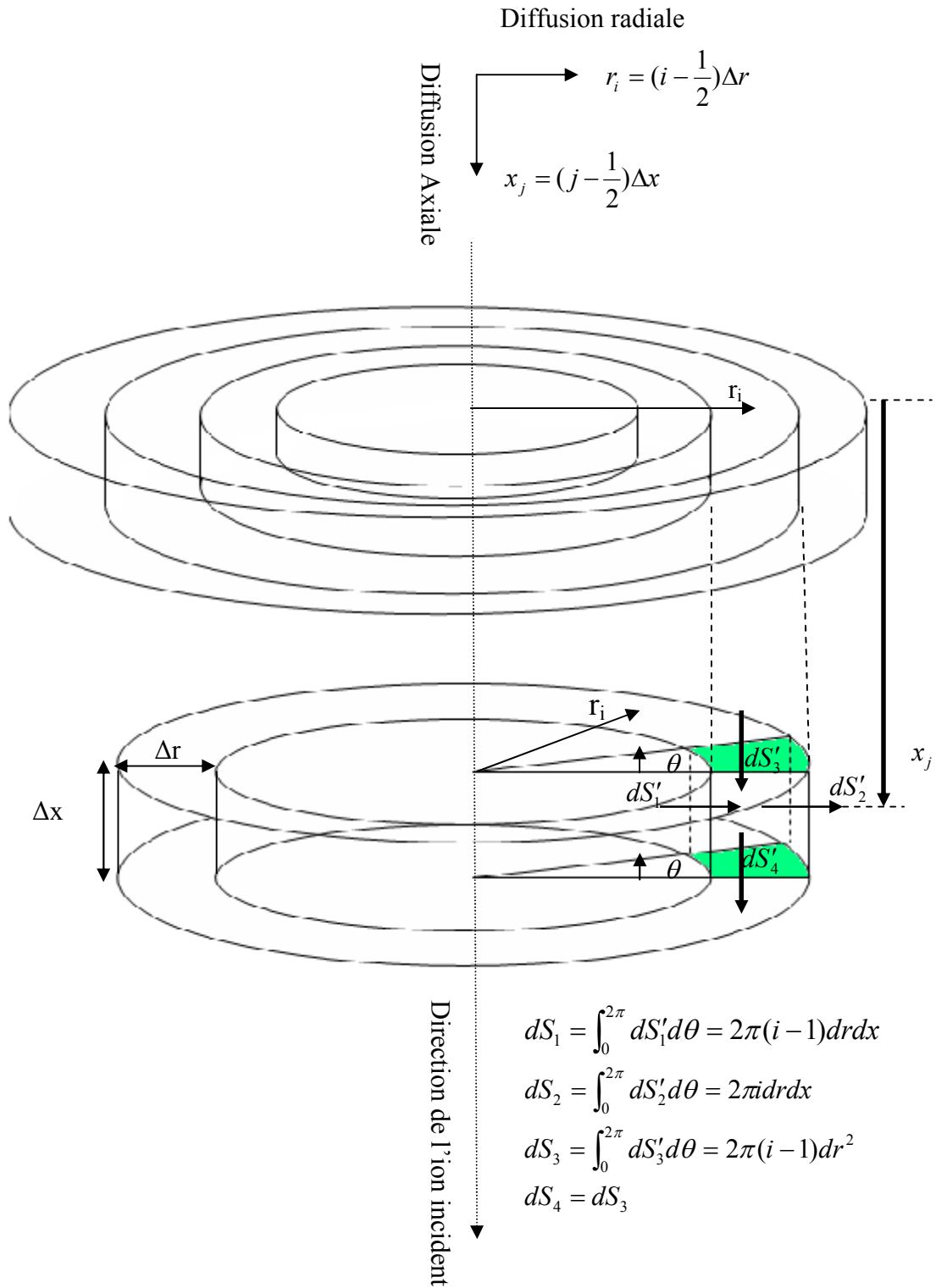


Figure III-1 : Transfert d'énergie en géométrie cylindrique dans la direction radiale et axiale par rapport au trajet de l'ion

III-3. La résolution du système d'équations couplées :

III.3.1. Discussion de la solution numérique :

La solution analytique de ce système est impossible car tous les paramètres dépendent de la température selon des lois de variation complexes. En outre pour le réseau, la prise en compte de la chaleur latente de fusion constitue un des obstacles essentiels car il faudrait réécrire ces équations avec $\frac{\partial T_a}{\partial t} = 0$. En effet, la transformation solide-liquide se fait à température constante. Afin de juger si la solution numérique était véritablement nécessaire, il fallait par des approches successives affiner la détermination des températures maximales atteintes aussi bien dans le gaz d'électrons que dans le réseau.

Une solution purement analytique présuppose que tous les paramètres soient indépendants de la température. Cette approximation qui est grossière, a été faite par Lifshitz et al. ^[Lif 60] pour essayer de déterminer l'élévation de température qui pourrait exister à la suite d'une irradiation avec des fragments de fission de l'Uranium.

Ce travail analytique a dû être réalisé difficilement car à l'époque il était difficile de résoudre numériquement le système complet. Des élévations importantes de température dans les matériaux ont été obtenues dans le cadre de cette approximation. Ce qui a exigé le développement d'une solution numérique pour prendre en compte la variation des paramètres du réseau en fonction de la température ainsi que l'éventuel changement de phase (solide-liquide). Un calcul simplifié (supposant les paramètres du gaz d'électrons constants) a été développé ^[Tou 92] pour les matériaux amorphes dans lesquels il est généralement accepté que l'interaction électron-phonon soit supérieure à celle du même matériau dans sa phase cristalline.

III.3.2. Présentation de la Solution numérique :

Les mécanismes de transfert de chaleur entre les électrons et entre les électrons et le réseau dépendent de la structure du matériau. Dans les métaux, la conduction due aux électrons résulte essentiellement du remplacement des électrons chauds à l'intérieur de la région excitée par les électrons froids au périphérique.

Plusieurs questions se posent quant aux valeurs à prendre pour certaines caractéristiques thermiques, notamment du système d'électrons. En effet, le modèle de la

pointe thermique a été initialement développé dans le cadre des systèmes métalliques. Dans ce cas, les électrons excités par le passage de l'ion sont considérés comme des électrons libres interagissant avec un gaz d'électrons libres (les électrons de conduction).

III.3.2.1. Caractéristiques du gaz d'électrons.

L'approximation de Born Van Karmann consiste à supposer que les fonctions d'ondes électroniques dans un solide cristallin sont périodiques dans l'espace. La grandeur essentielle dont dépend l'ensemble des paramètres thermodynamiques du gaz d'électrons est l'énergie de Fermi qui est elle-même directement liée à la densité électronique du matériau étudié. Elle est donnée par la relation :

$$\varepsilon_F = \frac{h^2}{2m_e} (3\pi^2 n_e)^{2/3}$$

m_e : masse de l'électron

n_e : densité électronique

Cette relation sera utilisée également sous la forme : $n_e = \frac{2}{3} \delta \varepsilon_F^{3/2}$, où δ est une constante

égale à $\frac{m_e \sqrt{2m_e}}{\pi^2 h^3}$.

Les électrons impliqués dans le mécanisme thermique sont ceux de la couche externe. On considère ici n_e comme constante au cours du phénomène thermique. Le nombre d'électrons ayant l'énergie ε à $d\varepsilon$ près définit la densité d'état $\rho(\varepsilon)$ fournie par :

$$\rho(\varepsilon) = \delta \varepsilon^{1/2}$$

III.3.2.1.a- La chaleur spécifique C_e

La chaleur spécifique C_e est définie à partir de l'augmentation d'énergie dU nécessaire pour porter le gaz d'une température T_e à la température $T_e + dT_e$.

$$C_e = \frac{dU}{dT_e} = \frac{d}{dT_e} \int_0^\infty \varepsilon \rho(\varepsilon) f(\varepsilon) d\varepsilon = \int_0^\infty \varepsilon \rho(\varepsilon) \frac{\partial f(\varepsilon)}{\partial T_e} d\varepsilon$$

où $\rho(\varepsilon)$ est la densité d'états.

Dans le domaine des basses températures ($T \ll T_{\text{Fermi}}$), C_e est proportionnelle à T_e :

$$C_e = \gamma T_e, \text{ avec : } \gamma = \frac{\pi^2 k_B^2}{2\varepsilon_F} n_e$$

A haute température, C_e devient indépendante de T_e : $C_e = \frac{3}{2} n_e k_B$

Pour tenir compte de ce comportement, nous avons choisi de définir deux domaines de variation de C_e qui se raccordent à la température limite T_0 , (figure III-2)

$$T_e < T_0 \quad C_e = \gamma T_e$$

$$T_e > T_0 \quad C_e = \frac{3}{2} n_e k_B$$

$$T_0 \text{ est tel que } \gamma T_0 = \frac{3}{2} n_e k_B$$

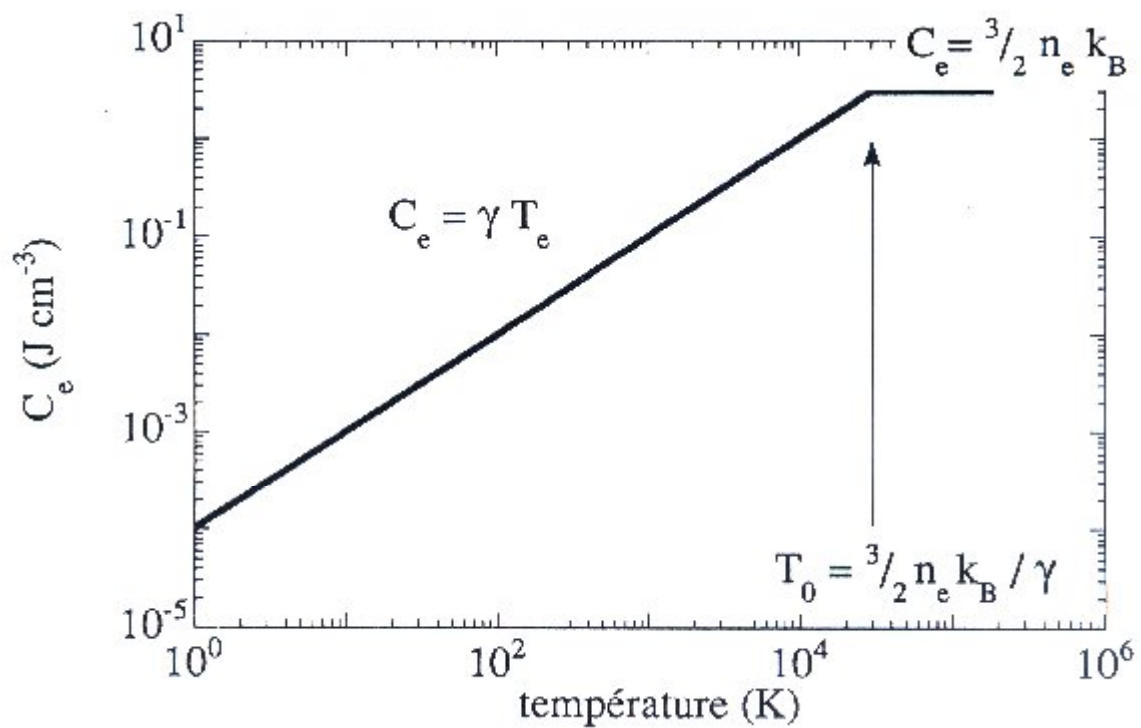


Figure III-2 : Loi d'évolution de la chaleur spécifique électronique en fonction de la température

III.3.2.1.b- La diffusivité thermique $D_e = \frac{K_e}{C_e}$

La diffusivité thermique électronique caractérise l'aptitude du gaz d'électrons à propager l'énergie reçue. Elle est donnée par :

$$D_e = \frac{1}{3} \frac{\langle v \rangle}{n \sigma},$$

$\langle v \rangle$ et n sont respectivement la vitesse moyenne et la densité des électrons. σ est la section efficace d'interaction électron-électron.

Martinenko et Yavlinskii ^[Mar 83] ont proposé une description théorique, dans le cadre d'un gaz d'électrons libres pour déterminer les paramètres thermodynamiques du système électronique. Une démonstration du calcul de $\langle v \rangle$ et n est présentée dans l'appendice 1.

La figure (III-3) donne la variation de $D_e = f(\zeta)$: On constate qu'à basse température, D_e décroît en $1/T_e^2$ jusqu'à $\zeta = 0.1$, puis varie en $1/T_e$ et passe par un minimum ($\zeta = 1$) pour croître à partir de $\zeta = 2$.

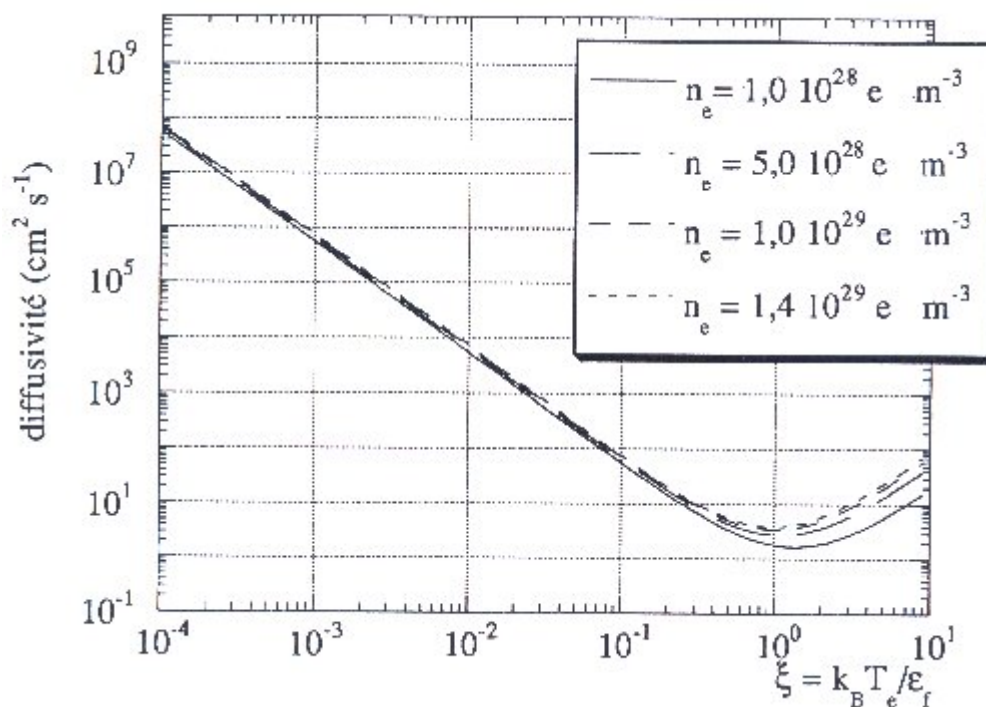


Figure III-3 : Loi théorique de la diffusivité thermique électronique en fonction de la température réduite ζ pour différentes densités électroniques n_e ^[Mar 83].

- Le gaz d'électrons quasi-libres : limites d'application

La loi de Wiedmann et Franz est remarquablement suivie à des températures supérieures à 80 K ($\frac{K_e}{\sigma_e T_e} = 2,44 \times 10^{-8} W \Omega K^{-2} = L$ (constante de Lorenz)).

A basses températures, ce rapport dépend lui aussi de la température. La théorie de l'électron libre présente l'inconvénient de ne tenir aucun compte de la température dans les expressions de σ_e et K_e ($\sigma_e = \frac{ne^2\tau}{m_e}$ et $K_e = \frac{1}{3}C_e v_F^2 \tau$), il faut donc supposer que le temps de relaxation lui-même dépend de T_e .

La théorie de Sommerfeld d'où est tirée l'expression de la chaleur spécifique : $C_e = \gamma T_e$, correspond bien aux valeurs expérimentales à basse température notamment dans les métaux alcalins. Cette prédiction, bonne pour les métaux nobles, devient très mauvaise pour les métaux de transition (tableau III-1). L'inadéquation de la théorie dans ces derniers matériaux vient du fait que l'on n'a pas une connaissance précise du nombre d'électrons participant au phénomène de transport.

Élément	γ calculé	γ mesuré
K	4.0	4.7
Fe	1.5	12
Mn	1.5	40
Au	1.5	1.6
Ag	1.5	1.6
Cu	1.2	1.6

Tableau III -1 : Valeurs des γ théoriques et expérimentales pour certains métaux.

Dans la pratique, nous choisirons les paramètres électroniques d'un meilleur conducteur dans lequel on peut supposer que le gaz d'électrons est quasi libre : l'or. De plus, la densité électronique mesurée est égale à la densité théorique puisqu'elle est tirée des valeurs de γ de la chaleur spécifique :

$$\frac{\gamma_{\text{exp}}}{\gamma_{\text{th}}} = \frac{n_{e\text{exp}}^{1/3}}{n_{\text{eth}}^{1/3}} \approx 1$$

La théorie nous donne les expressions suivantes pour la diffusivité thermique D_e et la résistivité ρ :

$$D_e = \frac{1}{3} V_F^2 \tau \quad \text{et} \quad \rho = \frac{m_e}{n_e e^2 \tau}$$

D_e et ρ sont liées par :

$$D_e = \frac{1}{3} \frac{V_F^2 m_e}{n_e e^2 \rho}$$

D'après les données expérimentales de la résistivité de l'or ^[Mea65], nous déduisons une estimation de la diffusivité thermique. Dans l'or, $n_e = 5.9 \cdot 10^{22}$ électrons cm^3 (1 électron par atome).

T(K)	20	50	80	100	150	200	250	295
ρ ($\mu\Omega\text{cm}$)	0.012	0.2	0.46	0.63	1.04	1.44	1.83	2.2
τ (s)	5.02 10^{-12}	3.01 10^{-13}	1.31 10^{-13}	9.56 10^{-14}	5.8 10^{-14}	4.2 10^{-14}	3.3 10^{-14}	2.74 10^{-14}
D_e (cm^2s^{-1})	32800	1967	856	625	379	274	216	179

Tableau III -2 : Valeurs de la diffusivité thermique déduites à partir des valeurs expérimentales de la résistivité de l'Or.

Dans les calculs effectués par la suite, nous nous baserons sur la loi de variation suivante :

On donne la diffusivité à température ambiante $D_{e,300}$ et la diffusivité minimale donnée par Martinenko ^[Mar 83] $D_{e,\min}$. De 0 à 300 K, D_e varie en $1/T_e^2$, de 300 K à T_{limite} D_e varie en $1/T_e$. Au delà, D_e est constante et vaut $D_{e,\min}$. La température T_{limite} est déterminée par la continuité de D_e . Le tableau III-3 récapitule les lois de variations des coefficients thermiques du gaz d'électrons.

T_e	0 K → 300 K	300 K → T_{limite}	$T_{\text{limite}} \rightarrow T_0$	$T_0 \rightarrow 150000$ K
D_e	k_1/T_e^2	K_2/T_e	D_{emin}	D_{emin}
C_e	γT_e	γT_e	γT_e	$C_{\text{emax}}=3/2n_e k_B$
K_e	$\gamma k_1 / T_e$	γk_2	$\gamma D_{\text{emin}} T_e$	$3/2n_e k_B D_{\text{emin}}$

Tableau (III -3) : Les lois de variation des coefficients thermiques du gaz d'électrons.

Les constantes sont calculées d'après les données D_{e300} et $D_{e \text{ min}}$:

$$D_{e300}=k_1/300^2$$

$$K_1/300^2=k_2/300$$

$$D_{e \text{ min}}=k_2/ T_{\text{limite}} \rightarrow T_{\text{limite}}=\frac{300 D_{e300}}{D_{e \text{ min}}}$$

La figure III-4 récapitule les lois effectivement prises dans le cas des matériaux amorphes pour lesquels nous avons pris $D_{e 300K}=150 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ et $D_{\text{emin}}=8 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$.

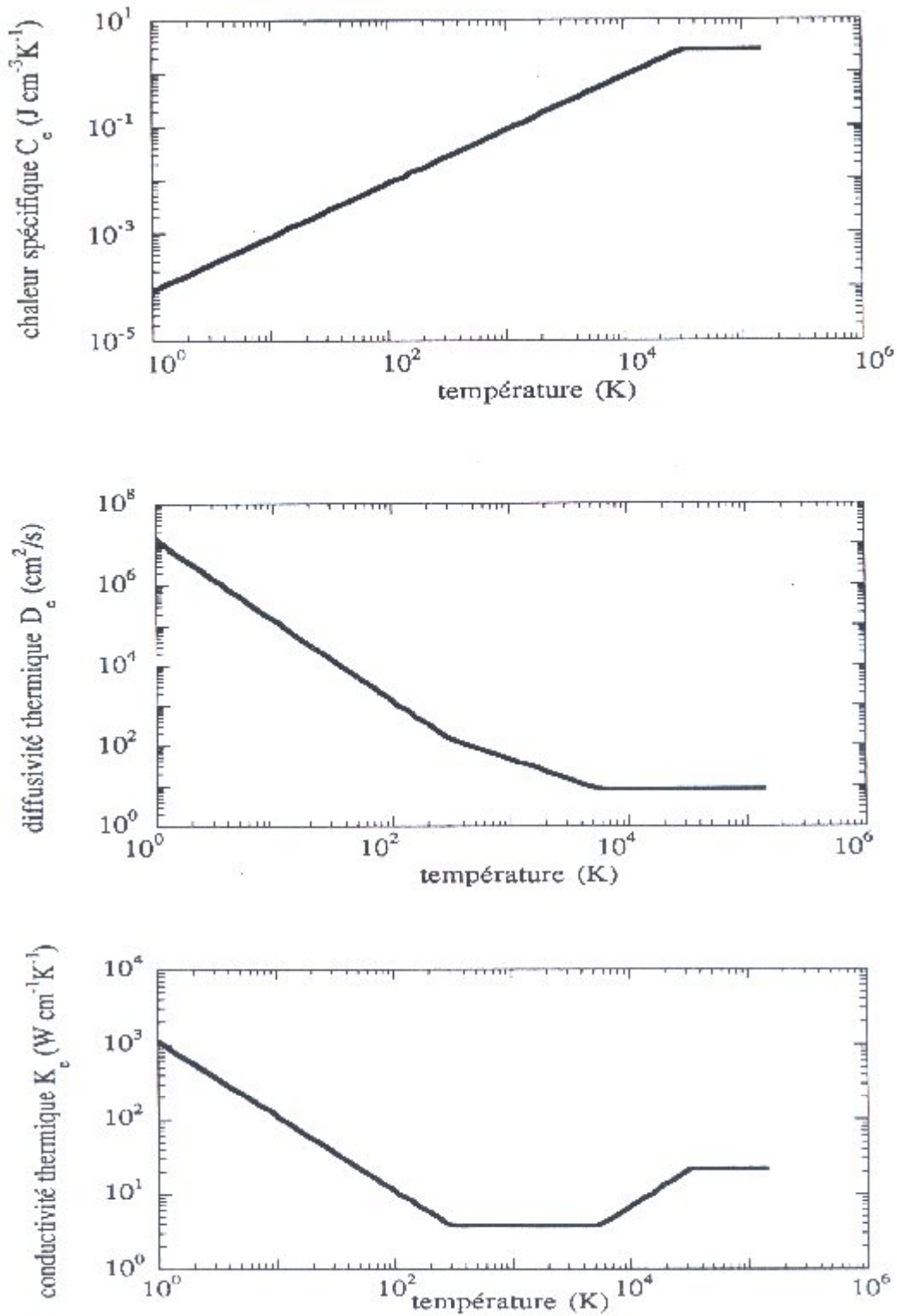


Figure III-4 : Lois de variation des coefficients thermodynamiques du gaz d'électrons dans le cas du bismuth ($D_e = 150\text{ cm}^2/\text{s}$, $D_{e\text{ min}} = 8\text{ cm}^2/\text{s}$).

III.3.2.2. Caractéristiques du sous-système atomique

Dans le cas du sous-système atomique, les valeurs de la conductivité thermique et la capacité spécifique (K_a et C_a) à l'état solide et liquide en fonction de la température sont prises des mesures à l'équilibre. La diffusivité thermique atomique au-delà de la température d'évaporation varie avec la racine carrée de la température ^[Sig 74,75].

III.3.2.3. L'interaction électron – phonon :

L'évaluation ou bien l'établissement de l'expression théorique du couplage électron – phonon n'est pas simple et nécessite de faire appel à la mécanique quantique. Nous avons reporté en détail (voir appendice 2), l'établissement de l'expression finale du couplage électron – phonon suivante :

$$U_{e-ph} \approx g \left[\left(\frac{T_e}{T_D} \right)^5 \int_0^{T_D/T_e} \frac{x^4 dx}{(e^x - 1)} - \left(\frac{T_a}{T_D} \right)^5 \int_0^{T_D/T_a} \frac{x^4 dx}{(e^x - 1)} \right] \quad (III-5)$$

Avec $x = \hbar \omega/kT$, T_D est la température de Debye.

Kaganov et al. ^[Kag 57] ont montré que cette expression (III-6) peut se mettre sous la forme:

$$U_{e-ph} = g (T_e - T_a)$$

g : est la constante de couplage dont on peut donner l'expression dans le cas pratiquement rencontré : La température T_a du réseau est très inférieure à celle du gaz électronique T_e :

$$g = \frac{\pi^2}{6} \frac{m_e s^2 n_a}{\tau_e(T_e) T_e} \quad (III-6)$$

où :

s : la vitesse du son dans le métal reliée à la température de Debye T_D et la densité atomique n_a par la relation : $s = k_B T_D / \hbar (6\pi^2 n_a)^{1/3}$

$\tau_e(T_e)$: le temps d'interaction électron-électron à la température T_e . En effet, la détermination de $\tau_e(T_e)$ est très difficile. Pour contourner cette difficulté, $\tau_e(T_e)$ est relié à la conductivité électrique $\sigma_e(T_e)$ ^[Ash 76] du métal étudié comme suit : $\sigma_e(T_e) = \frac{n_e \tau(T_e) e^2}{m_e}$,

En intégrant cette valeur dans III-6, l'expression de g peut être réécrite sous la forme :

$$g = \frac{\pi^4 (k_B n_e s)^2}{18 L \sigma_e (T_e) T_e}$$

Où L est le nombre de Lorentz ($L = \frac{\pi^2}{3} (\frac{k_B}{e})^2$). En utilisant la loi de Wiedemann- Franz :

$K_e(T_e) = L \sigma_e (T_e) T_e$, g peut être relié à la conductivité thermique comme suit :

$$g = \frac{\pi^4 (k_B n_e s)^2}{18 K_e (T_e)} \quad (\text{III-7})$$

Nous allons prendre en considération la dépendance de g, en fonction de la température, en utilisant implicitement les valeurs mesurées de la conductivité thermique du métal étudié. Ceci signifie que nous supposons que $K_e(T_e) = K(T)$ afin de prendre en compte les propriétés spécifiques du métal irradié. K est la conductivité thermique totale et T la température du métal.

