



**HAL**  
open science

# Contribution à l'étude de la pulvérisation et de l'endommagement du dioxyde d'uranium par les ions lourds rapides

Sandrine Schlutig

► **To cite this version:**

Sandrine Schlutig. Contribution à l'étude de la pulvérisation et de l'endommagement du dioxyde d'uranium par les ions lourds rapides. Physique [physics]. Université de Caen, 2001. Français. NNT : tel-00002110

**HAL Id: tel-00002110**

**<https://theses.hal.science/tel-00002110>**

Submitted on 10 Dec 2002

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**UNIVERSITE DE CAEN / BASSE-NORMANDIE**  
**UFR Sciences**  
**Ecole Doctorale : Structure, Information, Matière et Matériaux**

## **THESE**

présentée par

**Sandrine SCHLUTIG**

En vue de l'obtention du titre de

**DOCTEUR de l'UNIVERSITE de CAEN**

Spécialité : Milieux Denses et Matériaux  
(Arrêté ministériel du 30 mars 1992)

***Contribution à l'étude de la pulvérisation et de l'endommagement  
du dioxyde d'uranium par les ions lourds rapides***

thèse soutenue le 28 mars 2001

**Composition du jury :**

S. Bouffard	Ingénieur au CEA, CIRIL, Caen	<i>Directeur</i>
S. Della-Negra	Directeur de Recherches au CNRS, IPN, Orsay	<i>Rapporteur</i>
L