III.3.2.4. La répartition spatio-temporelle du dépôt d'énergie A(r, t) et B(r, t)

a- Le dépôt sur les électrons : A(r, t)

Le dépôt d'énergie de l'ion sur le système électronique s'étend radialement à partir de l'impact de l'ion par l'éjection d'électrons primaires et secondaires. Le dépôt d'énergie S_e (en keV/Å) sur cette tranche est une donnée du faisceau. Or ce dépôt n'est ni instantané, ni ponctuel. Il convient donc de modéliser sa répartition sur la surface et dans le temps. Au rayon r et à l'instant t, A(r, t) peut s'écrire sous la forme :

$$A(r, t) = S_e \cdot F_e(t) G_e(r) \quad (\text{III-8})$$

$F_e(t)$ et $G_e(r)$ sont respectivement la fonction de distribution gaussienne en temps et la fonction de distribution spatiale de l'énergie des électrons delta déposés dans la matière.

- La dépendance en temps :

L'énergie moyenne $\langle E_2 \rangle$ transmise aux électrons pendant le ralentissement est déduite de la relation :

$$\langle E_2 \rangle = \frac{\int E_2 \sigma(E_1, E_2) dE_2}{\int \sigma(E_1, E_2) dE_2}$$

Où $\sigma(E_1, E_2)$ est la section efficace de Rutherford. Appliquée dans le cas des ions du GANIL, l'énergie moyenne des électrons est de l'ordre de 500 eV. Gervais ^[GER 92] a montré qu'un électron de 500 eV peut être ralenti par interaction avec les électrons pour atteindre l'énergie de Fermi en un temps de l'ordre de 10^{-15} s. Nous supposons que ce temps correspond au temps de dépôt d'énergie sur l'ensemble des électrons. Les expériences lasers femtosecondes ^[MOU 90, MIL 88] montrent que ces électrons interagissent entre eux en un temps de l'ordre de 10^{-16} s beaucoup plus court que le temps du dépôt. On peut ainsi supposer qu'en 10^{-15} s, l'énergie déposée sur les électrons est thermalisée. Pour ces raisons, le terme d'énergie dépendra du temps par une fonction gaussienne centrée sur $t_0 = 10^{-15}$ s d'écart type σ tel que : $\sigma = t_0 = 10^{-15}$ s comme suit :

$$F(t) = \frac{c_1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left[\frac{-(t-t_0)^2}{2\sigma^2}\right] \quad (\text{III-9})$$

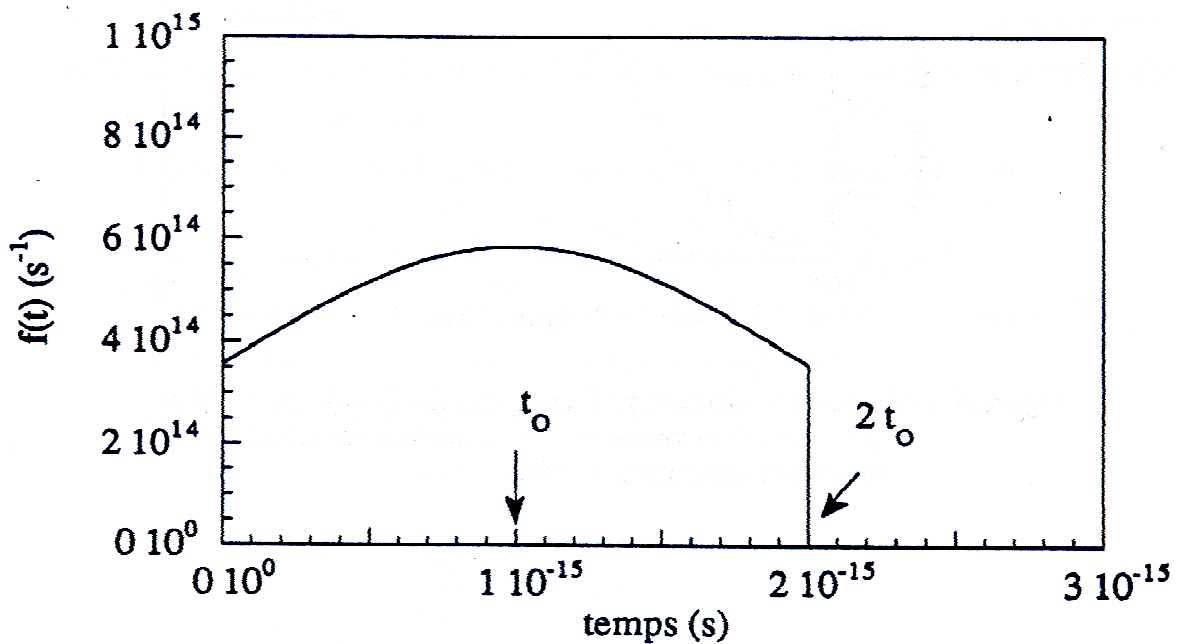


Figure III-5 : Le terme de la dépendance en fonction du temps $F(t)$ du dépôt d'énergie sur les électrons

- Dépendance spatiale :

Des calculs Monte Carlo de distribution radiale de dose ont été menés dans l'eau (liquide) d'abord ^[Kat 69] puis dans certains gaz, pour des protons dont l'énergie incidente se situe dans une grande gamme [01 à 1000 MeV]. Une représentation analytique basée sur ces résultats numériques et sur des formules semi empiriques a été développée avec succès dans ces matériaux dans la mesure où l'intégration radiale de ce dépôt d'énergie redonne la valeur correcte du ralentissement des protons. Ce calcul a été étendu pour des ions lourds dans quelques solides. La forme spatiale du dépôt d'énergie est dans cette théorie donnée par l'expression de la dose $D(r)$ (énergie reçue par unité de volume à la distance r du passage de l'ion).

$$F_{Walig} = \int_{r_{min}}^r 2\pi r D(r) dr / \int_{r_{min}}^{r_{max}} 2\pi r D(r) dr$$

La formulation complexe de $D(r)$ nous amène dans le cadre du modèle thermique à trouver une expression simplifiée du dépôt d'énergie n'incluant qu'un paramètre r_0 interprété comme l'expansion du dépôt initial. Cette expression est la suivante, où c_2 est une constante de normalisation :

$$D(r) = \frac{c_2 e^{-r/r_0}}{2\pi r}$$

L'énergie totale reçue est donnée par : $E_t = \int_0^{\infty} 2\pi r D(r) dr = c_2 r_0$

La fraction d'énergie déposée sur un cylindre de rayon R est représentée figure III-6 :

$$F = \frac{\int_0^R \frac{c_2 e^{-r/r_0}}{2\pi r} 2\pi r dr}{E_t} = 1 - e^{-R/r_0} \quad (\text{III-10})$$

10)

Si on compare les deux formes analytiques de ce dépôt, on constate qu'en donnant à r_0 une valeur de l'ordre de 25 Å, F et F_{Walig} sont sensiblement égaux dans la plage [0-1000Å] (figure III-7).

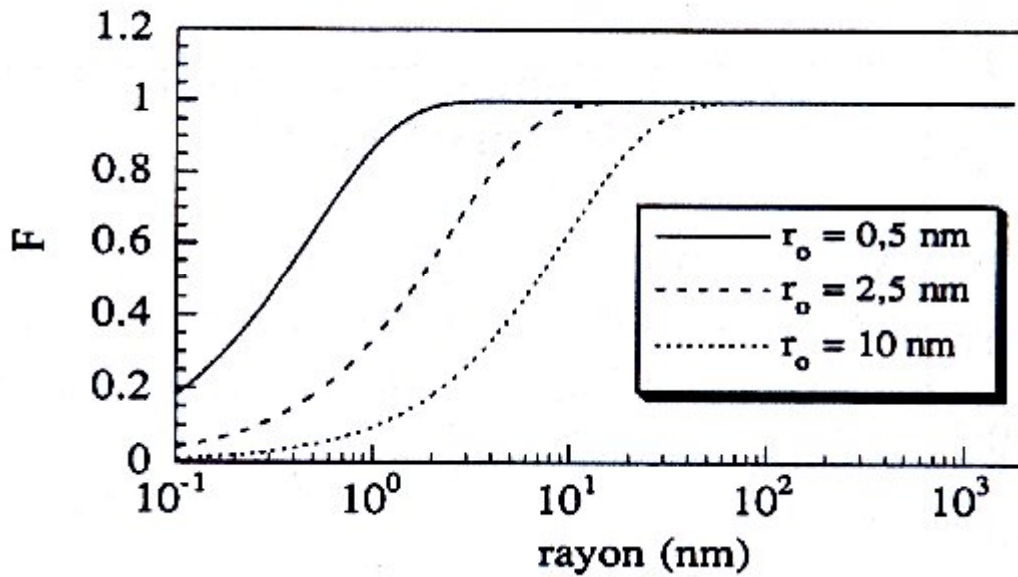


Figure III-6 : Rapport F entre l'énergie déposée par une particule à la distance r de l'axe de sa trajectoire et l'énergie déposée (fonction approchée utilisée dans le calcul numérique) pour plusieurs valeurs de r_0 .

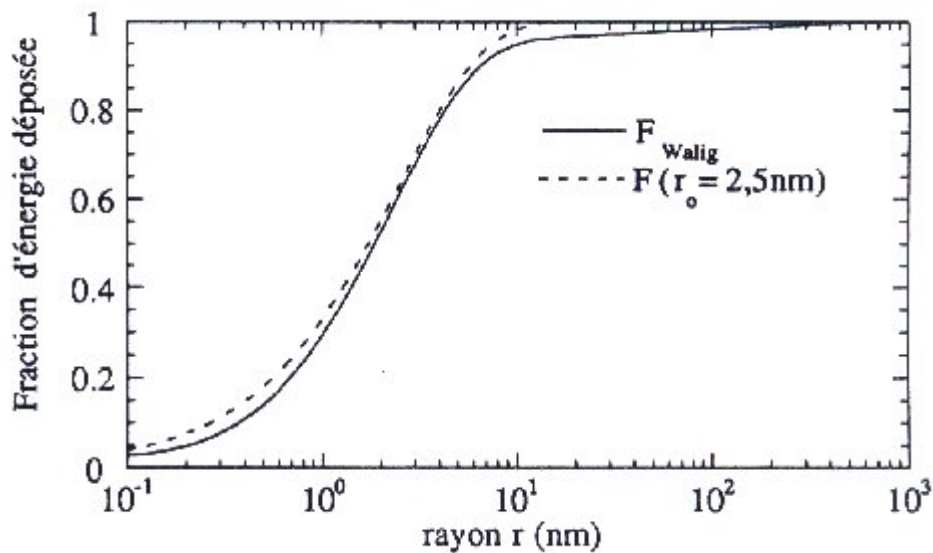


Figure III-7 : Comparaison entre F_{walig} et F (donnée par la formule (III-10) pour $r_0 = 2.5$) nm

Le dépôt $A(r, t)$ prendra donc la forme suivante dans nos calculs :

$$A(r, t) = S_e \cdot \frac{c_2}{2\pi r \Delta r} \exp\left(-\frac{r}{r_0}\right) \cdot \frac{c_1}{\sigma \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(t-t_0)}{2\sigma^2}\right)$$

Nous choisissons un temps de coupure égale à $2t_0$. Pour $t > 2t_0$, $A(r, t) = 0$.

Les constantes c_1 et c_2 sont choisies de telle sorte que :

$$\int A(r, t) 2\pi r dr dt = S_e$$

C'est-à-dire :

$$\int_0^{\infty} \frac{c_2 \exp\left(-\frac{r}{r_0}\right)}{2\pi r \Delta r} 2\pi r dr = 1$$

$$\int_0^{2t_0} \frac{c_1}{\sigma \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(t-t_0)}{2\sigma^2}\right) dt = 1$$

b- Le dépôt sur les atomes : $B(r, t)$

Le fait que les résultats expérimentaux suggèrent l'importance du dépôt d'énergie nucléaire, l'énergie des cascades de collision a été prise en considération dans l'échauffement du réseau ^[Hof 91] et ^[Mie 03]. Par analogie à la distribution de la densité d'énergie électronique, on prendra la forme de $B(r, t)$ comme suit ^[Mie 03] :

$$B(r, t) = b_n S_n G_n(t) F_n(r)$$

Où :

- b_n est la constante de normalisation telle que : $\int B(r, t) 2\pi r dr dt = S_n$

- La dépendance du temps $G_n(t)$ a la forme : $G_n(t) = \exp(-t/\tau)$,

La constante τ est peut être estimée à partir de l'énergie moyenne et le parcours de la cascade. D'après les simulations faites par le code TRIM-SP, quelques keV sont déposés pour chaque atome résultant en un parcours de 10 Å. Ceci donne un temps de déposition τ entre 10^{-13} et 10^{-14} en accord avec Sigmund ^[Sig 75].

- La fonction de distribution spatiale $F_n(r)$ a la forme : $F_n(r) = \frac{1}{r} \cdot \exp(-r/R_0)$

R_0 est le rayon de la pointe où 66% de l'énergie nucléaire totale est déposée. Dans le régime des hautes énergies, $\langle T \rangle$ l'énergie moyenne transférée à un atome cible peut être calculée à

partir de la diffusion élastique ^[Léh 77]. Dans le cas de la pulvérisation de l'or irradié par des ions Au, $\langle T \rangle$ varie de 9keV pour une énergie 10 MeV à 230 eV pour une énergie 300 MeV. En supposant qu'à basse énergie, les atomes sont principalement émis perpendiculairement à la trajectoire, on obtient les valeurs de R_0 variant entre 6 Å et 27 Å.

III-4. La résolution mathématique :

Plusieurs méthodes sont utilisées pour la résolution de ce type d'équations différentielles. Les deux méthodes suivantes sont les plus utilisées :

III.4.1. La méthode explicite :

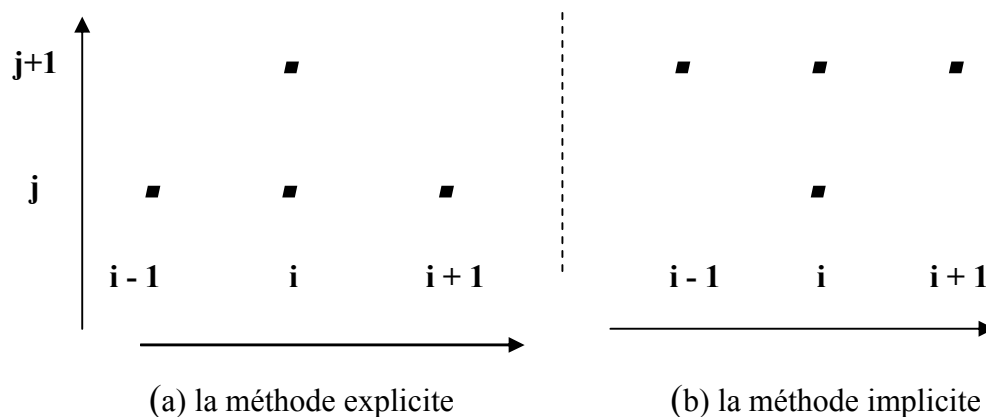
Dans cette méthode, le système initial (équations...) est discrétisé en faisant apparaître les températures connues à l'instant $t + \Delta t$ en fonction des températures inconnues à l'instant t . Cette méthode est rapide, mais instable si le pas de temps n'est pas suffisamment petit. Le choix du pas d'espace Δr et de temps Δt doit obéir à la condition de convergence suivante :

$$\Delta t < \frac{\Delta r^2}{2D}, \quad \text{où } D = \frac{K}{C}$$

A cause de ces contraintes, nous avons opté pour la méthode implicite.

III.4.2. La méthode implicite :

Cette méthode consiste à faire apparaître les températures connues à l'instant t en fonction des températures inconnues à l'instant $t + \Delta t$. Elle est universellement stable (le facteur limitant Δt concerne les erreurs de troncature). Cette méthode aboutit à une écriture matricielle simple que l'on résout par la méthode du double balayage de Choleski. Le schéma suivant illustre le principe des deux méthodes.



Où : j est l'indice de temps

i est l'indice de l'espace

III-5. La discrétisation :

Nous allons montrer en détail la procédure suivie pour la résolution numérique du système d'équations différentielles couplées pour les matériaux massifs. Ensuite, on parlera de la méthode suivie dans le cas des multicouches.

III.5.1.. Le code pour les matériaux massifs :

On convient de la notation indicielle suivante :

i : l'indice d'espace

j : l'indice de temps

Les pas d'espace Δr et du temps Δt définissent les rayons et les instants considérés :

$$r_i = (i - 0.5) \Delta r$$

$$t_j = j \Delta t$$

L'indice i varie de 1 à N_r , valeur maximale qui définit le rayon du cylindre exploré par le calcul et l'indice j varie de 1 à N_t . La durée sur laquelle, on calcule les températures est : $N_t \Delta t$.

Dans ce qui suit, T_e et T_a seront remplacées par T dans les équations de III-3 qui se discrétisent de la façon suivante :

$$\text{En utilisant les différences à droite pour } t, \frac{\partial T}{\partial t} \text{ devient : } \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{(T_i^{j+1} - T_i^j)}{\Delta t}$$

$$\text{Et en utilisant les différences centrées sur } r, \text{ on obtient : } \frac{\partial T}{\partial r} = \frac{(T_{i+1}^{j+1} - T_{i-1}^{j+1})}{2 \Delta r}$$

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(k \frac{\partial T}{\partial r} \right) = \frac{\partial}{\partial r} \left(k_i \frac{T_{i+1}^{j+1} - T_{i-1}^{j+1}}{2 \Delta r} \right)$$

En remplaçant le symbole de dérivée par le symbole des différences finies à droite, nous obtenons :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial r} \left(K \frac{\partial T}{\partial r} \right) &= \frac{\nabla K_i}{\Delta r} \left(\frac{T_{i+1}^{j+1} - T_{i-1}^{j+1}}{2 \Delta r} \right) + K_i \nabla \left(\frac{T_{i+1}^{j+1} - T_{i-1}^{j+1}}{2 \Delta r^2} \right) \\ &= \frac{K_{i+1}^j}{2 \Delta r^2} (T_{i+1}^{j+1} - T_i^{j+1}) - \frac{K_{i-1}^j}{2 \Delta r^2} (T_i^{j+1} - T_{i-1}^{j+1}) + \frac{K_i^j}{2 \Delta r^2} (T_{i+1}^{j+1} - 2T_i^{j+1} + T_{i-1}^{j+1}) \end{aligned}$$

Ces relations appliquées au système d'équations différentielles (III-3) permettent d'écrire les deux équations sous la forme :

$$a_i T_{i-1}^{j+1} + b_i T_i^{j+1} + c_i T_{i+1}^{j+1} = d_i \quad \text{III-11}$$

où les coefficients a_i , b_i , c_i et d_i sont définis en fonction des résultats du calcul à l'instant j .

$$a_i = -\frac{1}{2C_i^j \Delta r^2} (k_i^j + k_{i-1}^j - \frac{k_i^j}{(i-0.5)})$$

$$b_i = -(\frac{C_i^j}{\Delta t} + \frac{1}{2\Delta r^2} (k_{i+1}^j + 2k_i^j + k_{i-1}^j))$$

$$c_i = \frac{1}{2C_i^j \Delta r^2} (k_{i+1}^j + k_i^j + \frac{k_i^j}{(i-0.5)})$$

Ces expressions sont valables aussi bien pour les phonons que pour les électrons, en remplaçant K_i^j par $K_e(T_{e_i}^j)$ ou $K_a(T_{a_i}^j)$ et C_i^j par $C_e(T_{e_i}^j)$ ou $C_a(T_{a_i}^j)$.

$$d_i = -\frac{T_{a_i}^j}{\Delta t} - \frac{g(T_{e_i}^j - T_{a_i}^j)}{C_{a_i}^j} - \frac{B_i^j}{C_{a_i}^j} \quad \text{pour les phonons}$$

$$d_i = -\frac{T_{e_i}^j}{\Delta t} + \frac{g(T_{e_i}^j - T_{a_i}^j)}{C_{e_i}^j} - \frac{A_i^j}{C_{e_i}^j} \quad \text{pour les électrons}$$

Pour simplifier les écritures, on pose $y_i = T_i^{j+1}$ et on obtient l'expression suivante :

$$a_i y_{i-1} + b_i y_i + c_i y_{i+1} = d_i$$

Ce système peut être écrit sous la forme d'un produit de matrice de type :

$$\begin{pmatrix} b_1 & c_1 & . & . & . & . & . & . \\ a_2 & b_2 & c_2 & . & . & . & . & . \\ . & . & . & . & . & . & . & . \\ . & . & a_i & b_i & c_i & . & . & . \\ . & . & . & . & . & . & . & . \\ . & . & . & . & a_{n-1} & b_{n-1} & c_{n-1} & . \\ . & . & . & . & . & a_n & b_n & . \end{pmatrix} \begin{pmatrix} y_1 \\ y_2 \\ . \\ y_i \\ . \\ y_{n-1} \\ y_n \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_1 \\ d_2 \\ . \\ d_i \\ . \\ d_{n-1} \\ d_n \end{pmatrix}$$

Où n est le nombre de pas radial (couche) introduit dans le calcul.

L'algorithme de Choleski nous permet de tirer les températures inconnues à l'instant $j+1$ en fonction des températures connues à l'instant j (dans l'expression de d_i). La première équation du système donne :

$$b_1 y_1 + c_1 y_2 = d_1 \Rightarrow y_1 = \frac{(d_1 - c_1 y_2)}{b_1} \quad (\text{III-12})$$

La seconde équation du système permet d'écrire

$$a_2 y_1 + b_2 y_2 + c_2 y_3 = d_2 \Rightarrow y_2 = \frac{(d_2 - a_2 y_1 - c_2 y_3)}{b_2} \quad (\text{III-13})$$

En injectant (III-12) dans (III-13), nous obtenons y_2 en fonction de y_3 :

$$y_2 = -\frac{c_2 b_1}{b_1 b_2 - c_1 a_2} y_3 + \frac{b_1 d_2 - d_1 a_2}{b_1 b_2 - c_1 a_2}$$

D'une manière générale, la relation de récurrence s'écrit : $y_i = A_i y_{i+1} + B_i$

$$\text{Avec} \quad A_i = -\frac{c_i}{a_i A_{i-1} + b_i} \quad (\text{III-14})$$

$$B_i = \frac{d_i - a_i B_{i-1}}{a_i A_{i-1} + b_i} \quad (\text{III-15})$$

Le but du premier balayage consiste à déterminer tous les éléments des suites A_i et B_i . Reste à traiter les conditions aux limites ($i=1$ et $i=N_r$) qui vont déterminer l'ensemble des températures y_i par un " balayage " effectué dans le sens des indices i décroissants.

- $i = N_r$ correspond à la limite extérieure du cylindre exploré par le calcul. Pour que le calcul puisse s'arrêter, il faut éviter l'utilisation d'un indice supérieur à N_r pour les y_i d'où :

$$A_{N_r} = 0 \quad \text{soit} \quad c_{N_r} = 0$$

B_{N_r} est connue par la relation de récurrence et dépend de B_1

- $i = 1$, l'équation de diffusion provenant du bilan énergétique vu plus haut n'est plus valable. En effet, pour le cœur du cylindre figure (III-8), il n'y a diffusion de chaleur qu'à travers une seule paroi. Ce qui n'était pas le cas pour une tranche cylindrique. Il n'apparaît donc pas de dérivée seconde par rapport à r (coordonnée radiale). Le bilan est le suivant :

$$\text{- Variation d'énergie du cœur de rayon } \Delta r : C \frac{\partial T}{\partial t} \pi \Delta r^2 \Delta x$$

- Transfert d'énergie par conduction thermique à travers la paroi de surface dS :

$$K \frac{\partial T}{\partial r} 2\pi \Delta r \Delta x$$

Le transfert d'énergie par couplage électron-phonon et l'apport d'énergie par l'ion incident gardent la même forme que celle des autres tranches cylindriques.

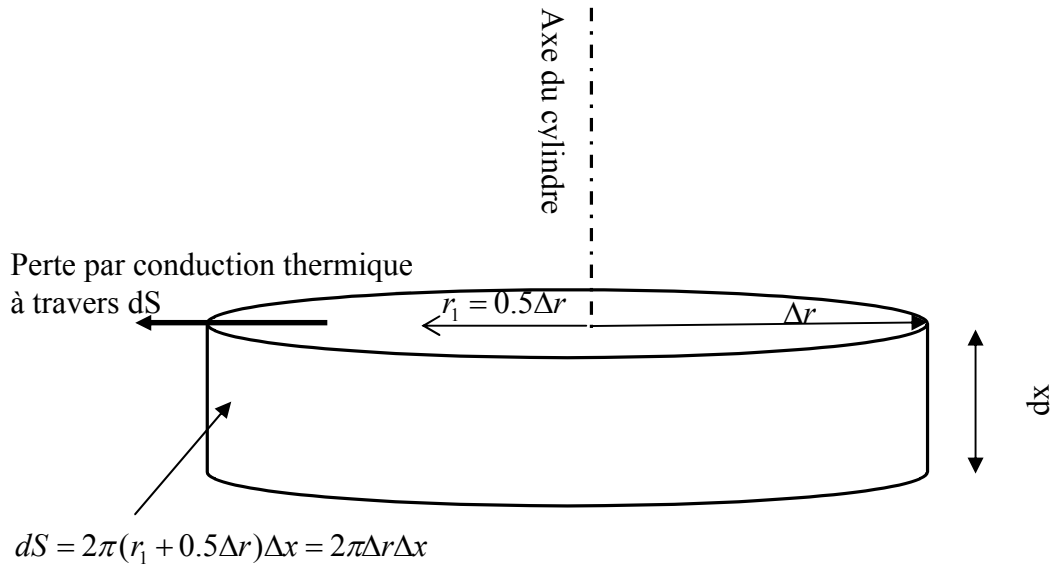


Figure (III-8) : Bilan d'énergie pour le cœur de la trace

Le système s'écrit maintenant, en raisonnant par unité de volume :

$$\begin{cases} C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{2k_e}{\Delta r} \frac{\partial T_e}{\partial r} - g(T_e - T_a) + A(r, t) \\ C_a \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{2k_a}{\Delta r} \frac{\partial T_a}{\partial r} + g(T_e - T_a) \end{cases}$$

On remplace les dérivées spatiales et temporelles par les expressions ci-dessous :

$$\frac{\partial T}{\partial t} \approx \frac{T_1^{j+1} - T_1^j}{\Delta t} \quad \text{et} \quad \frac{\partial T}{\partial r} \approx \frac{T_2^{j+1} - T_1^{j+1}}{\Delta r}$$

Et on déduit, de ces expressions, les valeurs de a_1 , b_1 , c_1 et d_1 :

$$a_1 = 0, \quad b_1 = -\frac{2k_1^j}{C\Delta r^2} - \frac{1}{\Delta t}, \quad c_1 = \frac{2k_1^j}{C\Delta r^2}$$

d_1 est définie de la même manière que pour les autres tranches d'où :

$$A_1 = -c_1/b_1 ; \quad B_1 = d_1/b_1$$

Les équations (III-14) et (III-15) nous permettent de calculer aisément de proche en proche les couples (A_2, B_2) (A_i, B_i) ..etc....Le calcul des coefficients A_i, B_i est donc rendu possible, en un premier balayage de $i = 2$ à N_r .

Le second balayage s'effectue de N_r à 1. Ce qui va nous permettre de calculer les inconnues y_i . Il suffit de constater que :

$$a_{N_r} y_{N_r-1} + b_{N_r} y_{N_r} = d_{N_r} \quad \text{et} \quad y_{N_r-1} = A_{N_r-1} y_{N_r} + B_{N_r-1}$$

$$\text{Soit après calcul : } y_{N_r} = \frac{d_{N_r} - a_{N_r} B_{N_r-1}}{a_{N_r} A_{N_r-1} + b_{N_r}} = B_{N_r}$$

B_{N_r} ayant été déterminé lors du premier balayage, nous avons ainsi la valeur de y_{N_r} cherchée. Nous déduisons $y_{N_r-1} = A_{N_r-1} y_{N_r} + B_{N_r-1}$ puis y_{N_r-2} jusqu'à y_1 de proche en proche. Après ce double balayage, les températures sont connues à l'instant $j + 1$.

En procédant ainsi, l'évolution des températures dans le temps et dans l'espace est réalisée. Notons que lorsque la température de fusion est atteinte et que le calcul de l'instant ultérieur donne une température supérieure à la température de fusion, nous transformons le Δt observé en quantité de chaleur $C \Delta T$ que l'on stocke dans une variable test. Tant que cette variable n'atteint pas la chaleur latente de fusion, la température reste égale à la température de fusion. Le palier de température étant franchi, le calcul continue de manière analogue à la première étape en utilisant les coefficients thermodynamiques du liquide.

Signalons aussi que la méthode implicite n'est pas adaptée aux changements de phase. Pour cela, nous utilisons un calcul par la méthode explicite pour déterminer la chaleur reçue et perdue lors des changements de phase. Comme nous l'avons vu, la méthode implicite discrétise l'équation considérée à l'instant $t + \Delta t$. Le terme de couplage $g[T_e(r, t + \Delta t) - T_a(r, t + \Delta t)]$ est ici inexploitable car $T_e(r, t + \Delta t)$ et $T_a(r, t + \Delta t)$ sont encore inconnues. Pour cela, nous l'avons pris égal à $g [T_e(r, t) - T_a(r, t)]$. Ce qui revient à faire le même raisonnement que pour la méthode explicite.

III.5.2. Le code pour multicouches :

L'idée utilisée pour la résolution du système III-4 est de faire un double balayage. C'est-à-dire on s'occupe d'abord du transfert d'énergie dans le sens radial (par analogie au code pour massifs) puis on s'occupe du transfert dans le sens des x. C'est-à-dire, pour un instant donné. Les températures calculées sont considérées alors comme des températures intermédiaires à partir desquelles on peut traiter la diffusion axiale.

En effet, la méthode utilisée pour la résolution numérique de la diffusion axiale dans nos calculs est la méthode implicite.

Soit « j » l'indice temporel, « i » l'indice radial et « x » l'indice de profondeur.

Le bilan de transfert d'énergie dans la direction axiale pendant l'intervalle de temps dt s'écrit comme suit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_x}{\partial t} &= C_x^j \frac{\partial T_x}{\partial t} dS dx = C_x^j \frac{T_x^{j+1} - T_x^j}{dt} dS dx \\ &= \frac{K_{x-1} + K_x}{2} \left(\frac{T_{x-1}^{j+1} - T_x^{j+1}}{dx} \right) dS - \frac{K_x + K_{x+1}}{2} \left(\frac{T_{x+1}^{j+1} - T_x^{j+1}}{dx} \right) dS \end{aligned}$$

Sachant que $dS = 2\pi r_i dr = 2\pi(i-0.5)dr^2$, on obtient l'égalité suivante :

$$C_x^j \frac{T_x^{j+1} - T_x^j}{dt} dS dx = \left[\frac{K_{x-1} + K_x}{2} \left(\frac{T_{x-1}^{j+1} - T_x^{j+1}}{dx} \right) - \frac{K_x + K_{x+1}}{2} \left(\frac{T_{x+1}^{j+1} - T_x^{j+1}}{dx} \right) \right] dS$$

D'où on peut exprimer la température T_x^j en fonction des températures à l'instant j+1 :

$$-\frac{T_x^j}{dt} = \left[\frac{K_{x-1}^j + K_x^j}{2C_x^j dx^2} \right] T_{x-1}^{j+1} + \left[\frac{-1}{dt} - \frac{K_{x-1}^j + 2K_x^j + K_{x+1}^j}{2C_x^j dx^2} \right] T_x^{j+1} + \left[\frac{K_x^j + K_{x+1}^j}{2C_x^j dx^2} \right] T_{x+1}^{j+1}$$

Pour simplifier, on l'écrit à l'instant j+1 :

$$d_x = a_x T_{x-1} + b_x T_x + c_x T_{x+1}$$

Cette équation est valable que ce soit pour les électrons ou bien pour les atomes. En faisant varier l'indice x de 1 à m, on obtient un système de m équations. Où m est le nombre de pas axiale introduit dans le calcul.

Ce système peut être écrit sous la forme d'un produit de matrice de type :

$$\begin{pmatrix} b_1 & c_1 & . & . & . & . & . & . \\ a_2 & b_2 & c_2 & . & . & . & . & . \\ . & . & . & . & . & . & . & . \\ . & . & a_x & b_x & c_x & . & . & . \\ . & . & . & . & . & . & . & . \\ . & . & . & . & a_{m-1} & b_{m-1} & c_{m-1} & . \\ . & . & . & . & . & a_m & b_m & . \end{pmatrix} \begin{pmatrix} T_1 \\ T_2 \\ . \\ T_x \\ . \\ T_{m-1} \\ T_m \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_1 \\ d_2 \\ . \\ d_x \\ . \\ d_{m-1} \\ d_m \end{pmatrix}$$

En utilisant l'algorithme de Choleski, nous pouvons tirer les températures inconnues à l'instant $j+1$ en fonction des températures connues à l'instant j (dans l'expression de d_i). On obtient alors la relation de récurrence suivante :

$$T_x = A_x T_{x+1} + B_x$$

Avec :

$$A_x = -\frac{c_x}{a_x A_{x-1} + b_x}$$

$$B_x = \frac{d_x - a_x B_{x-1}}{a_x A_{x-1} + b_x}$$

Un premier balayage consiste à déterminer tous les éléments des suites A_x et B_x . Reste à traiter les conditions aux limites $x = 1$ et $x = m+1$.

Pour $x = 1$: Cette couche est en contact avec l'air (ou le vide). On suppose qu'il n'y a pas de conduction thermique avec l'air à la surface.

Pour $x = m+1$: Il existe deux choix : soit qu'on suppose que la couche $m+1$ est isolé ou bien non.

III.6. Choix de la taille du cylindre (rayon $N_r \Delta r$) et de la durée explorés :

Dans le cadre de la méthode implicite, aucune condition de convergence n'est nécessaire. Cependant, il ne suffit pas de satisfaire à la condition de convergence pour obtenir un couple $(\Delta r, \Delta t)$ judicieux. Dans la pratique, nous constatons un mauvais choix du couple $(\Delta r, \Delta t)$ lorsque nous observons :

- Des oscillations de $T(x, r, t)$ en fonction de x et r .
- Que l'énergie totale apportée par l'ion et celle absorbée par le réseau sont différentes.

a- Le Choix de Δr : Ce choix dépend de la taille du cylindre d'une part et d'autre part de la valeur de r_0 utilisée. La première source d'erreur possible vient du fait que la constante c_2 normalise l'intégrale spatiale du dépôt d'énergie pour un rayon r allant de 0 à ∞ . Or, le calcul s'arrête pratiquement à $N_r \Delta r$. La figure (III-9) montre le rapport de la valeur calculée à la valeur réelle de l'énergie déposée. Deux constatations s'imposent :

- 1) Plus N_r est grand, plus le calcul est précis.
- 2) Quel que soit le nombre de pas d'espace N_r choisi, si le rapport $\Delta r/r_0$ dépasse 0.2, il engendre une erreur relative comprise entre 10 et 50% dans la sommation de l'énergie déposée.

Dans tous les calculs dont nous présenterons les résultats, la valeur de r_0 choisie pour les électrons est égale à 25 Å. Pour satisfaire à la deuxième constatation, Δr doit être au minimum égale à 5 Å.

Figure III-9 : Rapport $E_{\text{calc}}/E_{\text{réelle}}$ en fonction du pas d'espace Δr , de la largeur r_0 du dépôt d'énergie $A(r, t)$ et du nombre N de pas d'espace calculés.

b- Le choix de Δt : Il dépend des paramètres t_0 et Δt_0 du dépôt d'énergie et de la valeur du couplage (C_e/g a la dimension d'un temps). On adopte la règle suivante :

Pendant la durée du dépôt d'énergie par l'ion et jusqu'à $100 \Delta t_0$: $\Delta t = 5 \cdot 10^{-18} \text{s}$, ultérieurement : $\Delta t = 5 \cdot 10^{-16} \text{s}$.

Le calcul est mené jusqu'à 10^{-11}s temps au bout duquel, l'énergie étant entièrement relaxée, les deux systèmes (électrons et phonons) sont revenus à l'équilibre entre eux.

Ces critères de choix doivent finalement réaliser la condition suivante : l'expansion de l'énergie sur le gaz d'électrons doit se faire dans un cylindre de rayon plus faible que r_{\max} , rayon du cylindre exploré dans le calcul ($r_{\max} = N_r \Delta r$).

$$r_{\max}^2 \gg 4D_e t_{\max}$$

III.7. Le super échauffement (superheating) :

Des expériences d'irradiation avec des lasers pulsés ont montré que le phénomène de super échauffement peut avoir lieu lors des dépôts très rapides d'énergie sur les atomes du réseau. C'est-à-dire que la durée du palier de transformation de phase solide-liquide diminue considérablement avec la vitesse du dépôt d'énergie jusqu'à ce que la fusion puisse avoir lieu sans palier. Tous les codes disponibles de notre modèle tiennent compte de l'existence de ce palier (voir page 76 de ce chapitre).

Dans notre étude, nous considérerons ce phénomène de super échauffement. Nous allons simplement introduire des hautes valeurs de la température de fusion et d'évaporation, de telle façon que nous soyons sûrs que le test de changement de phase n'aura pas lieu. En générale, on prend $T_{\text{fusion}} = T_{\text{évaporation}} = 1000000 \text{ K}$. Sachant que les températures atomiques atteintes sont de l'ordre de quelques milliers de Kelvin.

III.8. Données d'entrée (input data) dans le calcul numérique :

- Les valeurs de la conductivité thermique et la chaleur spécifique du réseau atomique des différents métaux étudiés ont été prises des résultats de mesure pour différentes valeurs de température (voir appendice 3). Pour $T > T_{\text{fusion}}$, la chaleur spécifique est considérée constante. Pour $T > T_{\text{évaporation}}$, la conductivité thermique est proportionnelle à la racine de la température.

- La température d'irradiation :

Les calculs ont été réalisés à la température ambiante 300K.

- Les pas de calcul : Δx , Δr et Δt

Plusieurs tests ont été effectués afin de choisir les pas des calculs numériques (x , r , t).

Nous avons choisi les valeurs suivantes :

Le pas radial : $\Delta r = 5 \text{ \AA}$.

Le pas d'épaisseur : $\Delta x = 5$ ou 10 \AA .

Le pas de temps : $\Delta t = 2 \cdot 10^{-18} \text{ s}$. Ce pas n'est pas constant durant le calcul. Il augmente avec le temps.

- Volume exploré :

- La direction radial : le nombre total de pas radial N_r a été pris entre 600 et 1000.

- La direction axiale : le nombre de pas dans cette direction dépend de l'épaisseur des différentes couches qui composent la multicouche étudiée ainsi que le pas choisi (5 ou 10 \AA). Les multicouches étudiées se composent d'une bicouche (Métal 1/Métal 2) répétée 15 fois, ensuite déposée sur un substrat de silicium. On ne s'intéresse qu'à la partie centrale de la multicouche (non affectée par les conditions aux limites : le contact avec l'air à la surface et avec le substrat).

- Dans cette étude, nous n'avons considéré que le dépôt sur les électrons (S_e), le dépôt sur les atomes étant négligeable ($S_n \approx 0$).

CHAPITRE IV

Résultats et interprétation [Chet 90]

IV.1. Introduction

Le comportement des métaux massifs (couches épaisses) irradiés aux ions lourds rapides a été décrit dans le deuxième chapitre. Nous avons distingué entre les métaux sensibles et insensibles aux forts dépôts d'énergie sur les électrons, i.e. les métaux susceptibles ou pas à s'endommager à la suite d'une irradiation aux ions lourds rapides. Les résultats de calculs obtenus dans le cadre du modèle de la pointe thermique concernant la sensibilité des métaux massifs aux excitations électroniques sont en bon accord avec les observations expérimentales.

La question qui se pose maintenant : que devient ce comportement lorsque deux métaux de dimensions nanométriques sont mis en contact ? Et que se passe-t-il niveau des interfaces ? Et comment peut-on expliquer le mélange observé à l'interface des certaines multicouches métalliques ?

En effet, peu de travaux expérimentaux ont été réalisés sur les multicouches métalliques irradiées par les ions lourds de haute énergie jusqu'à maintenant. Une seule interprétation a été donnée au mélange qui a été observé ; c'est l'interdiffusion dans les phases liquides (traces latentes) créées par le passage de ces ions. Pour cette raison, nous avons utilisé le modèle de la pointe thermique inélastique étendu aux multicouches pour étudier les transferts d'énergie et les rayons de fusion au niveau des interfaces de plusieurs types de multicouches.

Notre modèle fournit l'évolution de la température électronique $T_e(t, r, z)$ et atomique $T_a(t, r, z)$ en fonction du temps le long du trajet de l'ion (z), pour différentes positions radiales r . On calcule aussi l'énergie transférée par atome $E_{at}(t, r, z)$.

Dans notre étude, nous allons examiner l'influence du dépôt d'énergie avec différentes valeurs de S_e sur le comportement des multicouche. Pour cette raison, nous avons utilisé différents types d'ions : Pb, Xe et Kr d'énergie 3 MeV/u (voir tableau IV-1). Nous allons également étudier l'influence de l'épaisseur des couches ainsi que la constante du couplage électron-phonon.

Pour bien montrer l'effet du transfert d'énergie aux interfaces, nous allons étudier les multicouches composées d'un matériau sensible et un autre insensible aux excitations

électroniques S_e . C'est-à-dire que la relaxation de l'énergie déposée sur les électrons se fait différemment d'une part et d'autre de l'interface.

Dans cette partie, nous présenterons les résultats de calculs que nous avons effectués sur différentes multicouches métalliques.

Métal	$S_e(\text{Pb})$ keV/nm	$S_e(\text{Xe})$ keV/nm	$S_e(\text{Kr})$ keV/nm	La constante de couplage électron- phonon « g » à 300K W/cm ³ /s	Energie nécessaire pour fondre à partir de 300K eV/atome
Fe	58	41	24	1.4×10^{12}	0.75
Al	25	16	32	2×10^{11}	0.29
Au	78	55	11	3×10^{10}	0.43
Ti	36	-	-	1×10^{13}	0.78
Bi	39	-	-	4×10^{11}	0.20
Si	22	-	-	1.8×10^{12} [kuc 03]	0.91

Tableau IV-1 : Les valeurs du pouvoir d'arrêt électronique ^[Bie 80] dans différents types de matériaux irradiés par différentes espèces d'ions d'énergie 3 MeV/u. Les valeurs, de la constante de couplage électron-phonon et l'énergie nécessaire pour fondre pour chaque matériau, sont également reportées.

IV.2. Les systèmes Fer (x nm) / Aluminium (y nm) :

Nous avons étudié la multicouche [Fe(x nm)/Al(y nm)]₁₅ (*c'est-à-dire : une couche de Fe d'épaisseur (x nm) est déposée sur une couche de Al d'épaisseur (y nm) répétée quinze fois*) déposée sur le Silicium (Si). Nous avons choisi des épaisseurs de l'ordre nanométrique, pour le Fer (x = 3, 5 et 7 nm) et pour l'Aluminium (y = 2 et 5 nm). La constante de couplage électron-phonon g est 1.44×10^{12} W/cm³/s pour Fe et 2×10^{11} W/cm³/s pour Al ^[Wan 94]. A l'état massif, le Fer est connu comme sensible aux excitations électroniques S_e (voir chapitre II). Quant à l'Aluminium, il est réputé comme insensible à S_e .

IV.2.1. Les systèmes [Fe(3nm)/Al(y nm)]₁₅

IV.2.1. a. Irradiation aux ions Pb :

Nous commencerons par discuter les résultats de simulation pour la multicouche [Fe(3nm)/Al(2nm)]₁₅ irradiée aux ions Pb.

La figure IV-1 présente l'évolution de la température électronique, en fonction du temps pour différentes distances radiales r pour Fe et Al (IV-1 c et d) à l'interface. Au titre de comparaison, nous avons tracé sur la même figure la température électronique pour Fe et Al à l'état massif (IV-1 a et b). On remarque que la température électronique atteinte dans Al à l'interface est supérieure à celle atteinte dans Al massif. Quant à la température électronique atteinte dans Fe à l'interface, elle est inférieure à celle atteinte dans Fe massif. Enfin, on constate que les températures électroniques de Fe et Al à l'interface sont presque égales.

Afin de comprendre ce comportement, regardons les températures électroniques à l'état massif. Etant donné que le dépôt d'énergie S_e sur les électrons du Fe est plus grand que dans Al (voir tableau 1), la température électronique atteinte dans Fe est plus importante que dans Al. Par conséquent, le gradient de température à l'interface Fe/Al conduit à un transfert d'énergie du sous système électronique du Fe à celui de Al jusqu'à atteindre l'équilibre thermique en $3-5 \times 10^{-15}$ s (voir figure IV-2).

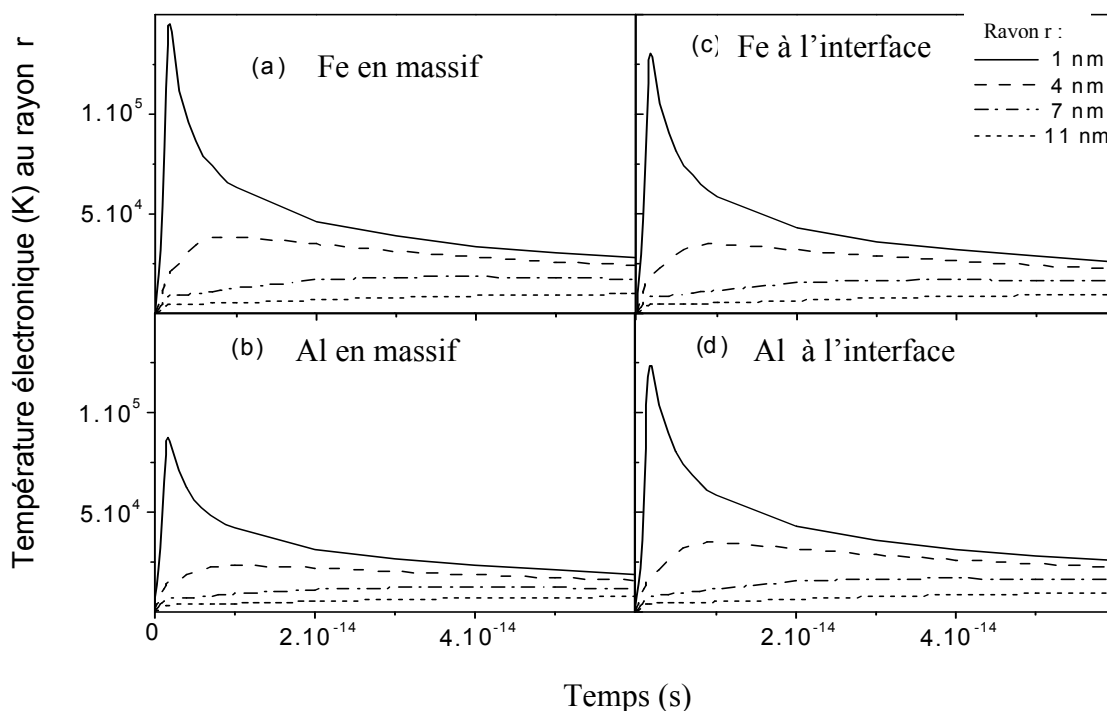


Figure IV-1 : Evolution de la température électronique en fonction du temps à l'interface du système $[\text{Fe}(3 \text{ nm})/\text{Al}(2 \text{ nm})]_{15}$, irradié par des ions Pb d'énergie 3 MeV/u à la température ambiante, comparée à la température électronique en massif, pour différentes distances radiales r .

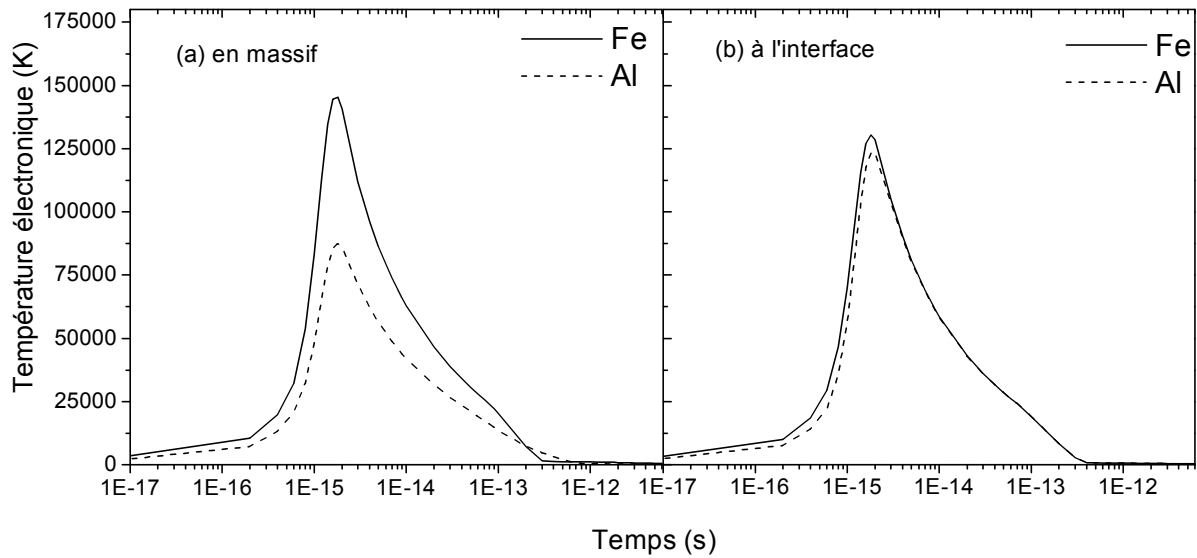


Figure IV-2 : Evolution de la température électronique en fonction du temps pour une distance radiale $r = 1$ nm. (a) dans le Fe et Al massif, (b) dans le Fe et Al à l'interface du système $[\text{Fe}(3 \text{ nm})/\text{Al}(2 \text{ nm})]_{15}$ irradié par les ions plomb d'énergie 3 MeV/u.

Ensuite les électrons thermalisés commencent à céder leur énergie aux atomes par interaction électron-phonon et leur température diminue. Par contre la température atomique commence à augmenter pour atteindre son maximum en $\sim 3\text{-}4 \times 10^{-13}$ s dans les deux métaux. Pour bien suivre ce processus en fonction du temps, nous avons tracé l'évolution de la température électronique et atomique à l'interface dans les deux matériaux en fonction du temps pour une distance radiale donnée (figure IV-3). Les deux sous systèmes électronique et atomique reviennent à l'équilibre vers $\sim 10^{-11}$ s et regagnent leur température initiale (300 K).

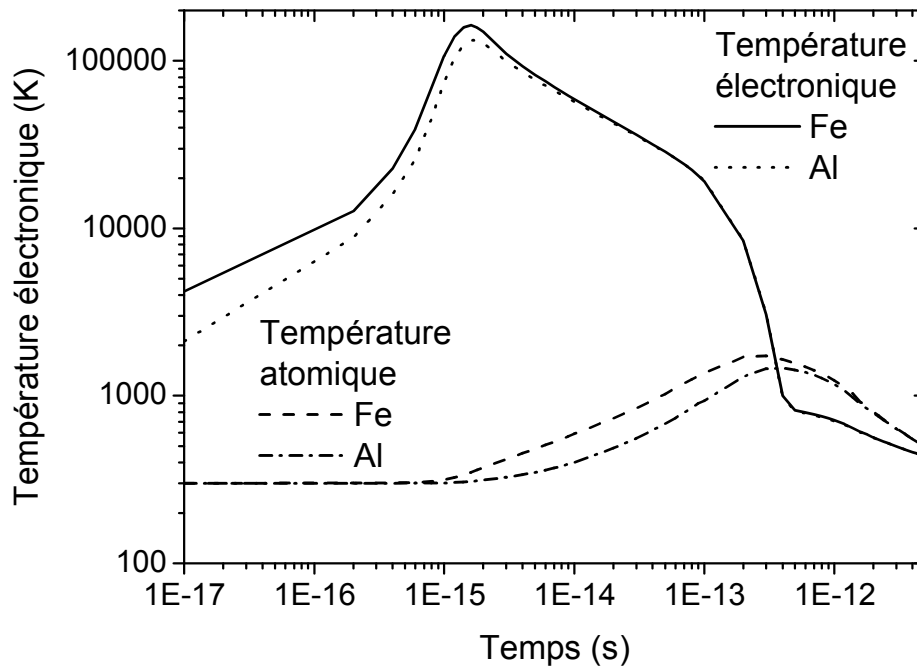


Figure IV-3 : Evolution de la température électronique et atomique en fonction du temps dans le Fe et Al à l'interface du système $[\text{Fe}(7 \text{ nm})/\text{Al}(5 \text{ nm})]_{15}$ irradiée par les ions plomb d'énergie 3 MeV/u, pour une distance radiale $r = 1 \text{ nm}$.

La figure IV-4 montre l'évolution de l'énergie déposée sur les atomes de Fe et Al du système $[\text{Fe}(3 \text{ nm})/\text{Al}(2 \text{ nm})]_{15}$ et dans le cas massif. Les traits horizontaux, sur cette figure, indiquent la valeur d'énergie déposée nécessaire à faire fondre le métal donné. L'analyse de la figure, permet de constater que le comportement des matériaux en multicouche est différent du celui en massif. En effet, dans le cas massif, l'énergie déposée sur le Fe dépasse celle nécessaire pour le fondre ($0,75 \text{ eV/atome}$) sur une surface de l'ordre de 50 nm^2 , tandis que l'énergie déposée sur le Al reste loin de celle nécessaire à le fondre ($0,3 \text{ eV/atome}$) quelque soit la distance radiale. Par contre à l'interface, Al atteint son point de fusion sur une surface de l'ordre de 70 nm^2 , alors que le Fe ne l'atteint pas du tout. Quelle explication peut-on donner pour comprendre ce comportement inverse par rapport au massif ?

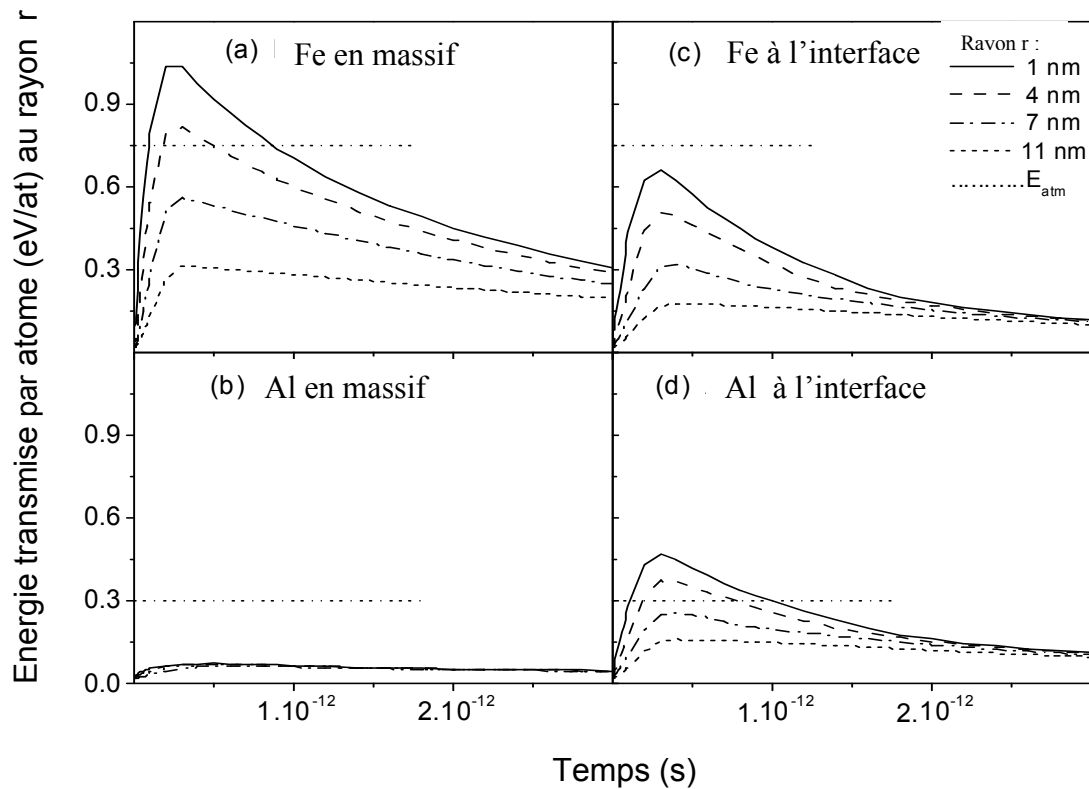


Figure IV-4 : Evolution de l'énergie transmise aux atomes en fonction du temps à l'interface du système [Fe(3 nm)/Al(2 nm)]₁₅, irradié avec des ions Pb d'énergie 3 MeV/u à la température ambiante, comparée à l'énergie transmise à l'état massif, pour différentes distances radiales r.

En effet, en multicouche, les électrons du Fe cèdent une partie de leur énergie à ceux de Al et leur température diminue. Alors, l'énergie transmise aux atomes de Fe par interaction électron-phonon devient plus faible par rapport au Fe massif. D'autre part, vu que le couplage électron-phonon du Fe est supérieur par rapport à celui de Al (~10 fois), la température atomique de ce dernier reste beaucoup plus faible que celle de Fe. Par conséquent, un gradient de température atomique aurait lieu à l'interface entre les deux matériaux. Donc, Fe céderait une partie de son énergie (atomique) au profit de Al ce qui diminue sa température.

-L'effet de l'épaisseur de l'Aluminium :

Pour mettre en évidence l'effet de l'épaisseur de Al sur le processus du mélange, nous avons effectué les calculs pour plusieurs épaisseurs de Al allant de 1 à 5nm.

La figure IV-5 résume les résultats des calculs pour deux épaisseurs de Al : $x = 2$ nm et $x = 1$ nm. Sur cette figure, on présente l'évolution de l'énergie maximale transmise aux atomes en fonction de la distance en profondeur. Pour faciliter la discussion, cette énergie est normalisée par rapport à l'énergie nécessaire pour faire fondre le matériau donné.

On remarque que pour $x = 2$ nm, la couche de Al fond entièrement sur une surface de l'ordre de 100 nm^2 tandis que la couche de Fe n'atteint la fusion qu'au centre pour une distance radiale d'un nm. Pour l'épaisseur de $x = 1$ nm, Al fond entièrement sur une surface supérieure à la précédente de l'ordre de 120 nm^2 , et Fe fond aussi sur une surface de l'ordre de 12 nm^2 .

En conclusion, dans le système $[\text{Fe}(3 \text{ nm})/\text{Al}(y \text{ nm})]_{15}$, le rapport $(E_{\text{at}}(\text{max})/E_{\text{atm}})$ dans Fe et Al diminue avec l'épaisseur de Al. Pour que la couche de Fe (d'épaisseur 3 nm) fonde, il faut que l'épaisseur de Al soit inférieure à 2 nm. Et pour que la couche de Al fonde entièrement, il faut que son épaisseur soit inférieure à 5 nm.

En augmentant l'épaisseur de Al, l'énergie thermique des électrons et des atomes de Fe, qui peut être considérée comme un « réservoir d'énergie », s'étale sur un volume plus important de Al. Par conséquent, l'équilibre thermique entre les deux métaux conduit à une diminution considérable de la température de Al et Fe.

IV.2.1. b. Irradiation aux ions Xe et Kr :

Dans le cas de l'irradiation avec les ions Xe, le dépôt d'énergie sur les électrons devient moins important dans les deux métaux Fe et Al par rapport à l'irradiation par les ions Pb (tableau IV-1). Par conséquent, les températures électroniques et atomiques atteintes diminuent.

Effectivement, les calculs montrent bien que quelque soit l'épaisseur de Al, l'énergie déposée sur Fe n'atteint pas le seuil de fusion. Quant à Al la phase liquide apparaît à condition que son épaisseur soit inférieure à 3 nm.

Dans le cas de l'irradiation avec les ions Kr, le modèle prédit qu'aucun des deux matériaux ne fond quelque soit leur épaisseur.

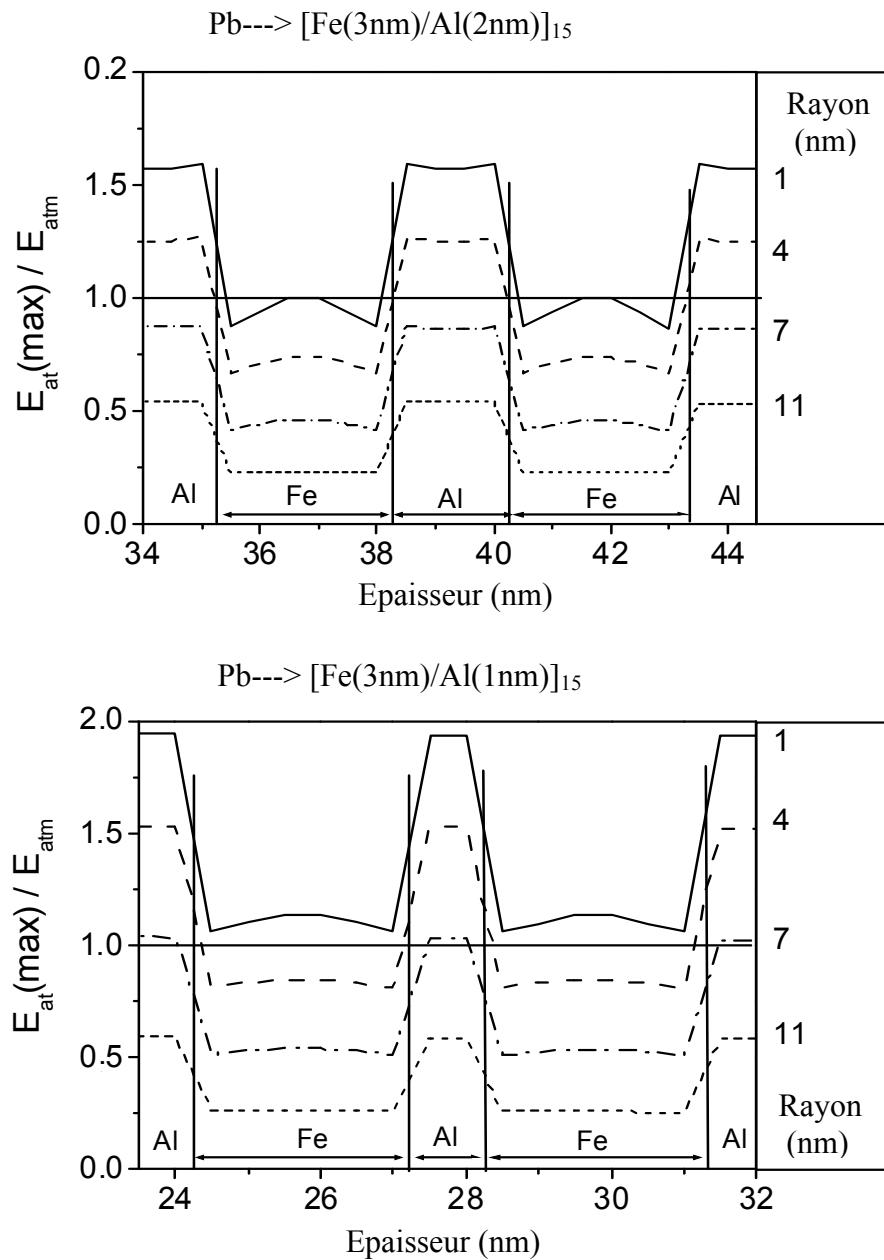


Figure IV-5: Evolution de l'énergie maximale transférée par atome [$E_{at}(\max)$] divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur dans le système [Fe(3 nm)/Al(2 nm)]₁₅ (en haut) et le système [Fe(3 nm)/Al(1 nm)]₁₅ (en bas), irradiés avec des ions Pb d'énergie 3 MeV/u à la température ambiante, pour différentes distances radiales r . ($E_{atm} = 0.75$ et 0.3 eV/atome pour Fe et Al, respectivement)

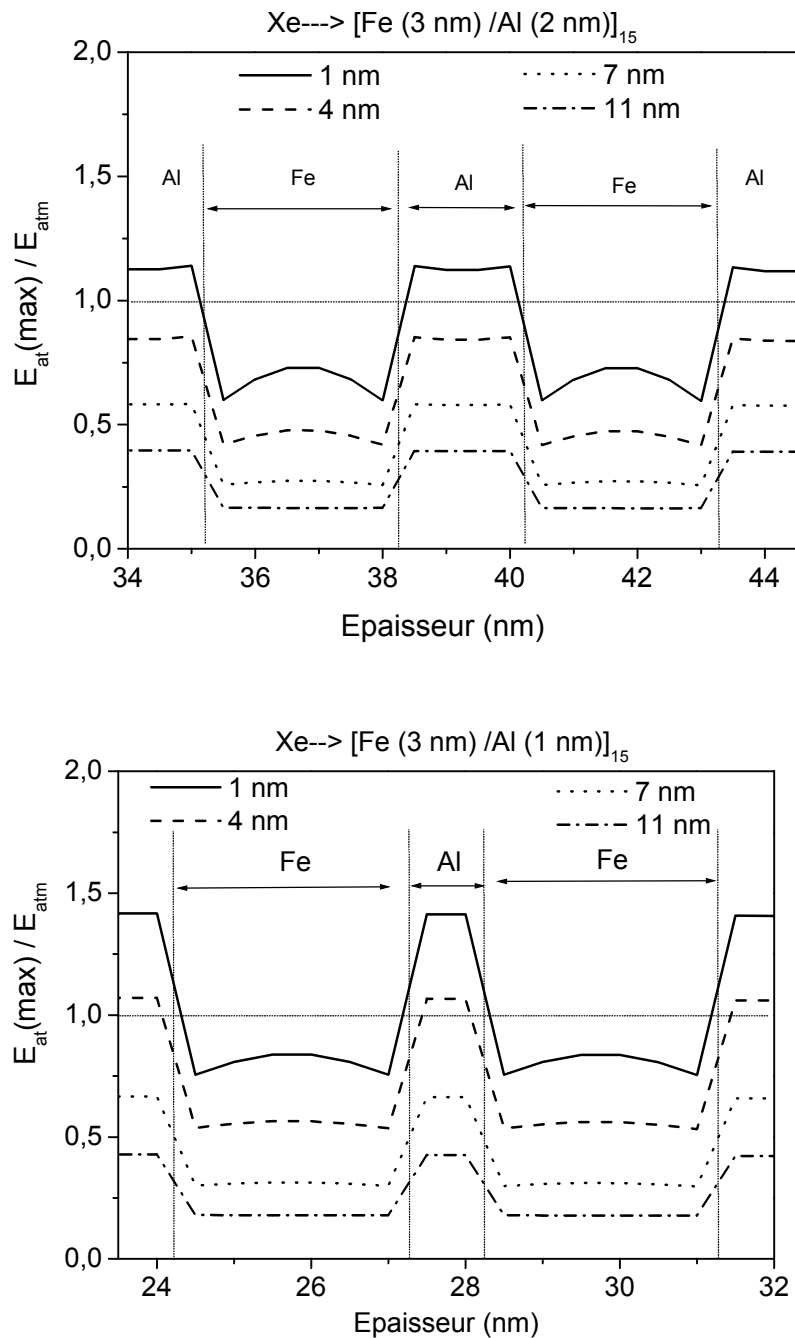


Figure IV-6: Evolution de l'énergie maximale transférée par atome [$E_{at(max)}$] divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur dans le système [Fe(3 nm)/Al(2 nm)]₁₅ (en haut) et le système [Fe(3 nm)/Al(1 nm)]₁₅ (en bas) irradiés avec des ions Xe d'énergie 3 MeV/u à la température ambiante, pour différentes distances radiales r . ($E_{atm} = 0.75$ et 0.3 eV/atome pour Fe et Al, respectivement)

IV.3. L'effet de l'épaisseur du Fer : Systèmes $[\text{Fe}(x \text{ nm})/\text{Al}(y \text{ nm})]_{15}$

Dans la partie précédente, nous avons étudié le transfert d'énergie dans des multicouches Fe/ Al dont l'épaisseur de Fe était constante et égale à 3nm. Nous allons maintenant discuter l'effet de l'épaisseur de Fe sur le processus du mélange. La figure IV-7 présente l'évolution de l'énergie maximale transférée par atome (normalisé par l'énergie nécessaire pour fondre) pour deux épaisseurs différentes de Fe (3nm et 7nm), c'est-à-dire $[\text{Fe}(3\text{nm})/\text{Al}(2\text{nm})]_{15}$ et $[\text{Fe}(7\text{nm})/\text{Al}(2\text{nm})]_{15}$.

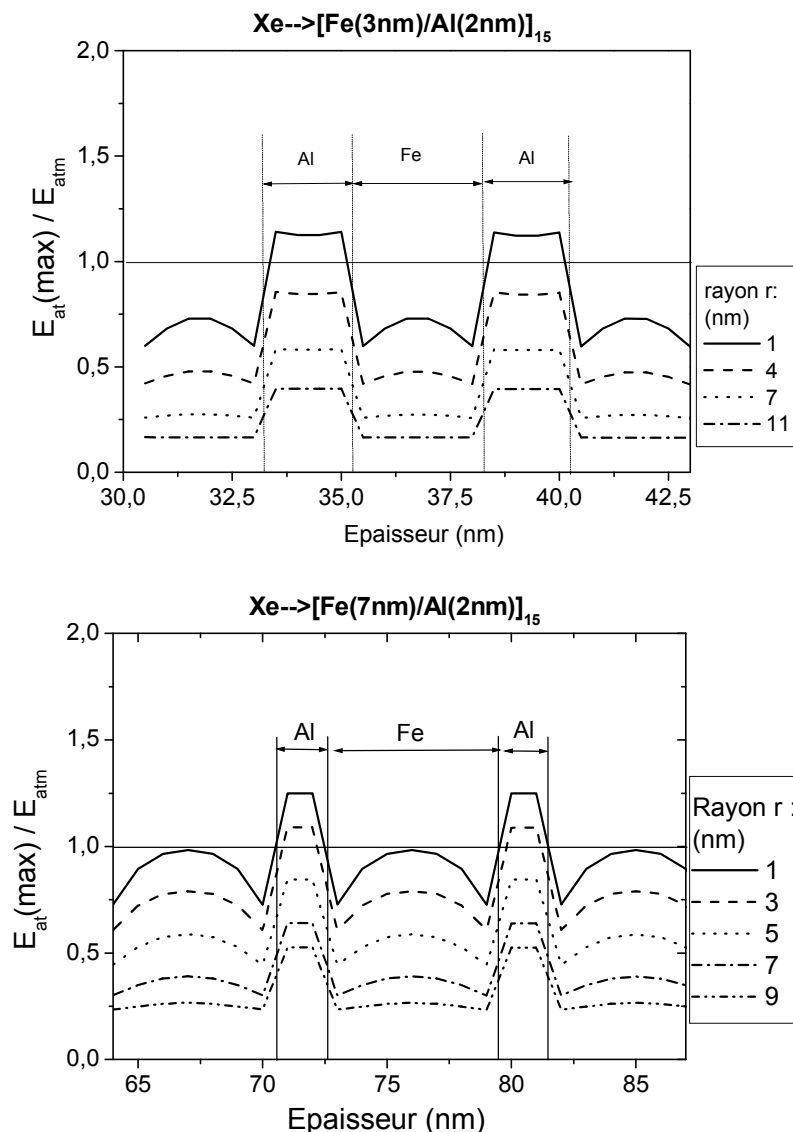


Figure IV-7 : Evolution de l'énergie maximale transférée par atome divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur dans le système $[\text{Fe}(3 \text{ nm})/\text{Al}(2 \text{ nm})]_{15}$ (en haut) et le système $[\text{Fe}(7 \text{ nm})/\text{Al}(2 \text{ nm})]_{15}$ (en bas), irradiés avec des ions Xe d'énergie 3 MeV/u à la température ambiante, pour différentes distances radiales r .

Le tableau IV-2 réunit les résultats obtenus pour les différentes combinaisons Fe/Al pour deux ions d'irradiations Pb et Xe. On constate que lorsqu'on augmente l'épaisseur de Fe, l'énergie déposée sur les atomes de Fe et Al augmente. Ceci est évident car en augmentant l'épaisseur de Fe, le « réservoir d'énergie » thermique augmente. L'équilibre thermique entre les deux métaux s'établit à une température plus importante.

Irradiation Ion	<i>Fe</i> (nm)	<i>Al</i> (nm)	$\frac{E_{\max}}{E_{\text{fusion}}}(\text{Fe})$	$\frac{E_{\max}}{E_{\text{fusion}}}(\text{Al})$
Pb	5	5	1.11	1.08
		2	1.22	1.68
	3	2	1	1.57
		1	1.13	1.94
Xe	7	5	0.92	0.72
		2	0.98	1.24
	5	5	0.82	0.69
		2	0.91	1.22
	3	2	0.72	1.14
		1	0.83	1.41

Tableau IV-2 : Les valeurs de l'énergie transférée par atome normalisée par l'énergie de fusion ($\frac{E_{\max}}{E_{\text{fusion}}}$) aux milieux des couches pour les différentes combinaisons Fe/Al irradiées par les ions Pb et Xe.

IV.4. Les systèmes Fe (x nm) / Au (y nm) :

Toujours dans le but d'étudier le comportement d'un matériau insensible aux excitations électroniques (S_e) en contact avec un matériau sensible aux S_e , nous avons étudié la multicouche [Fe (x nm) / Au (y nm)]₁₅. Le couplage électron-phonon du Au est environ 10 fois petit par rapport à celui de Al, c'est-à-dire ~100 fois petit par rapport à celui de Fe.

IV.4.1. Les systèmes Fe (3 nm) / Au (y nm) :

IV.4.1. a. Irradiation aux ions Pb :

Nous commencerons par présenter les résultats de calcul obtenus pour la multicouche [Fe(3nm)/Au(3nm)]₁₅ irradiée par des ions Pb.

Sur la figure IV-8, nous avons tracé l'évolution de la température électronique, en fonction du temps pour différentes distances radiales r pour Fe et Au (IV-8 c et d, successivement). Au titre de comparaison, nous avons présenté sur la même figure la température électronique pour Fe et Au (IV-8 a et b, successivement) à l'état massif.

On remarque que les températures électroniques à l'interface Fe/Au sont comparables. La température électronique dans Fe à l'interface est supérieure à celle massif. L'inverse se produit pour Au. On note en plus que la température électronique atteinte dans le Fe massif ($\sim 145\ 000\text{K}$) est plus faible par rapport à celle atteinte dans le Au massif ($\sim 243\ 000\ \text{K}$). Ceci est due au fait que le dépôt d'énergie S_e sur les électrons de Fe (58 keV/nm) est plus faible que dans le Au (78 keV/nm). Ce gradient de température à l'interface Fe/Au conduit à un transfert d'énergie du sous système électronique du Au à celui de Fe jusqu'à atteindre l'équilibre thermique (voir figure IV-9). Donc, ce sont les électrons du matériau insensible (Au) à S_e qui transfèrent l'énergie aux électrons du matériau sensible (Fe), contrairement à ce que nous avons vu dans le cas de Fe/Al.

Par conséquent, la température électronique de Fe à l'interface augmente (~ 185000) par rapport à Fe massif, alors que la température électronique de Au à l'interface diminue (~ 214000) par rapport à Au massif.

Ensuite, les électrons commencent à céder leur énergie aux atomes par interaction électron-phonon et leur température diminue. Par contre, la température atomique commence à augmenter pour atteindre son maximum en $\sim 3\text{-}4 \times 10^{-13}$ s dans les deux métaux.

La figure IV-10 montre l'évolution de l'énergie déposée sur les atomes, en fonction du temps pour différentes distances radiales r pour Fe et Au (IV-10 c et d, successivement). Sur la même figure, nous avons présenté l'énergie déposée sur les atomes de Fe et Au (IV-10 a et b, successivement) à l'état massif a titre de comparaison.

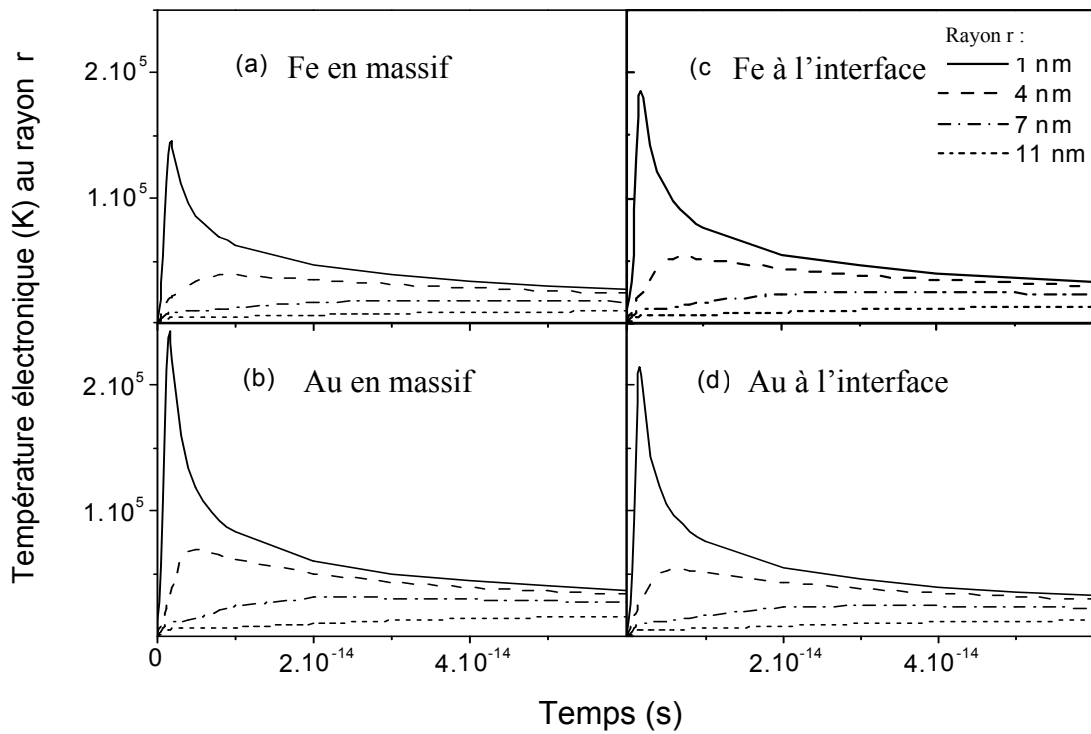


Figure IV-8 : Evolution de la température électronique en fonction du temps à l'interface du système $[\text{Fe}(3 \text{ nm})/\text{Au}(3 \text{ nm})]_{15}$, irradiée avec des ions Pb d'énergie 3 MeV/u à la température ambiante, comparée à la température électronique en massif, pour différentes distances radiales r .

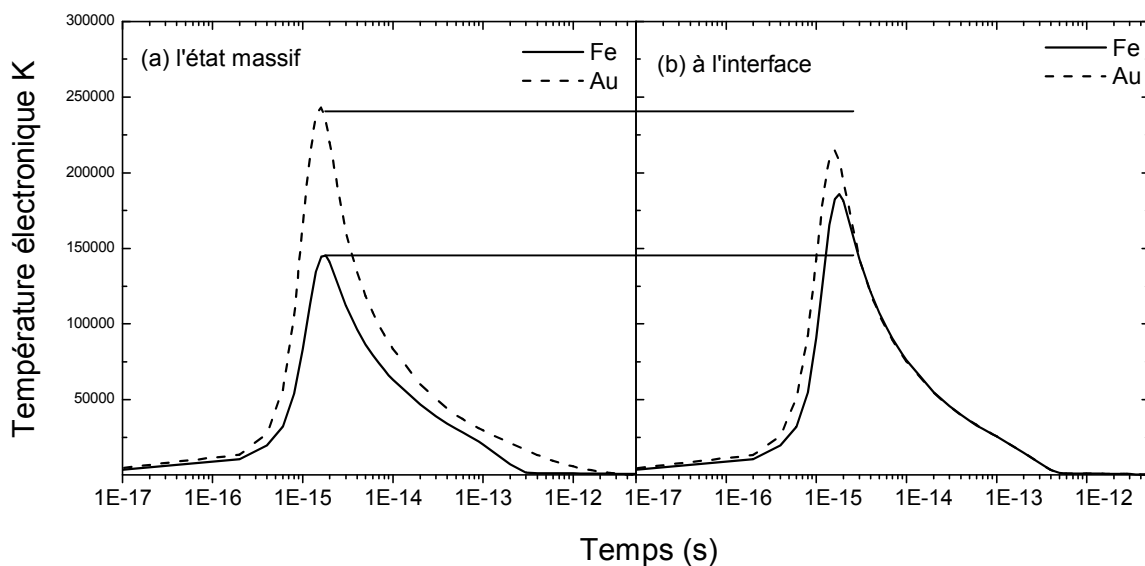


Figure IV-9 : Evolution de la température électronique en fonction du temps. (a) dans le Fe et Au massif, (b) dans le Fe et Au à l'interface du système $[\text{Fe}(3 \text{ nm})/\text{Au}(3 \text{ nm})]_{15}$ pour une irradiation aux ions plomb d'énergie 3 MeV/u, pour une distance radiale $r = 1 \text{ nm}$.

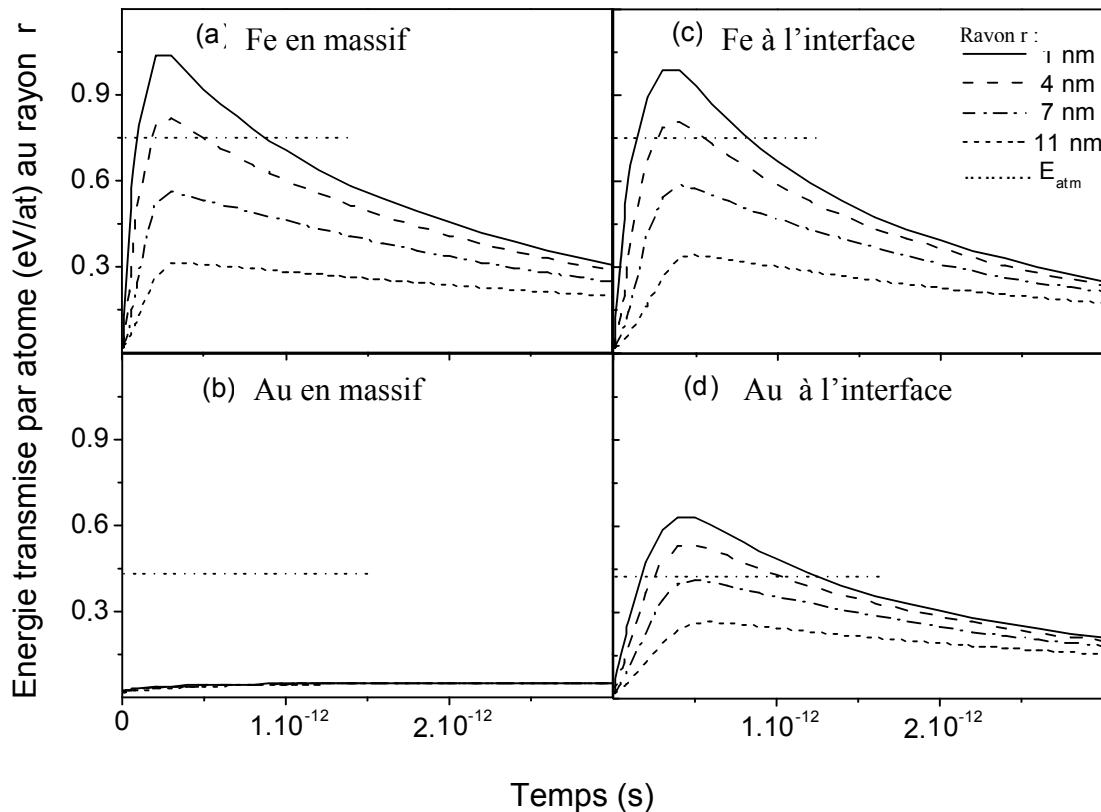


Figure IV-10 : Evolution de l'énergie transmise aux atomes en fonction du temps à l'interface du système $[\text{Fe}(3 \text{ nm})/\text{Au}(3 \text{ nm})]_{15}$, irradiée avec des ions Pb d'énergie 3 MeV/u à la température ambiante, comparée à l'énergie transmise à l'état massif, pour différentes distances radiales r .

On remarque que l'énergie déposée sur Fe à l'interface (IV-10 c) est légèrement inférieure par rapport au Fe massif (IV-10 a). Par contre, l'énergie déposée sur le Au à l'interface (IV-10 d) est beaucoup plus grande par rapport à Au massif (IV-10 b) et permet la fusion. Donc, l'énergie perdue par les atomes de Fe n'est pas entièrement transférée aux atomes de Au. En revanche, ce bilan énergétique est vérifié dans le cas du contact Fe/Al. Ce résultat nous laisse supposer un rôle primordial joué par les électrons dans le processus de transfert de l'énergie. En effet, les électrons de Fe en contact avec le Au reçoivent de l'énergie inversement au cas du Fe/Al où les électrons de Fe perdent de l'énergie au profit des électrons de Al.

L'effet de l'épaisseur de l'Or (Au) :

Sur la figure IV-11 nous avons tracé l'évolution de l'énergie maximale transférée par atome divisée par l'énergie nécessaire pour fondre, pour deux épaisseurs différentes de Au en fonction de la distance de profondeur. Pour la première épaisseur ($x = 3\text{ nm}$), les deux métaux fondent le long du trajet de l'ion ; Au sur une surface de l'ordre de 100 nm^2 et Fe sur une surface de l'ordre de 50 nm^2 . Pour la deuxième ($x = 9\text{ nm}$), Fe fond entièrement sur une surface de l'ordre de 75 nm^2 tandis que la couche de Au n'atteint pas la fusion au centre de la couche. Pour que les deux métaux fondent entièrement le long du trajet de l'ion il faut que l'épaisseur de Au soit inférieure à 7 nm .

Lorsque l'épaisseur de Au augmente, l'énergie déposée dans Fe augmente. Par contre l'énergie déposée dans Au diminue contrairement au cas de Al dans Fe/Al. Pour expliquer qualitativement ce comportement, on suppose que les électrons de Au jouent un rôle important. Lorsqu'on augmente l'épaisseur de Au on augmente le nombre d'électrons dans le processus d'échange de l'énergie thermique électronique à l'interface. Etant donné que la température électronique atteinte dans Au est supérieure à celle atteinte dans Fe, l'énergie transmise vers les électrons de Fe augmente. Par conséquent, l'énergie transmise vers les atomes de Fe augmente. Sachant que la température atomique de Au n'augmente que grâce à l'énergie transmise à l'interface par Fe, en augmentant l'épaisseur de Au sa température diminue.

La figure IV-12 montre bien que les électrons de Fe, pendant le refroidissement en contact avec une épaisseur de Au égale à 9 nm , ont une température plus grande par rapport au cas où Fe et en contact avec une épaisseur de 3 nm . Par conséquent, la température atomique atteinte dans le premier cas est plus grande que dans le deuxième cas.

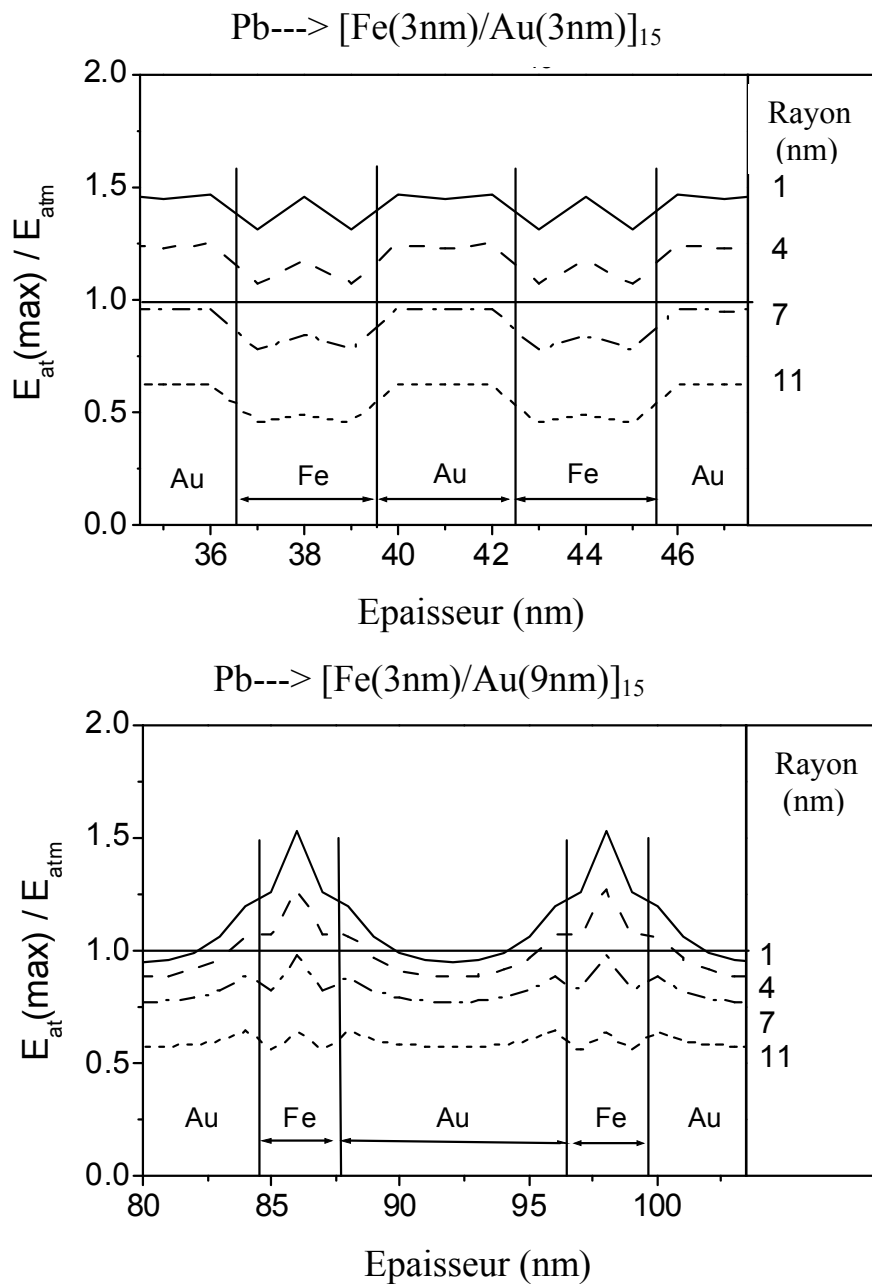


Figure IV-11: Evolution de l'énergie maximale transférée par atome [$E_{at(max)}$] divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur dans le système [Fe(3 nm)/Au(3 nm)]₁₅ (en haut) et le système [Fe(3 nm)/Au(9 nm)]₁₅ (en bas), irradiés avec des ions Pb d'énergie 3 MeV/u à la température ambiante, pour différentes distances radiales r . ($E_{atm} = 0.75$ et 0.44 eV/atome pour Fe et Au, respectivement)

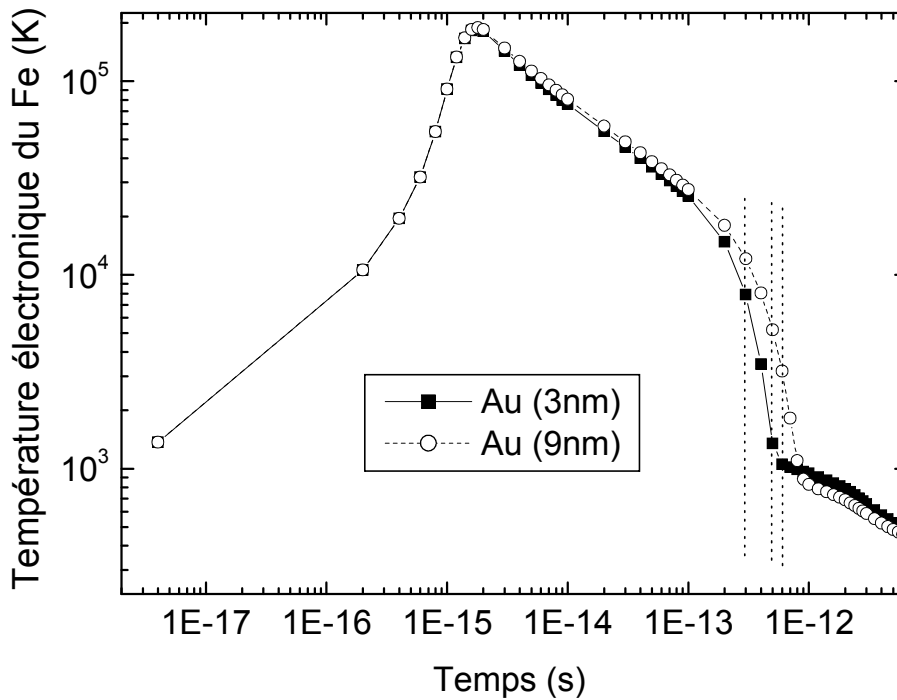


Figure IV-12 : Evolution de la température électronique en fonction du temps dans Fe à l'interface dans les deux systèmes $[\text{Fe}(3 \text{ nm})/\text{Au}(3 \text{ nm})]_{15}$ et $[\text{Fe}(3 \text{ nm})/\text{Au}(9 \text{ nm})]_{15}$, irradié par les ions plomb d'énergie 3 MeV/u, pour une distance radiale $r = 1 \text{ nm}$.

IV.4.1. b. Irradiation aux ions Xe et Kr :

La figure IV-13 présente l'évolution de l'énergie maximale transférée par atome (normalisé par l'énergie nécessaire pour fondre, pour deux épaisseurs différentes de Au ($x = 1 \text{ nm}$ et 2 nm) pour une irradiation par les ions Xe d'énergie 3 MeV/u. On constate que l'échauffement dans ce cas diminue considérablement par rapport à l'irradiation par les ions Pb. Pour la première épaisseur ($x = 1 \text{ nm}$), les deux métaux fondent légèrement (sur un rayon $\sim 1,5 \text{ nm}$). Pour la deuxième épaisseur ($x = 2 \text{ nm}$), le Au fond entièrement tandis que le Fe ne fond qu'au centre.

Toujours pour l'irradiation par les ions Kr, le modèle prédit qu'aucun des deux matériaux ne fond quelque soit leur épaisseur.

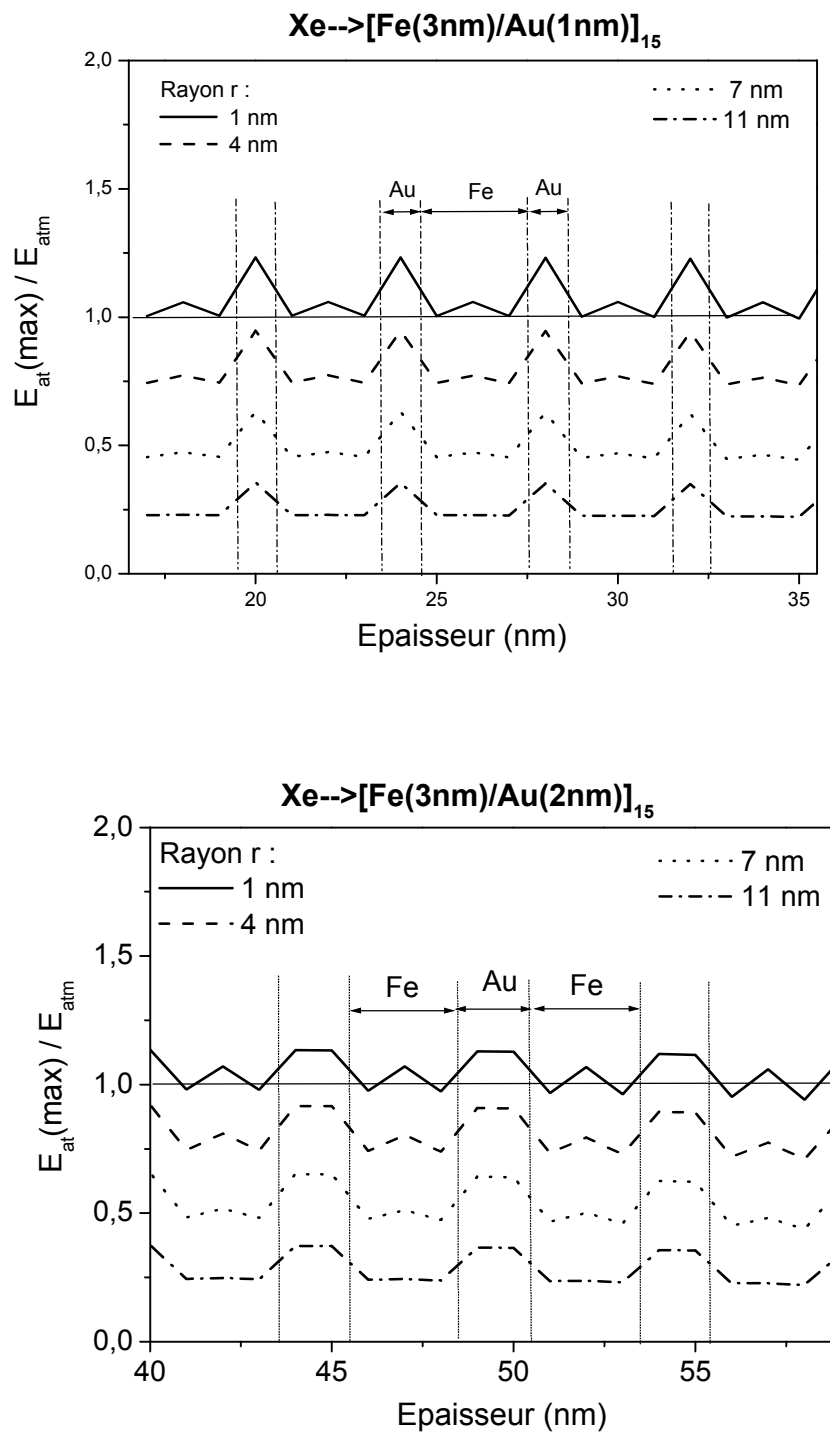


Figure IV-13: Evolution de l'énergie maximale transférée par atome $[E_{at}(max)]$ divisée par l'énergie nécessaire pour en fonction de l'épaisseur dans le système $[Fe(3\text{ nm})/Au(1\text{ nm})]_{15}$ (en haut) et le système $[Fe(3\text{ nm})/Au(2\text{ nm})]_{15}$ (en bas), irradiés avec des ions Xe d'énergie 3 MeV/u à la température ambiante, pour différentes distances radiales r .

IV.5. L'effet de l'épaisseur du Fer : Systèmes [Fe(x nm)/Au(y nm)]₁₅

Sur la figure IV-14 nous avons illustré l'évolution de l'énergie maximale transférée par atome (normalisé par l'énergie nécessaire pour fondre) pour les deux systèmes : [Fe(3nm)/Au(5nm)]₁₅ et [Fe(7nm)/Au(5nm)]₁₅, c'est-à-dire pour deux épaisseurs différentes de Fe (3nm et 7nm) et pour la même épaisseur de Au (5 nm).

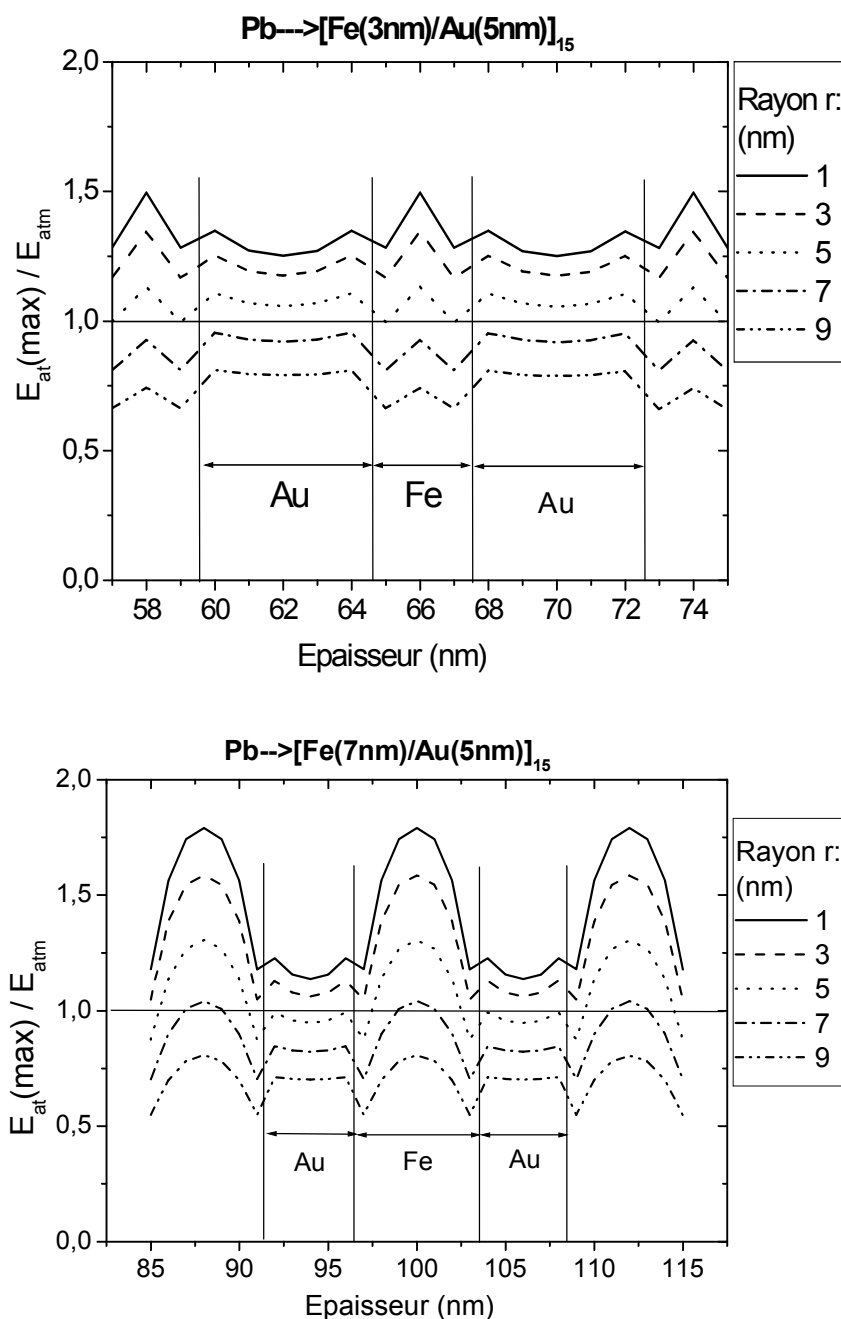


Figure IV-14 : Evolution de l'énergie maximale transférée par atome [$E_{at(max)}$] divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur dans le système [Fe(3 nm)/Au(5 nm)]₁₅ (en haut) et le système [Fe(7 nm)/Au(5 nm)]₁₅ (en bas), irradiés avec des ions Pb d'énergie 3 MeV/u à la température ambiante, pour différentes distances radiales r .

Le tableau IV-3 réuni les résultats obtenus pour les différentes combinaisons Fe/Au. On constate que lorsqu'on augmente l'épaisseur de Fe l'énergie déposée sur les atomes de Au diminue et celle déposée sur les atomes de Fe augmente.

Irradiation Ion	Fe (nm)	Au (nm)	$\frac{E_{\max}}{E_{\text{fusion}}}(\text{Fe})$	$\frac{E_{\max}}{E_{\text{fusion}}}(\text{Au})$
Pb	7	7	1.87	0.99
		5	1.78	1.13
		2	1.59	1.45
	5	7	1.82	1.06
		5	1.75	1.21
		2	1.57	1.52
	3	9	1.55	0.95
		5	1.5	1.25
		-	-	-
Xe	7	7	1.42	0.72
		5	1.35	0.82
		2	1.19	1.05
	5	7	1.39	0.77
		5	1.32	0.88
		2	1.18	1.10
	3	7	1.14	0.78
		5	1.12	0.90
		2	1.05	1.15

Tableau IV-3 : Les valeurs de l'énergie transférée par atome normalisée par l'énergie de fusion ($\frac{E_{\max}}{E_{\text{fusion}}}$) aux milieux des couches pour les différentes combinaisons Fe/Au irradiées par les ions Pb et Xe.

IV.6. Effet du couplage électron-phonon :

Dans cette partie nous allons examiner l'influence du couplage électron phonon sur le processus de mélange dans les multicouches irradiées par les ions lourds raides.

Dans ce but nous avons choisi les deux systèmes Ti/Au et Bi/Au parce que le couplage électron-phonon du Ti et Bi est très différent par rapport à celui du Fe. Pour Ti, g est égal à 10^{13} W/cm³/s (soit ~ 10 g (Fe)) et pour Bi, g est égal à $4 \cdot 10^{11}$ W/cm³/s (soit $\sim g$ (Fe)/4).

IV.6.1. Système Ti (3nm)/ Au(y nm) :

Ti appartient à la catégorie des métaux très sensibles à l'excitation électronique. Par contre, Au est insensible aux S_e . Il est intéressant de voir ce qui se passe lorsqu'on associe ces deux métaux pour former une multicouche nanométrique. Nous avons effectué les calculs pour ces systèmes en considérant plusieurs épaisseurs de Au. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure IV-15 qui montre l'évolution de l'énergie maximale transférée par atome divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de la distance en profondeur dans les deux systèmes [Ti(3 nm)/Au(12 nm)]₁₅ et [Ti(3 nm)/Au(20 nm)]₁₅. Premièrement on constate que l'énergie maximale déposée sur Ti dépasse 10 fois celle nécessaire pour lui faire fondre sur une surface qui dépasse largement 300 nm² quelque soit l'épaisseur de Au. Deuxièmement, pour une épaisseur de Au de 12 nm la fusion apparaît pour une surface de l'ordre de 250 nm², par contre il y a pas de fusion au centre de la couche pour une épaisseur de 20 nm. Pour que Au fonde il faut que son épaisseur soit inférieure à 17nm.

IV.6.2. Système Bi (3nm)/Au(y nm) :

Comme dans Ti, pour montrer le comportement du Bismuth en multicouche avec Au, nous avons tracé l'évolution de l'énergie maximale transférée par atome divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur pour deux épaisseurs de Au : [Bi (3 nm)/Au (1 nm)]₁₅ et [Bi (3 nm)/Au (4 nm)]₁₅ (figure IV-16). Dans le premier système, Bi fond complètement tandis que Au n'atteint que la moitié de l'énergie nécessaire pour lui fondre. Dans le deuxième système, aucun des deux matériaux ne fond. Pour que Bi fonde il faut que l'épaisseur de Au soit inférieure à 4 nm.

On déduit que Au en contact avec Bi ne fond pas quelque soit son épaisseur. Cependant, en contact avec Fe il fond environ 7 nm et en contact avec Ti il fond environ 17 nm. En effet, Bi est le moins sensible à S_e par rapport à Fe et Ti, et sa constante de couplage électron phonon est la plus faible.

On conclut que plus la constante de couplage électron-phonon du métal sensible est importante plus l'énergie transmise au métal insensible est importante, et plus l'épaisseur fondue est grande.

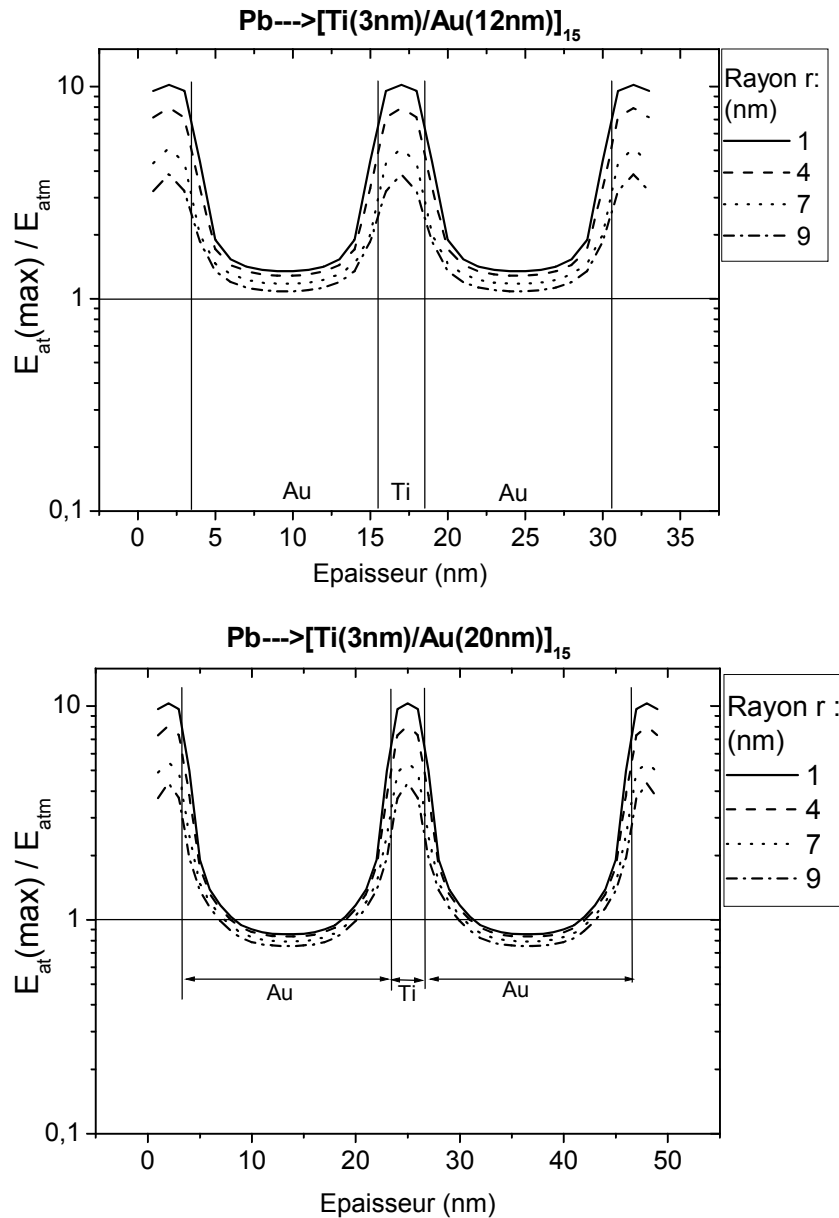


Figure IV-15 : Evolution de l'énergie maximale transférée par atome [$E_{at}(max)$] divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur dans le système [Ti(3 nm)/Au(12nm)]₁₅ (en haut) et le système [Ti(3 nm)/Au(20 nm)]₁₅ (en bas), irradiés avec des ions Pb d'énergie 3 MeV/u ($S_e(Ti)= 36$ keV/nm) à la température ambiante, pour différentes distances

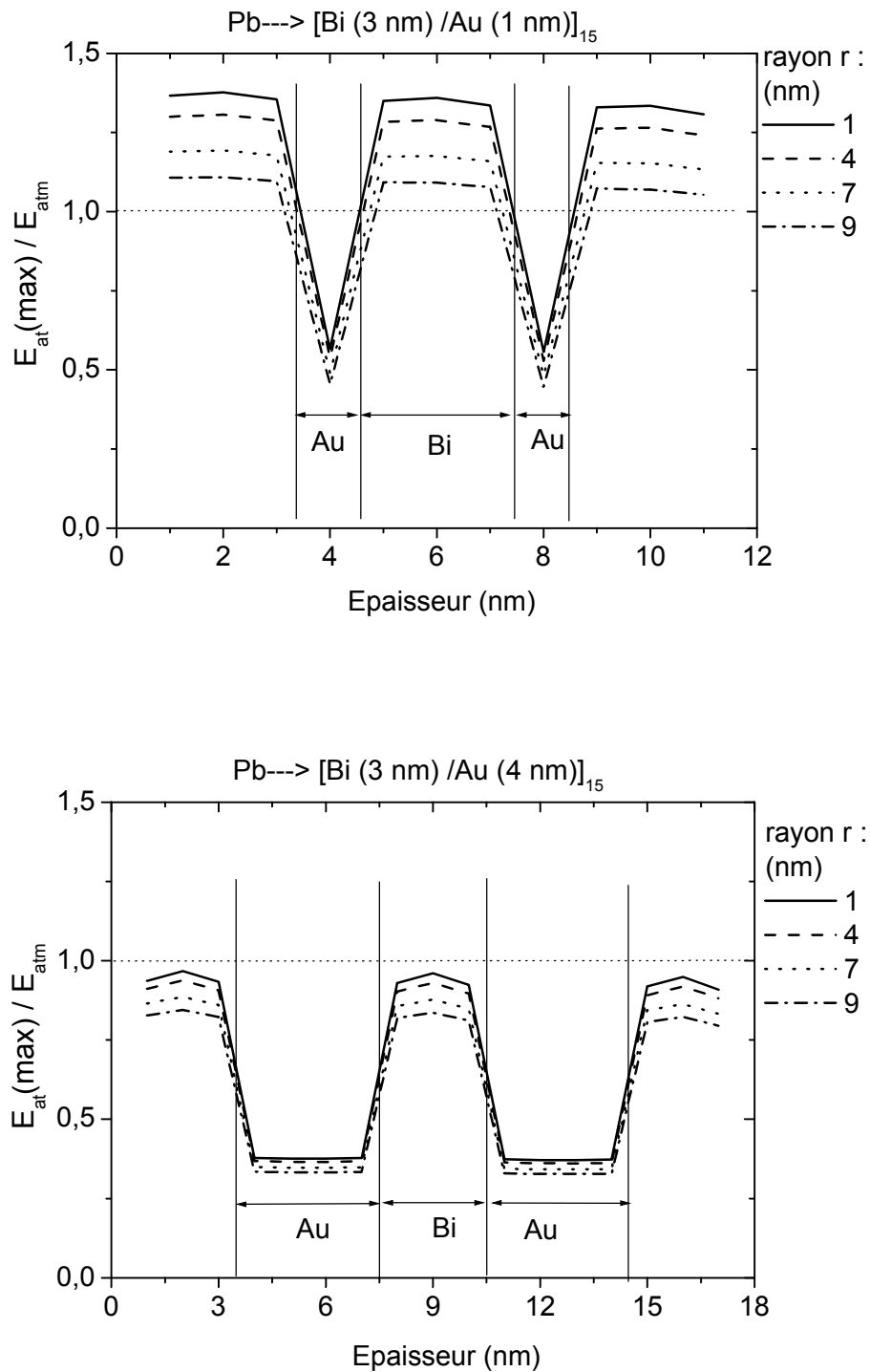


Figure IV-16 : Evolution de l'énergie maximale transférée par atome [$E_{at}(max)$] divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur pour différentes distances radiales r dans le système $[Bi(3\text{ nm})/Au(2\text{ nm})]_{15}$, irradié avec des ions Pb d'énergie 3 MeV/u à la température ambiante.

IV.7. Application du modèle aux systèmes étudiés expérimentalement :

Comme nous avons déjà cité plus haut, peu de travaux expérimentaux sur les multicouches ont été réalisés dans le régime des excitations électroniques. Nous allons essayer de simuler l'effet du dépôt d'énergie électronique sur des multicouches métalliques étudiées expérimentalement afin de comprendre leur comportement.

D'abord il faut répondre à la question suivante : Quels sont les informations ou bien les résultats qui peuvent être tirés de nos calculs qui nous permettraient d'expliquer ou d'estimer le mélange à l'interface ?

En effet, il faut distinguer entre les déplacements atomiques directs créés par le dépôt d'énergie direct sur les atomes (collisions nucléaires à basses énergies) et les déplacements atomiques indirects engendrés par le dépôt d'énergie sur les électrons. Deux modèles ont été développés pour expliquer ces déplacements atomiques indirects créés par le passage des ions lourds rapides, le modèle de l'explosion ionique et le modèle de la pointe thermique (voir chapitre I). Dans le modèle de la pointe thermique, l'énergie déposée sur les électrons est transmise vers les atomes sous forme d'énergie thermique conduisant à l'élévation de leur température. Dans certains matériaux, dits sensibles aux excitations électroniques, cette élévation de température peut dépasser la température de fusion. C'est-à-dire que le matériau se transforme en matière liquide le long du trajet de l'ion, pendant un certain temps (quelques picosecondes) où *les atomes peuvent se déplacer plus librement qu'à l'état solide*.

Maintenant, imaginons que ce processus ait lieu de part et d'autre d'une interface de deux matériaux différents, que ce passe-t-il? Probablement un mélange constitué des atomes des deux matériaux aurait lieu à l'interface. En effet, le modèle de la pointe thermique prévoit la fusion le long du trajet de l'ion. Etant donné que la constante de diffusivité dans la phase liquide est beaucoup plus grande que dans la phase solide, le mélange peut avoir lieu dans un temps plus court. Cette interdiffusion dépend de deux paramètres essentiels : la surface de la zone fondue (πR^2 , où R est le rayon de fusion) et le temps « τ » pendant lequel cette zone persiste en état liquide. Ces deux paramètres sont fournis par nos calculs.

Nous allons prendre un exemple de calcul effectué sur la multicouche [Fe(3nm)/Au(9nm)], et nous allons montrer comment extraire ces deux paramètres. D'abord nous avons tracé l'évolution de l'énergie maximale transférée par atome normalisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur figure IV-17.

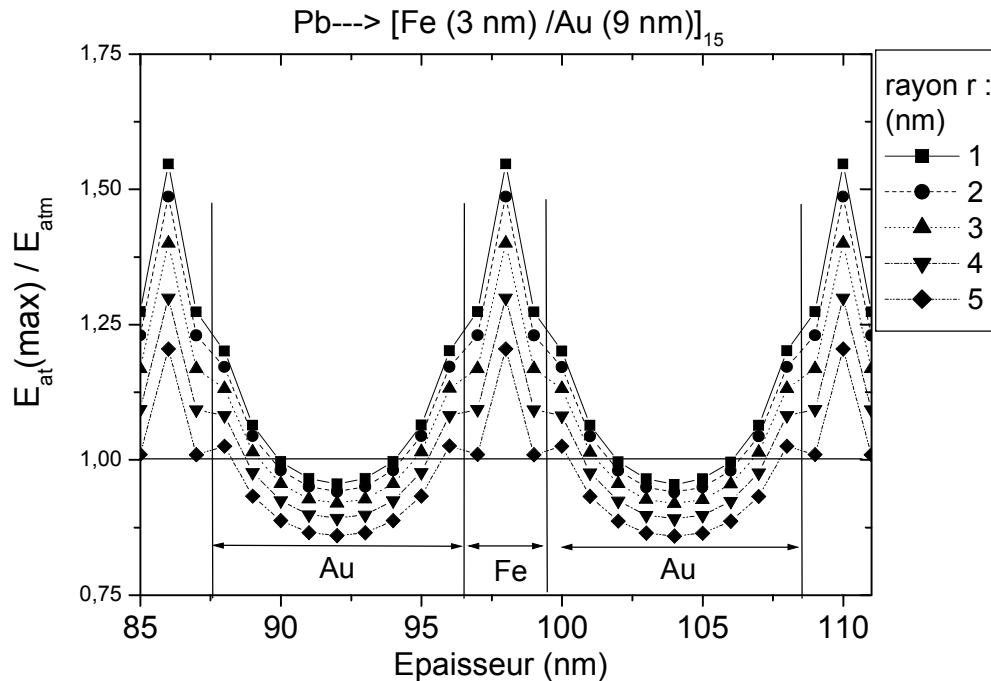


Figure IV-17 : Evolution de l'énergie maximale transférée par atome [$E_{at}(max)$] divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur dans le système [Fe(3 nm)/Au(9nm)]₁₅, irradié avec des ions Pb d'énergie 3 MeV/u à la température ambiante, pour différentes distances radiales r.

On remarque que : Fe fond entièrement sur un rayon d'environ 5 nm, c'est-à-dire une surface de 75 nm^2 et pratiquement la même chose pour Au juste à l'interface. Par contre, à 2nm de l'interface, Au fond seulement pour un rayon de 3nm. Ensuite à une distance supérieur à 3nm de l'interface Au ne fond pas. En total, Au fond une longueur de 2nm pour un rayon de 4 nm en moyen.

Mais on remarque que le paramètre temps n'apparaît pas sur cette figure, c'est-à-dire le temps pendant lequel la matière reste en phase liquide. Pour cette raison nous avons tracé l'évolution des rayons de fusion en fonction du temps pour Fe et Au autour de l'interface (figure IV-18). Sur cette figure on remarque que Fe atteint la fusion plus vite par rapport à

Au et se refroidi plus vite que Au. Notons que pour que l'interdiffusion pourrait avoir lieu, il faut que les deux matériaux de part et d'autre de l'interface soit en phase liquide. Pour un rayon de 5 nm, Fe et Au fondent mais pas simultanément. Pour un rayon de 4 nm, le temps pendant lequel Fe et Au sont simultanément en état liquide est $2 \cdot 10^{-13}$ s (voir figure). De même on peut extraire le temps de fusion pour les rayons 3, 2 et 1 nm.

Le rayon de fusion moyen à l'interface est peut être calculé en utilisant la formule

suivante :
$$R_{moy}^2 = \frac{\sum_i R_i^2 t_i}{\sum_i t_i} , \text{ soit } R_{moy} \approx 2.2 \text{ nm}.$$

Le temps équivalent à ce rayon est de l'ordre de $4 \cdot 10^{-13}$ s (voir la figure).

Donc la surface efficace d'interdiffusion par ion est égale à : $\pi R_{moy}^2 \approx 15 \text{ nm}^2$, durant un temps moyen égal à $4 \cdot 10^{-13}$ s.

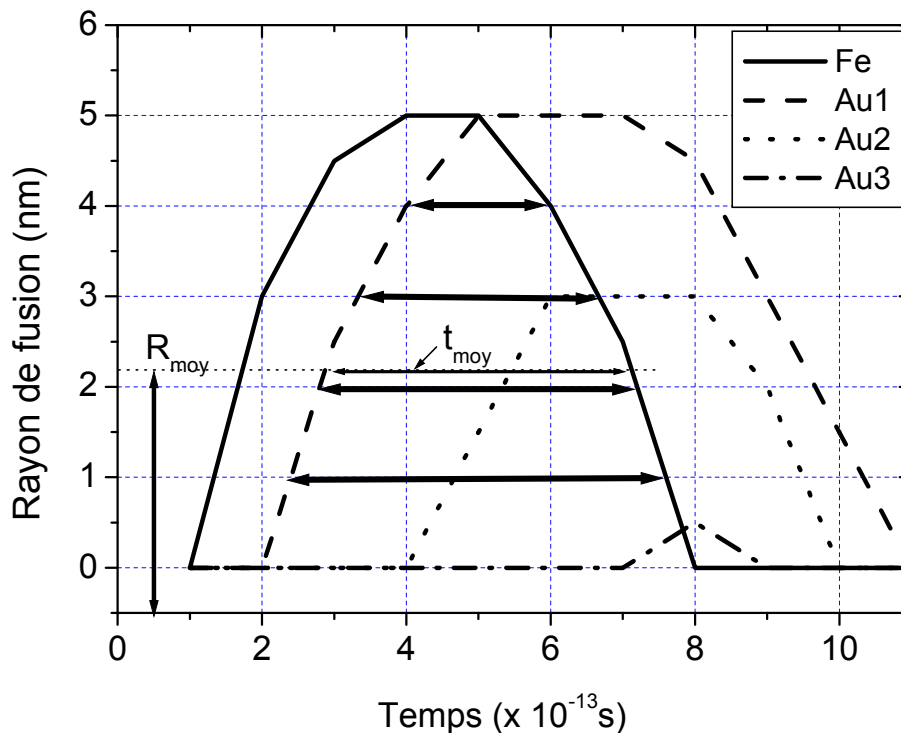


Figure IV-18 : Evolution des rayons de fusion en fonction du temps autour de l'interface de la multicouche [Fe(3nm)/ Au(9nm)] irradiée par des ions Pb d'énergie de 3 MeV/u.

La détermination de ces deux paramètres nous permet de calculer le coefficient de diffusion D à partir des valeurs du taux de mélange mesurés expérimentalement.

Le taux de mélange expérimental pour une irradiation avec une fluence Φ est défini comme suit ^[Bol 04] :

$$k = \Delta\sigma^2 / \Phi$$

Où $\Delta\sigma^2$ représente l'augmentation de la variance ($\Delta\sigma^2(\Phi) = \sigma^2(\Phi) - \sigma^2(0)$) pour une fluence Φ , comparée par rapport à la partie non irradiée.

Pour un seul ion on écrit ^[Bol 02b] : $\Delta\sigma_{SI}^2 = k / \pi R^2 = 2Dt$

Où : R : le rayon de trace,

D : le coefficient de diffusion,

t : le temps de la diffusion,

À partir de cette formule on peut écrire la formule du taux de mélange par ion comme suit :

$$D = k / 2\pi R^2 t \quad (\text{IV-1})$$

Notons que même si la fusion à l'interface a lieu cela n'implique pas une interdiffusion sûre car d'autres paramètres peuvent influencer ce processus comme les paramètres thermodynamiques (la chaleur de mélange, l'énergie de cohésion, ...) mentionnés dans le chapitre II. C'est-à-dire si, par exemple, deux matériaux sont immiscibles à l'état liquide (la chaleur de mélange est positive), le mélange n'aura pas lieu même si la phase liquide apparaît.

Afin de tester la validité de l'hypothèse de la diffusion dans l'état liquide pour expliquer le mélange observé expérimentalement dans les multicouches métalliques, nous avons analysé quelques études expérimentales. Nous avons choisi trois exemples différents : les systèmes Fe/Ti et Au/Ti étudiés par S. Kumar et al. ^[Kum06], le système Fe/Au étudié par C. Rumbolz et al. ^[Rum 06] et le système Fe/Ni étudié par S. K. Srivastava et al. ^[Sri 05].

IV.7.1. Multicouche Fe/Ti et Au/Ti :

S. Kumar et al. [Kum 06] ont mené une étude sur les deux multicouches suivantes : [Fe(32nm)/ Ti(42nm)]/Si irradiée par des ions Au d'énergie 120, 135 et 200 MeV et [Au(17nm)/Ti(96nm)]/Si irradiée par des ions Au d'énergie de 120 MeV (voir tableau IV-4). Ils ont calculé les taux de mélange dans les deux cas. Le mélange a été observé dans les deux multicouches, mais dans la première (Fe/Ti) est plus important que celui observé dans la seconde (Au/Ti). Ce mélange a été interprété par l'interdiffusion dans la phase liquide.

System	Energie (MeV)	Se (keV/nm)	k (nm ⁴)
Fe/Ti	200	44/28	155 ± 5
	135	36/24	147 ± 9
	120	34 /23	60 ± 2
Au /Ti	120	38/23	15 ± 7

Tableau IV-4 : Energies des ions Au, pouvoirs d'arrêts électroniques S_e et taux de mélange k à l'interface des multicouches Fe/Ti et Au/Ti.

Nous allons utiliser notre modèle pour simuler la fusion dans ces deux multicouches. Dans la première multicouche, [Fe(32nm) /Ti(42nm)], les deux métaux sont sensibles à S_e au-delà de certain seuil en pouvoir d'arrêt électronique S_{ecr} (~ 34 keV/nm pour Fe et ~ 11 keV/nm pour Ti). Pour l'irradiation avec l'énergie 200 MeV (Tableau IV-4), les deux métaux sont largement supérieurs aux seuils de sensibilité à S_e et donc notre modèle prévoit la fusion des deux métaux le long du trajet de l'ion ce qui peut conduire à un mélange important comme ça été observé dans le travail expérimental. Le mélange a été observé aussi dans le cas de l'irradiation avec les énergies 120 et 135 MeV, pour lesquelles Fe fond légèrement. D'après nos calculs aussi, Fe atteint la fusion en contact avec Ti grâce à l'énergie transmise de Ti à Fe à l'interface (Figure IV-19). En conclusion, pour la multicouche [Fe(32nm) /Ti(42nm)], notre modèle prévoit la fusion des interfaces en accord avec les résultats expérimentaux.

En utilisant l'équation (IV-1) et la valeur expérimentale du taux de mélange k (tableau IV-4), nous avons calculé la valeur du coefficient de diffusion : $D \approx 4 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{s}$.

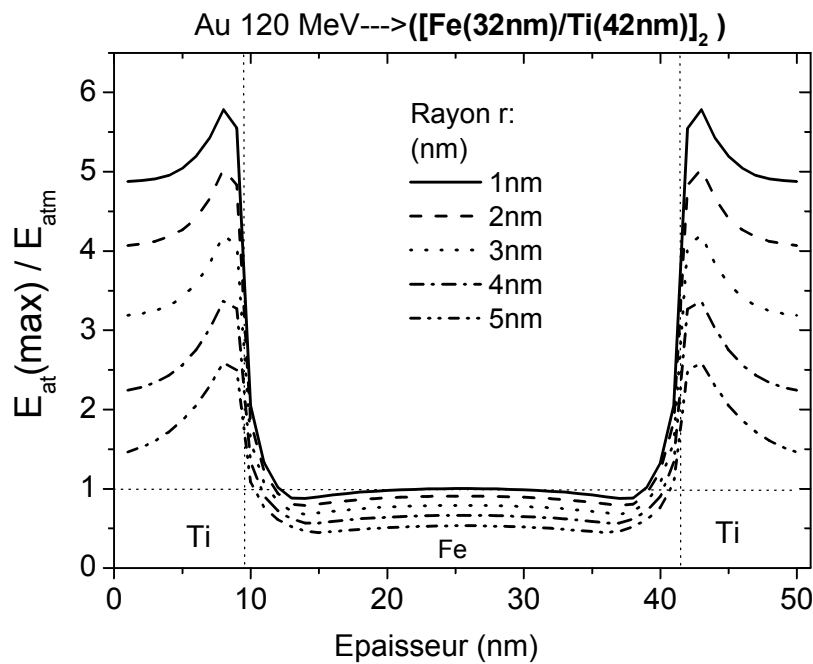


Figure IV-19 : Evolution de l'énergie maximale transférée par atome [$E_{at}(\max)$] divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur dans le système $[\text{Fe}(32 \text{ nm})/\text{Ti}(42 \text{ nm})]_{15}$, irradié avec des ions Au d'énergie 120 MeV à la température ambiante, pour différentes distances radiales r .

Nous avons également simulé l'énergie déposée sur les atomes dans la deuxième multicouche, $[\text{Au}(17\text{nm})/\text{Ti}(96\text{nm})]$. La figure IV-20 montre l'évolution de l'énergie maximale transférée par atome divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur du système $[\text{Au}(17\text{nm})/\text{Ti}(96\text{nm})]_{15}$. On remarque que Au fond environ une longueur de 2nm à l'interface ce qui probablement conduit à l'interdiffusion des atomes à travers l'interface et permettre d'avoir le mélange, toujours en accord avec ce qui a été observé expérimentalement. De la même manière que le cas précédent, Nous avons calculé le coefficient de diffusion $D \approx 6 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$.

On déduit que les valeurs des coefficients de diffusion trouvées dans les deux cas précédent sont beaucoup plus grandes par rapport à la diffusion dans la phase solide, ce qui exclut la possibilité de la diffusion dans la phase solide. Le coefficient de diffusion dans la phase liquide est de l'ordre de $10^{-4} \text{ cm}^2/\text{s}$, dans les gazes il est de l'ordre de $10^{-1} \text{ cm}^2/\text{s}$. Dans notre cas les températures atomiques atteintes peuvent atteindre la température d'évaporation, ce qui peut expliquer l'ordre de grandeur des valeurs calculées dans le cadre de notre modèle.

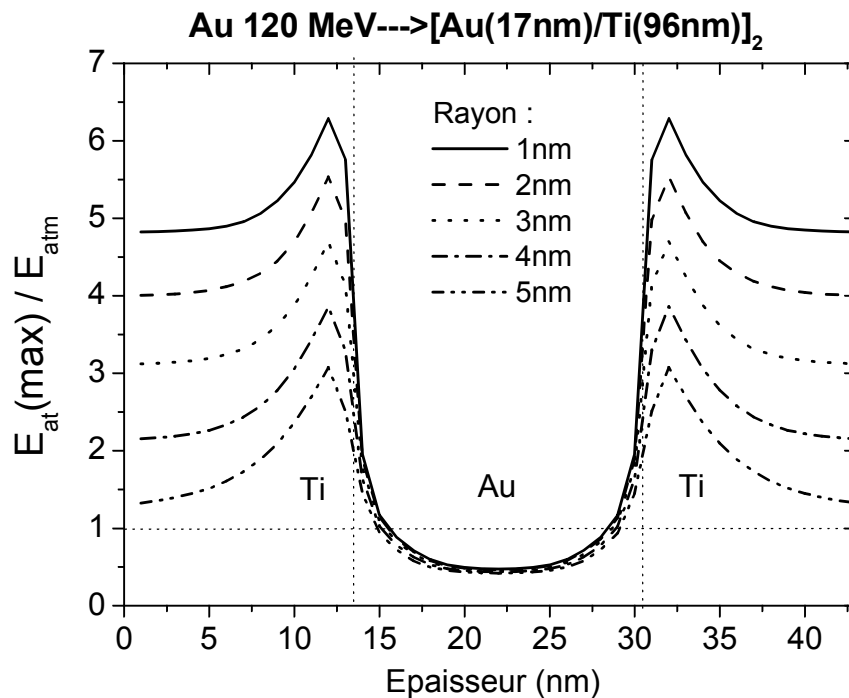


Figure IV-20 : Evolution de l'énergie maximale transférée par atome $[E_{at}(max)]$ divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur dans le système $[Au(17\text{ nm})/Ti(96\text{nm})]_{15}$, irradié avec des ions Au d'énergie 120 MeV ($S_e(Ti) = 23\text{keV/nm}$) à la température ambiante, pour différentes distances radiales r .

IV.7.2. Multicouche Fe/Au :

Très récemment C. Rumbolz et al.^[Rum 06] ont étudié l'effet de l'irradiation des multicouches Fe/Au pour différentes épaisseurs de Fe (20-25 nm) et Au (7-21 nm) par des ions Ar, Ni, Kr et Xe d'énergie entre 80-350 MeV. L'analyse par RBS (la spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford) a montré que l'irradiation induit le lissage des interfaces. Ce lissage a été expliqué par la minimisation de l'énergie interfaciale. C'est-à-dire qu'aucun mélange n'a été observé dans cette multicouche.

L'étude faite par notre modèle, ne prévoit pas de mélange car les interfaces ne fondent pas comme le montre la figure (IV-22). Toutefois, l'augmentation relative de la température atomique au niveau des interfaces peut conduire à un réarrangement atomique conduisant à un lissage de l'interface.

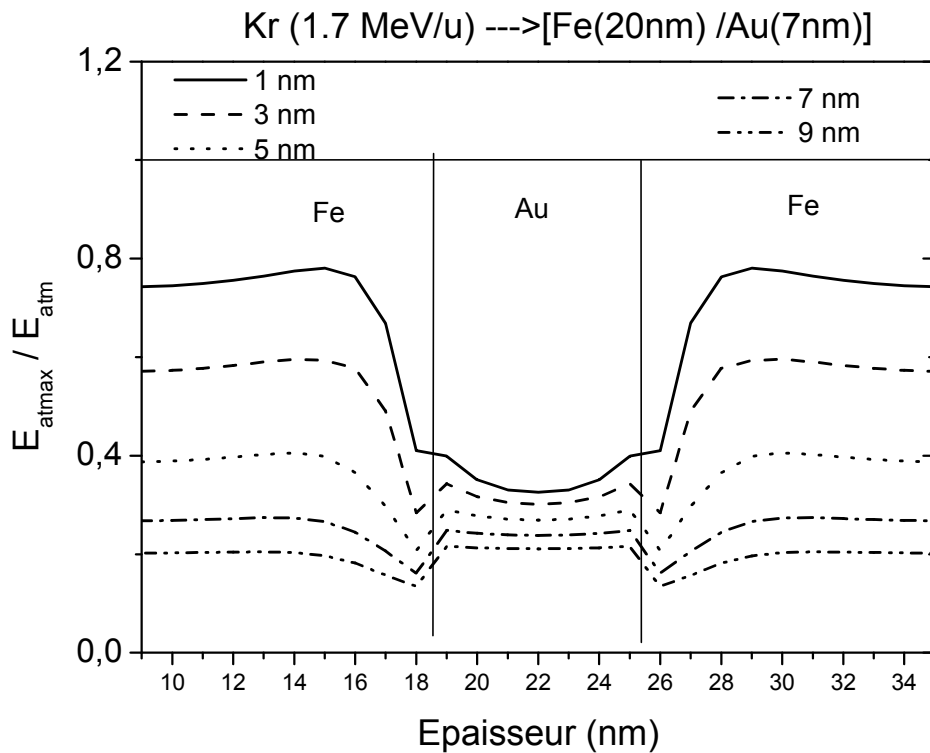


Figure IV-22 : Evolution de l'énergie maximale transférée par atome [$E_{at(max)}$] divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur dans le système $[Fe(20\text{ nm})/Au(7\text{ nm})]_{15}$, irradié avec des ions Kr d'énergie 1.7 MeV/u à la température ambiante, pour différentes distances radiales r .

IV.7.3 Multicouches Fe / Ni :

Toujours dans le cadre de l'étude des multicouches métalliques irradiées à haute énergie, le mélange dans la multicouche métallique $[Fe(3,3\text{ nm}) / Ni(1,3\text{ nm})]_{10}/Si$ irradiée par des ions Au d'énergie 120 MeV a été étudié par S. K. Srivastava et al.. En utilisant les techniques expérimentales suivantes : XRD, XRR et MOKE ils ont mis en évidence un mélange complet de la multicouche et la formation des nouvelles phases FeNi et FeNi₃. Notons que Ni est insensible à S_e , et le pouvoir d'arrêt dans Fe (34 keV/nm) étant comparable à la valeur seuil $S_{ecr}(Fe)$.

En utilisant notre modèle, nous avons simulé l'énergie déposée par atome pour les deux composants de cette multicouche. La figure (IV-21) montre l'évolution de l'énergie maximale transférée par atome divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur. On constate que l'interface Fe/Ni ne fond pas. Dans ce cas le modèle ne prévoit

pas l'interdiffusion dans la phase liquide. Le fait que l'épaisseur des couches utilisée est très faible, nous laisse suggérer que l'interdiffusion dans ce cas-là est due plutôt aux collisions nucléaires.

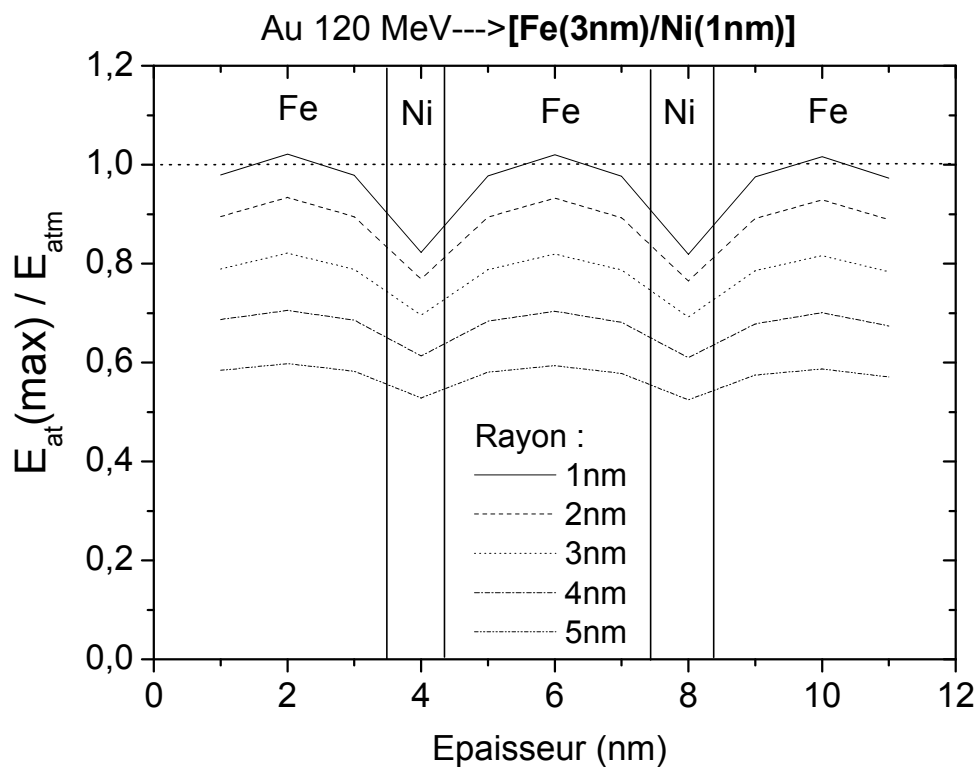


Figure IV-21 : Evolution de l'énergie maximale transférée par atome [$E_{at}(max)$] divisée par l'énergie nécessaire pour fondre en fonction de l'épaisseur dans le système $[Fe(3\text{ nm})/Ni(1\text{ nm})]_{15}$, irradié avec des ions Au d'énergie 120 MeV à la température ambiante, pour différentes distances radiales r .

Conclusion générale

Cette étude est une contribution à la compréhension du mélange induit à l'interface des multicouches métalliques nanométriques irradiées par des ions lourds rapides. Une simulation de la diffusion de la chaleur dans le système après irradiation a été réalisée avec le code de calcul à trois dimensions, appelé modèle de la pointe thermique, qui tient compte de l'échange de l'énergie entre les différents matériaux. Nous avons modélisé la dissipation radial et axial de l'énergie thermique grâce à la résolution numérique des deux équations régissant le transfert d'énergie dans les deux sous-systèmes : électronique et atomique. Les calculs ont été réalisés pour différentes valeurs de pouvoir d'arrêt électronique et pour différentes épaisseurs des composants de la multicouche.

Nous avons appliqué ce modèle à l'étude théorique des multi-couches [Fe(30Å)/Au(x)]₁₅ et [Fe(30Å)/Al(x)]₁₅ (x variant de 1 à 9 nm) dont l'or et l'aluminium sont considérés comme insensibles aux excitations électroniques. Les calculs ont été effectués pour plusieurs types d'ions (Pb, Xe, Kr) à l'énergie 3 MeV/a. L'apparition de la phase liquide a été mise en évidence dans Au et Al le long de la trace. Dans le système Fe/Al irradié par les ions Pb: pour une épaisseur constantes de 3 nm de Fe, Al fond entièrement lorsque son épaisseur est inférieure à 5nm. L'énergie déposée sur les atomes de Fe diminue avec l'épaisseur de Al jusqu'à atteindre un niveau plus bas que l'énergie nécessaire pour fondre une épaisseur de Al supérieure à 2 nm. Dans le cas des ions Xe, les calculs montrent bien que quelque soit l'épaisseur de Al, l'énergie déposée sur Fe n'atteint pas le seuil de fusion. Quant à Al, la phase liquide apparaît à condition que son épaisseur soit inférieure à 3 nm. Dans le cas des ions Kr, aucun des deux matériaux ne fond quelque soit leur épaisseur. Lorsqu'on augmente l'épaisseur de Fe , l'énergie déposée sur les atomes de Fe et Al augmente. Dans le système Fe/Au irradié par les ions Pb: pour une épaisseur constantes de 3 nm de Fe, Au fond entièrement lorsque son épaisseur est inférieure à 7nm tandis que l'énergie déposée sur Fe augmente avec l'épaisseur de Au, contrairement au cas de la multicouche Fe/Al. Dans le cas des ions Xe, pour que Au fonde, il faut que son épaisseur soit inférieure à 3nm. Dans le cas des ions Kr, aucun des deux matériaux ne fond.

Plus la constante du couplage électron-phonon du métal sensible est grande, plus l'énergie transmise au métal insensible est grande et plus l'épaisseur fondue est importante.

L'application du modèle de la pointe thermique, sur quelques multicouches étudiées expérimentalement, a montré que ces prédictions concernant la fusion des interfaces sont en bon accord avec les résultats expérimentaux. Le modèle fournit aussi une méthode pour calculer les rayons de fusion ainsi que le temps pendant lequel la matière persiste en phase liquide. Ces deux paramètres permettent d'estimer les coefficients d'interdiffusion. Les valeurs de ces coefficients calculées sont beaucoup plus grandes que celles correspondantes à l'interdiffusion dans la phase solide. Ce qui conforte l'hypothèse selon laquelle l'interdiffusion a bien lieu dans la phase liquide.

Ce travail montre bien que le modèle de la pointe thermique permet de prédire l'interdiffusion par l'intermédiaire de la fusion. Toutefois, cette interdiffusion n'est pas toujours possible dans la phase liquide où d'autres paramètres comme la chaleur de mélange et l'énergie de cohésion peuvent s'imposer.

Appendice 1

1.1– Détermination de $\langle v \rangle$

$\langle v \rangle = \sqrt{2m_e \langle E \rangle}$ où m_e et $\langle E \rangle$ sont respectivement la masse et l'énergie moyenne des électrons. L'énergie moyenne du gaz d'électron est définie par :

$$\langle E \rangle = \frac{\int_0^{\infty} \varepsilon \rho(\varepsilon) f(\varepsilon) d\varepsilon}{\int_0^{\infty} \rho(\varepsilon) f(\varepsilon) d\varepsilon}$$

La densité d'états $\rho(\varepsilon)$ du gaz d'électrons libres est donnée par :

$$\rho(\varepsilon) = \frac{V}{2\pi^2} \left(\frac{2m_e}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} \varepsilon^{\frac{1}{2}}$$

V est le volume du matériau. $f(\varepsilon)$ est la fonction de distribution de Fermi-Dirac définie plus haut.

Le changement de variable $\zeta^{-1} = \frac{\varepsilon_F}{k_B T_e}$ et l'utilisation de la formule approximative précédente

conduisent à l'expression suivante :

$$\langle E \rangle = k_B T_e \frac{F_{3/2}}{F_{1/2}} \approx \varepsilon_F (\zeta^2 + 0.16)^{1/2}$$

1.2– Détermination de la section efficace σ :

La section efficace σ pour qu'un électron d'énergie ε_1 transmet une énergie $\Delta\varepsilon$ à un électron d'énergie ε_2 au cours d'une collision en tenant compte du principe de Pauli et pour des faibles transferts d'énergie $\Delta\varepsilon \ll \varepsilon_1, \varepsilon_2$ est donnée par l'expression suivante :

$$\sigma = 2\sigma_{tr} \left(\frac{F_{1/2}}{2F_{-1/2}} \right)^2 \approx \frac{2\sigma_{tr}}{1 + \left(\frac{2k_B T_e}{3\varepsilon_F} \right)^2}$$

La section efficace différentielle de transport σ_{tr} pour la collision de deux électrons est

déterminée par l'utilisation du potentiel coulombien écranté $V(r) = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0 r} \exp\left(-\frac{r}{d}\right)$

Où d est le rayon de Debye donné par : $d^2 = \frac{\varepsilon_F}{4\pi n_e e^2} \sqrt{\left(\frac{k_B T_e}{\varepsilon_F} \right)^2 + \frac{4}{9}}$

L'expression de la diffusivité thermique peut se mettre sous la forme :

$D_e = D_{e0} \Phi(\zeta)$ où ζ est la température réduite définie par $k_B T_e/\varepsilon_F$ et Φ est la fonction

définie comme : $\Phi(\zeta) = \frac{Z^2}{\zeta^2} (\zeta^2 + 0.16)^{1/4} [\ln(1+Z) - \frac{Z}{1+Z}]^{-1}$

Avec $Z = \frac{2}{3} \left(\frac{9\pi}{4}\right)^{4/3} \frac{1}{r_s} \sqrt{(\zeta^2 + 0.16)(\zeta^2 + \frac{4}{9})}$ et $D_{e0} = (8/9\pi) (h/m) = 0.402 \text{cm}^2/\text{s}$

r_s est le rayon de la sphère équivalente au volume libre autour d'un électron :

$$\frac{1}{n_e} = \frac{4}{3} \pi (a_B r_s)^3 \quad (a_B \text{ est le rayon de Bohr } (0.529 \text{ \AA}))$$

Appendice 2

Le mécanisme fondamental, à la base de l'interaction électron-phonon, est décrit par le phénomène de polarisation locale. Le phonon est un mode de vibration du réseau atomique. Si on se place à un endroit donné du réseau, les atomes ne sont pas à leur position d'équilibre, il apparaît donc une polarisation locale \vec{P} , d'où un champ électrique local \vec{E} induit, qui agit sur l'électron par la force classique $\vec{F} = -e\vec{E}$

Le traitement complet de cette interaction nécessite la prise en compte de la population F_k d'électrons d'énergie $\varepsilon_k = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e}$ et de la population N_q de phonons d'énergie $\hbar\omega_q$ (\vec{q} vecteur d'onde du phonon). Un électron de vecteur d'onde \vec{k} , interagit avec un phonon pour arriver dans un état final \vec{k}'

Les vecteurs vérifient les relations de conservation de l'impulsion :

$$\vec{k} + \vec{q} = \vec{k}' : \quad \text{absorption d'un phonon}$$

$$\vec{k} = \vec{k}' + \vec{q} : \quad \text{émission d'un phonon.}$$

2.1- Détermination de l'élément de matrice de l'interaction électron-phonon

Nous déterminons la forme $M_{kk'}$: l'élément de matrice de l'interaction électron-phonon dans le cas de l'émission d'un phonon $\vec{k} = \vec{k}' + \vec{q}$

Comme constaté plus haut, l'interaction électron- phonon est gouverné par le phénomène de la polarisation :

La polarisation du réseau est par définition :

$$\vec{P} = n_a e \vec{u}(r)$$

où n_a est la densité atomique du réseau

e : la charge électronique

$\vec{u}(r)$: le vecteur déplacement du réseau

2.2- détermination du vecteur déplacement du réseau

Le mouvement du réseau est décrit selon l'approximation harmonique par un système de vibrations normales non couplées. La forme générale du déplacement u_n du n^{ime} atome peut être écrit comme une superposition des déplacements élémentaires correspondant à toutes les branches de vibration et toutes les valeurs possibles du vecteur \vec{q} :

$$\vec{u}_n = \sum_{q_j} \sqrt{\frac{\hbar}{2m_a \omega_{q_j} N}} \vec{e}_{q_j} [a_{q_j} \exp iqn + a_{q_j}^* \exp -iqn]$$

m_a est la masse d'un atome

N : le nombre d'atomes vibrants

\vec{e}_{q_j} le vecteur unitaire dans la direction j

La dépendance temporelle du déplacement est incluse dans les coefficients a_{q_j}

$$\frac{da_{q_j}}{dt} = -\omega_j(q) a_{q_j}$$

L'obtention de l'opérateur déplacement u_n s'obtient, en remplaçant les amplitudes a_{q_j} et $a_{q_j}^*$ par les opérateurs de création et d'annihilation de phonon ^[DAV 65]. Dans ce cas l'opérateur de déplacement peut être mis sous la forme :

$$\vec{u}_n = \sqrt{\frac{\hbar}{2m_a N}} \sum_{q_j} \vec{e}_{q_j} \sqrt{\frac{1}{\omega_j(q)}} (a_{q_j} \exp iqn + a_{q_j}^+ \exp -iqn)$$

Le changement de l'opérateur de déplacement du n^{ième} atome dans le réseau à un opérateur de variable continue s'obtient en écrivant :

$$\vec{u}(r) = \sum_n \vec{u}_n \delta(r-n)$$

L'écriture finale du vecteur déplacement du réseau est :

$$\vec{u}(r) = V^{-1/2} \sum_{q_j} \vec{e}_{q_j} \sqrt{\frac{\hbar}{2m_a n_a \omega_j(q)}} (a_{q_j} \exp i q r + a_{q_j}^{\dagger} \exp -i q r)$$

du fait de la présence des ondes optiques longitudinales, nous n'aurons pas de sommation sur j.

$$\vec{u}(r) = V^{-1/2} \sum_q \vec{e}_q \sqrt{\frac{\hbar}{2m_a n_a \omega(q)}} (a_q \exp i q r + a_q^{\dagger} \exp -i q r)$$

Le vecteur de polarisation s'écrit alors :

$$\vec{P}(r) = n_a e V^{-1/2} \sum_q \frac{\hbar}{2m_a n_a \omega(q)} \vec{e}_q (a_q \exp i q r + a_q^{\dagger} \exp -i q r)$$

La polarisation conduit à une charge de polarisation égale à $\text{div } \vec{P}$, L'énergie d'interaction d'un électron avec cette charge est donnée par :

$$E_{\text{int}} = -e \int Q(r-r') \text{div } \vec{P}(r') dr'$$

Les électrons forment un écran à l'interaction entre deux d'entre eux. Cela signifie que ces électrons peuvent effectivement interagir s'ils sont suffisamment proches l'un de l'autre. Nous pouvons décrire cette interaction par le potentiel approché ^[DUF 93] : $Q(r-r') = a^{-2} \delta(r-r')$ où a est de l'ordre de quelques distances interatomiques.

$$H_{\text{int}} = E_{\text{int}} = i n_a e^2 a^2 \sum_q \frac{\hbar}{2n_a m_a \omega(q)} \int \delta(r-r') q (a_q \exp i q r' - a_q^{\dagger} \exp -i q r') dr'$$

L'élément de matrice $M_{kk'}$ est donné par :

$$M_{kk'} = \langle \psi_{k n_q} | H_{\text{int}} | \psi_{k' n_{q-1}} \rangle$$

$|\psi_k\rangle = u_k(r) \exp i k r$ qui est la fonction de Bloch décrivant le mouvement de l'électron, $u_k(r)$: une fonction périodique qui a la périodicité du réseau.

$|n_q\rangle$: le ket propre de l'hamiltonien harmonique.

$$M_{kk'} = ie^2 a^2 \sum_q \sqrt{\frac{\hbar}{2n_a m_a \omega(q)}} \left[\int \exp i(q+k-k')r \langle n_q | a_q | n_{k-1} \rangle u_k^*(r) u_{k'}(r) dV - \int \langle n_q | a_q^\dagger | n_{q-1} \rangle u_k^*(r) u_{k'}(r) dV \right] \quad (\text{III-19})$$

Le produit $u_k^*(r) u_{k'}(r)$ se compose des parties périodiques des fonctions de Bloch.

Il a donc la même périodicité du réseau. Ainsi les intégrales figurant dans (III -19) sont nulles, à moins que :

$$\vec{k} - \vec{k}' \pm \vec{q} = \begin{cases} \vec{0} \\ \vec{G} \end{cases}$$

Si $\vec{k} - \vec{k}' \pm \vec{q} = \vec{0}$: on dit qu'il s'agit d'un processus normal appelé encore N.

Si $\vec{k} - \vec{k}' \pm \vec{q} = \vec{G}$

\vec{G} : désigne un vecteur du réseau réciproque. On dit que l'on a affaire à un processus Umklapp ou processus U.

La classification en processus normal ou umklapp dépend du choix de la zone de brillouin. Par vecteur du réseau réciproque, nous entendons un vecteur dont l'origine et l'extrémité sont situées en deux points du réseau réciproque.

Dans notre cas, nous nous limitons au processus N. Pour simplifier, nous assimilons $\int dV u_k(r) u_{k'}(r)$ à l'unité.

Dans le cas de l'émission d'un phonon ; en considérant le deuxième terme de l'intégrale (III- 19) avec $\langle n_q | a_q^\dagger = \sqrt{n_q} \langle n_{q-1} |$ et en utilisant l'approximation de Debye $\omega_q = sq$ (s est la vitesse du son dans le matériau considéré), nous obtenons :

$$M_{kk'} = -iV^{-1/2} e^2 a^2 n_a \frac{\omega_q}{s} n_q^{1/2} \left(\frac{\hbar}{2n_a m_a \omega_q} \right)^{1/2}$$

L'interaction électron -phonon n'est rien d'autre que l'échange d'énergie entre les électrons et les phonons, c'est à dire :

$$U_{e-ph} = \frac{V}{(2\pi)^3} \int_0^{\omega_{\max}} \rho(\omega_q) \frac{\partial N_q}{\partial t} h \omega_q d\omega_q$$

$\rho(\omega_q)$ est la densité d'états. Elle est proportionnelle à ω^2 .

Kaganov et al ^[KAG 57] ont montré à partir de l'évolution de la population N_q de phonons, que $\frac{\partial N_q}{\partial t}$ s'exprimait en fonction des températures du gaz d'électron et du réseau :

$$\frac{\partial N_q}{\partial t} = |M_{kk'}|^2 \left[\frac{1}{(\exp(\frac{h\omega_q}{kT_e}) - 1)} - \frac{1}{(\exp(\frac{h\omega_q}{kT_a}) - 1)} \right] \delta(\epsilon_k - \epsilon_{k'} - h\omega_q)$$

En observant l'expression à intégrer, nous constatons qu'elle est proportionnelle à

$$\frac{\omega_q^4}{(\exp(\frac{h\omega_q}{kT}) - 1)}. \text{ L'expression définitive de } U_{e-ph} \text{ en fonction de la température de Debye}$$

T_D est :

$$U_{e-ph} = \frac{3}{16} \frac{e^4 n_q h^2}{s^2 a^4 m_a \pi^3} \left[\left(\frac{T_e}{T_D}\right)^5 \int_0^{T_D/T_e} \frac{x^4 dx}{(e^x - 1)} - \left(\frac{T_a}{T_D}\right)^5 \int_0^{T_D/T_a} \frac{x^4 dx}{(e^x - 1)} \right]$$

Avec $x = h\omega/kT$; T_D est la température de Debye

Appendice 3

3-1. Conductivité thermique et chaleur spécifique atomique des métaux étudiés :

1- Le Fer (Fe) :

La chaleur latente de fusion : 247 J/g

La chaleur latente d'évaporation : 7014 J/g

La masse molaire moyenne : 55.85 g/mole

La masse spécifique moyenne du solide : 7.86 g/cm³

La masse spécifique moyenne du liquide : 7.015 g/cm³

La densité électronique : 8.5 10²²cm⁻³

Température (K)	Ks (J/s/cm/K)	Cs (J/g/K)
10	7.05	0.00124
50	3.72	0.055
100	1.32	0.216
200	0.94	0.84
300	0.803	0.447
500	0.613	-
673	-	0.611
800	0.433	-
1000	0.326	-
1073	-	0.791
1809	0.316	0.795
3800	0.316	0.795
3801	0.02	0.795
10000	0.034	0.795
100000	0.1	0.795

2- L'aluminium (Al):

La chaleur latente de fusion : 398 J/g

La chaleur latente d'évaporation : 10866 J/g

La masse molaire moyenne : 27 g/mole

La masse spécifique moyenne du solide : 2.7 g/cm³

La masse spécifique moyenne du liquide : 2.39 g/cm³

La densité électronique : 6 10²²cm⁻³

Température (K)	Ks (J/s/cm/K)	Cs (J/g/K)
273	2.38	0.92
373	-	0.92
473	-	0.98
573	-	1.03
673	-	1.08
932.99	2.38	1.08
933	0.94	1.08
1273	1.05	1.08
2449.99	1.05	1.08
2450	0.02	1.08
10000	0.035	1.08
100000	0.11	1.08
1000000	0.35	1.08

3- L'Or (Au) :

La chaleur latente de fusion : 63.7 J/g

La chaleur latente d'évaporation : 1698 J/g

La masse molaire moyenne : 197.98 g/mole

La masse spécifique moyenne du solide : 19.3 g/cm³

La masse spécifique moyenne du liquide : 19.2 g/cm³

La densité électronique : 5.9 10²²cm⁻³

Température (K)	Ks (J/s/cm/K)	Cs (J/g/K)
10	28.5	0.0022
40	5.00	0.0572
50	-	0.0726
100	3.4	0.1083
200	3.155	0.1235
373	2.93	0.13
773	1.02	0.142
1173	0.7	0.151
1673	-	0.149
3243	0.009	0.149
10000	0.016	0.149
100000	0.05	0.149
1000000	0.16	0.149
10000000	0.5	0.149

4- Le Titan (Ti):

La chaleur latente de fusion : 420 J/g

La chaleur latente d'évaporation : 8814 J/g

La masse molaire moyenne : 47.9 g/mole

La masse spécifique moyenne du solide : 4.51 g/cm³

La masse spécifique moyenne du liquide : 4.11 g/cm³

La densité électronique : 5.6 10²²cm⁻³

Température (K)	Ks (J/s/cm/K)	Cs (J/g/K)
10	0.115	0.00126
40	0.35	0.0571
50	0.36	0.0992
90	0.35	0.276
100	0.35	0.3
273	0.216	-
280	-	0.514
373	0.15	0.54
673	0.14	0.619
873	0.13	0.636
1933	0.13	-
3243	0.02	0.7
10000	0.035	0.7
100000	0.11	0.7
1000000	0.35	0.7
10000000	1.11	0.7

5- Le Bismuth (Bi) :

La chaleur latente de fusion : 54 J/g

La chaleur latente d'évaporation : 451 J/g

La masse molaire moyenne : 208.98 g/mole

La masse spécifique moyenne du solide : 9.81 g/cm³

La masse spécifique moyenne du liquide : 10.02 g/cm³

La densité électronique : 2.82 10²²cm⁻³

Température (K)	Ks (J/s/cm/K)	Cs (J/g/K)
10	1.63	-
20	0.815	-
40	0.407	-
50	0.326	-
90	0.181	-
110	0.15	-
200	0.11	-
293	0.08	0.21
373	0.075	0.13
544	0.171	0.146
973	0.155	0.146
1837	0.155	0.146
10000	0.36	0.146
100000	1.13	0.146
1000000	3.6	0.146

6- Le Silicium (Si) :

La chaleur latente de fusion : 1797 J/g

La chaleur latente d'évaporation : 13722 J/g

La masse molaire moyenne : 28 g/mole

La masse spécifique moyenne du solide : 2.32 g/cm³

La masse spécifique moyenne du liquide : 2.5 g/cm³

La densité électronique : 4.9 10²²cm⁻³

Température (K)	Ks (J/s/cm/K)	Cs (J/g/K)
60	8	0.115
100	5	0.259
200	2.66	-
400	1.05	-
450	-	0.77
600	0.64	0.8
900	0.36	0.86
1100	0.28	0.9
1200	0.255	-
1683	0.22	1.037
2953	0.14	1.045
2953.1	0.01	1.045
10000	0.0088	1.045
100000	0.0277	1.045
1000000	0.088	1.045
10000000	0.277	1.045
200000000	1.24	1.045

Bibliographie

- [And 79] H.H. Anderson, *Apply. Phys.* 18 (1979) 131.
- [Aud 90] A. Audouard, E. Balanzat, S. Bouffard, J.C. Jousset, A. Chamberod, A. Dunlop, D. Lesueur, G. Fuchs, R. Spohr, J. Vetter and L. Thome, *Phys. Rev. Lett.* 65 (1990) 875.
- [Ash 76] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin *Solid State Physics* Holt Saunders International Editions (1976) 340
- [Bau 97] Ph. Bauer, C. Dufour, C. Jaouen, G. Marchal, J. Pacaud, J. Grilhe, J. C. Jousset, J. *Appl. Phys.* 81 (2002) 116.
- [Bar 91] A. Barbu, A. Dunlop, D. Lesueur and R.S. Averback, *Europhys. Lett.* 15 (1991) 37.
- [Bar 92] A. Barbu, A. Dunlop, J. Henry, D. Lesueur and N. Lorenzelli. *Mater. Sci. Forum* 97-99 (1992) 577.
- [Bol 93] W. Bolse, *Nucl. Instrum. Meth. B* 80/81 (1993) 137.
- [Bol 94] W. Bolse, *Mat. Sci. Eng.* R12. (1994) 53
- [Bol 02a] Wolfgang Bolse, Beate Schattat, *Nucl. Instrum. Meth. B* 190 (2002) 173-176.
- [Bol 02b] Wolfgang Bolse, *Surface and Coatings Technology*, 158-159 (2002) 1-7.
- [Bol 03] Wolfgang Bolse, *Radiation measurements* 36 (2003) 597-603.
- [Bol 04] Wolfgang Bolse, Beate Schattat, Ando Feyh, Tilmann Renz, *Nucl. Instrum. Meth. B* 218 (2004) 80-88.
- [Bor 90] P. Borgesen, D. A. Lilienfeld, H.H. Johnson, *Appl. Phys. Lett.* 57 (1990) 1407.
- [Can 96] B. Canut, S.M.M. Ramos, R. Brenier, P. Thévenard, J. L. Loubet, M. Toulemonde, *Nucl. Instr. and Meth. B* 107 (1996) 194
- [Che 84] Y.T. Cheng, M. van Rossum, M. A. Nicolet and W.L. Johnson, *Appl. Phys. Lett.* 45 (1984) 185.
- [Che 90] Y.T. Cheng, *Mat. Sci. Rep.* 5 (1990) 45.
- [Chet 90] A. Chettah, Z. G. Wang, M. Kac, H. Kucal, A. Meftah, M. Toulemonde, *Nucl. Instrum. Meth. B* 245 (2006) 150-156.

- [Con 95] J. Conrad, W. Bolse, K. Lieb, T. Weber, *surf. Coa. Technol.* 74/75 (1995) 927.
- [Dam 93 a] H. Dammak, A. Barbu, A. Dunlop, D. Lesueur and N. Lorenzelli, *Philos. Mag. Lett.* 67 (1993) 253.
- [Dam 93 b] H. Dammak, D. Lesueur, P. Legrand, J. Morillo, *Radiat. Eff. Defests solids* 126 (1993).
- [Dam 98] H. Dammak, A. Dunlop, *Nucl. Instrum. Meth. B* 146 (1998) 285.
- [Dar 85] E. Dartyge and P. Sigmund, *Phys. Rev. B* 32 (1985) 5249
- [Duf 93a] C. Dufour Thèse de docteur université de Caen (1993)
- [Duf 93b] C. Dufour, A. Audouard , F. Beuneu, J. Dural, J. P. Girard, A. Hairie, M. Levlois E. Paumier et M. Toulemonde, *J. Consens. Matter* 5 (1993) 4573.
- [Dun 89] A. Dunlop, D. Lesueur, G. Jaskierowicz and J. Schildknecht, *Nucl. Instr. and Meth. B* 42 (1989) 412.
- [Dun 90] A. Dunlop, D. Lesueur, P. Legrand, H. Dammak and J. Dural, *Nucl. Instr. and Meth. B* 90 (1990) 330.
- [Dun 91] A. Dunlop, P. Legrand, D. Lesueur, N. Lorenzelli, J. Morillo, A. Barbu and S. Bouffard, *Europhys. Lett.* 15 (1991) 765
- [Dun 92] A. Dunlop and D. Lesueur, *Mater. Sci. Forum* 97-99 (1992) 553.
- [Dun 93] A. Dunlop, D. Lesueur, *Rad. Eff. Def. Sol.* 126 (1993) 123.
- [Dun 94] A. Dunlop, D. Lesueur, P. Legrand, H. Dammak, *Nucl. Instr. and Meth. B* 90 (1994) 430.
- [Fel 68] L.C. Feldman and J.W. Mayer, *Fundamentals of surface and thin film analysis, North-Holland, New York, 1968.*
- [Ger 92] B. Gervais (1993) Communication privée.
- [Hof 91] W.O. Hofer, *in Sputtering by Particle Bombardement III*, edited by R. Behrish and K; Wittmaak (Springer, Berlin, 1991).
- [Iwa 85] A. Iwase, S. Sasaki, T. Iwata and T. Nihira, *J. Nucl. Mater* 133/134 (1985) 365.

- [Iwa 87] A. Iwase, S. Sasaki, T. Iwata and T. Nihira, Phys. Rev. Lett. 58 (1987) 2450.
- [Iwa 88] A. Iwase, S. Sasaki, T. Iwata and T. Nihira, J. Nucl. Mater 155-157, 1188 (1988).
- [Iwa 92] A. Iwase, T. Iwata and T. Nihira, J. Phys. Soc, Japan 61 (1992) 3878 .
- [Jao 99] C. Jaouen, A. Michel, J. Pacaud, C. Dufour, Ph. Bauer, B. Gervais, Nucl. Instrum. Meth. B 148 (1999) 176-183.
- [Joh 85] W.L. Johnson, Y.T. Cheng, M. van Rossum and M.A. Nicolet, Nucl. Instrum. Meth. B7/8 (1985) 657.
- [Kat 69] R. Katz, E.J.Kobetich Phys. Rev. 186 (1969) 344.
- [Kel 96] R. Kelly, A. Miotello, Surf. Coat. Technol. 83 (1996)134.
- [Kit 76] C. Kittel, introduction to solide state physics, 5th edn, John Wiley, New York (1976).
- [Kuc 03] H. Kucal, Communication privée, (2003).
- [Kum 06] Sarvesh kumar, R. S. Chauhan, S. A. Khan, W. Bolse, D. K. Avasthi, Nucl. Instrum. Meth. Bxxx (2006) xxx, in pres.
- [Lee 73] D.H. Lee, R.R. Hart, D.A. Kiewit and O.J. Marsh, Phy. Stat. Sol, 15a (1973) 645.
- [Leg 92] P. Legrand, A. Dunlop, D. Lesueur, N. Lorenzelli, J. Morillo and S. Bouffard, Mater. Sci. Forum 97-99 (1992) 587.
- [Leg 95] R. Leguay, A. Dunlop, F. Dunstetter, N. Lorenzelli, A. Braslau, F. Bridou, J. Corno, B, Pardo, J. Chevallier, C. Collieux, A. Menelle, J. L. Rouvière, Nucl. Instrum. Meth. B 106 (1995) 28.
- [Leg 97] R. Leguay, A. Dunlop, F. Dunstetter, N. Lorenzelli, A. Braslau, F. Bridou, J. Corno, B, Pardo, J. Chevallier, C. Collieux, A. Menelle, J. L. Rouvière, L. Thomé, Nucl. Instrum. Meth. B 122(1997) 481-502.
- [Leh 77] C. Lehmann, Interaction of irradiation wirth solids and elementary defect production. Series Defects in crystalline Solids Vol. 10 North Holland Publishing Company (1977).

- [Lif 60] J. Lifshits I.M, Kaganov M.I., Tanatov L.V. Journal Nucl. Energy Part A Reactor Science 12 (1960)69.
- [Lin 63] J. Lindhard, M. Scharff and H. E. Schott, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selk. 33 (14) (1963).
- [Lin 68] J. Lindhard, V. Nielsen and M. Scharff, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selk. 36 (10)(1968).
- [Mar 83] Yu. V Martinenko, Yu. N.Yavlinskii Sov. Phys. Dokl.28(1983) 391-392.
- [Mat 82] S. Matteson and M-A. Nicolet, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 7 (1982) 3.
- [Mea 65] G. Meaden Electrical Resistance of Metals. Heywood Books (1965).
- [Mef 93a] A.Meftah, M.Hage Ali, J.P Stoquert, F.studer and M. Toulmonde. Rad. Eff. Def. Solids 126(1993)251.
- [Mef 93b] A.Meftah, F. Brisard, J.M. Costantini, M.Hage Ali, J.P Stoquert, F.studer and M. Toulmonde. Phys. Rev B, Vol 48, N°=2 (1993) 920-925.
- [Mef 97] A.Meftah, M. Djebara, N. Khalfaoui, J.P Stoquert, F.studer and M. Toulmonde, Mat. Sci. Forum 248 (1997) 53.
- [Mie 03] H.D. Mieskes, W. Assmann, F. Grüner, H. Kucal, Z. G. Wang. M. Toulemonde.
- [Mil 88] H.M. Milchberg, R.R. Feerman, S.C. Davey, R.M. More, Phys. Rev.Lett. 61(1988) 2364-2367
- [Mou 90] A .Mourchid, Thèse (1990) Université Paris Sud. Centre Orsay
- [Nas 94] M.Nastasi, J.W. Mayer, Mat. Sci. Eng, R12. (1994)1.
- [Pau 89] E. Paumier, M. Toulemonde, J. Dural, F. Rullier-Albenque, J. P. Girard et P. Bogdanski, Europhys. Lett. 10 (1989) 555
- [Ros 81] M. van Rossum, U. Shreter, W.L. Johnson and M.-A. Nicolet. Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 27 (1981) 127.

- [Ros 85] M. van Rossum, Y.T. Cheng, M. A. Nicolet and W.L. Johnson, Appl. Phys. Lett. 46 (1985) 610.
- [Rum 06] C. Rumbolz, W. Bolse, S. Kumar, R.S. Chauhan, D. Kabiraj, D. K. Avasthi, Nucl. Instrum. Meth. Bxxx (2006) xxx, in press.
- [Sch 04] B. Schattat, W. Bolse, Nucl. Instrum. Meth. B225 (2004) 105-110.
- [She 63] P.G. Shemon, Diffusion in solids, MacGraw-Hill, New York, 1963.
- [Sig 74,75] P. Sigmund, Appl. Phys. Lett. 25 (1974) 169 , and Appl. Phys. Lett. 27(1975)52.
- [Sis 05] Veenu Sisodia, Wolfgang Bolse, D. K. Avasthi, D. Kabiraj, I.P. Jain, Radiation measurements 40 (2005) 762-764
- [Sri 05] S. K. Srivastava, Ravi Kumar, A. Gupta, R. S. Patel, A.K. Majumdar, D. K. Avasthi, Nucl. Instrum. Meth., in press.
- [Stu 91] F. Studer, C. Houpert, H. Pascad, R. Spohr, J. Vetter, M. Toulemonde, Jin YUN Fan, Rad. Eff. And Def. 116 (1991) 59.
- [Tou 94] M. Toulemonde, S. Bouffard, F. Studer, Nucl. Instr. and Meth. B 91 (1994) 108
- [Tou 92] M. Toulemonde, C.Dufour, and E.paumier, pyys. Rev. B46, (1992) 14362
- [Tou 95] M. Toulemonde, Appl. Radiat. Isol. Vol. 46. No. 6/7, 375-381, 1995.
- [Van 74] W.F. van der Weg, D. Sigurd and J.W. Mayer, in S.T. Picraux (ed.), Applications of ions beams to metals, Plenum Press, New York, 1974, P. 209.
- [Wan 93] L. Wang, N. Angert, D. Rück, C. Trautmann, J, Vetter, Z. Quan, H. Hantshe, Nucl. Instrum. Meth. B 83 (1993) 503.
- [Wan 94] Z. G. Wang, Ch. Dufour, E. Paumier et M. Toulemonde, J. Phy. Condens. Matter 6 (1994) 6733-6750
- [Wan 95] L. Wang, N. Angert, C. Trautmann, J, Vetter, J. Adhesion, Sci. Technol. B 9 (1995) 1523.

- [Wan 03] Z. G. Wang, C. Dufour, S. Euphrasie, M. Toulemonde, Nucl. Instrum. Meth. B209 (2003) 194-199.
- [Wes 82] H. Westendorp, Z-L. Wang and F.W. Saris, Nucl. Instrum. Meth. 194 (1982) 543.
- [Zie 85] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark, *The stopping and range of ions in solids*, Pergamon Press, New York, 1985.

Résumé : L'irradiation de multicouches métalliques nanométriques par des ions lourds rapides, d'énergie supérieure à quelques MeV par unité de masse atomique peut entraîner des modifications profondes de leurs propriétés et participer directement à la création de zones fondues et un mélange entre deux matériaux peut avoir lieu. Afin de cerner les phénomènes physiques favorisant ce mélange, une simulation de la diffusion de la chaleur dans le système après irradiation a été réalisée avec le code de calcul à trois dimensions, appelé modèle de la pointe thermique, qui tient compte de l'échange de l'énergie entre les différents matériaux. nous avons appliqué ce modèle à l'étude théorique des multicouches $[Fe(30\text{Å})/Au(x)]_{15}$ et $[Fe(30\text{Å})/Al(x)]_{15}$ (x variant de 1 à 9 nm) dont l'or et l'aluminium sont considérés comme insensibles. La diffusion de la chaleur dans le système après l'irradiation a été simulée avec un code à trois dimensions qui tient compte de l'échange de l'énergie entre les différents matériaux. Les calculs ont été effectués pour plusieurs types d'ions (Pb, Xe, Kr) à l'énergie 3 MeV/a. L'apparition de la phase liquide a été mise en évidence dans Au et Al le long de la trace. La simulation faite par exemple pour l'irradiation avec les ions de Pb montre que dans le cas de la multicouche Fe/Au, la phase liquide apparaît dans Au à condition que l'épaisseur de Au soit inférieure à 7 nm. Il est intéressant de constater que, pour la multicouche Fe/Al dans les mêmes conditions d'irradiation, l'aluminium fond tandis que le fer ne fond pas si l'épaisseur de l'aluminium est supérieure à 3 nm. Ce travail montre bien que le comportement des métaux à l'échelle nanométrique n'est pas une extrapolation directe de leur comportement à l'état massif.

Mots clefs : Irradiation, ions lourds rapides, multicouches métalliques nanométriques, phase liquide, mélange, amorphe, simulation, pointe thermique.

ملخص: قذف متعددات الطبقات المعدنية النانومترية بواسطة أيونات ثقيلة و سريعة ذات طاقة أكبر من بعض ال MeV لكل وحدة كتلة ذرية بإمكانه إدخال تغيرات عميقة علي مميزاتهم و تشارك مباشرة في خلق مناطق دائنة بالإضافة إلي إمكانية حصول مزيج بين مادتين. من أجل الإحاطة بالظواهر الفيزيائية التي تفضل هذا المزيج, تم تحقيق محاكاة لانتشار الحرارة في نظام بعد الإشعاع باستعمال شفرة الحساب بثلاث أبعاد تسمى النموذج الحراري, الذي يأخذ بعين الاعتبار التبادل الطاقي بين مختلف المواد. قمنا بتطبيق النموذج الحراري على الدراسة النظرية لمتعدد الطبقات $[Fe(30\text{Å})/Au(x)]_{15}$ و $[Fe(30\text{Å})/Al(x)]_{15}$ (x يتغير من 1 إلى 9 نانومتر) أين نعتبر الذهب والألمنيوم غير حساسين. تمت محاكاة انتشار الحرارة في النظام بعد الإشعاع باستعمال شفرة ثلاثة أبعاد الذي يأخذ بالحسبان التبادل الطاقي بين مختلف المواد. الحسابات أنجزت من أجل عدة أنواع من الأيونات عند طاقة 3 MeV. ظهور الطور السائل لوحظ في الذهب و الألمنيوم علي طول الأثر. المحاكاة التي تمت على سبيل المثال بأيونات الرصاص أوضحت بأنه في حالة متعدد الطبقات Fe/Al, الطور السائل ظهر في الذهب بشرط أن سمك الذهب يكون أقل من 7 نانومتر. من المهم اعتبار, بالنسبة لمتعدد الطبقات Fe/Al في نفس الشروط الإشعاعية, الألمنيوم ينصهر بينما الحديد لا ينصهر إذا كان سمك الألمنيوم أكبر من 3 نانومتر. هذا العمل يوضح جيدا سلوك المعادن في السلم النانومتري بأنه ليس امتداد مباشر لسلوكها في الحالة الصلبة.

الكلمات المفتاحية : الإشعاعات, الأيونات الثقيلة و السريعة, متعددات الطبقات المعدنية, المحاكاة, النموذج الحراري, المزيج, الطور السائل.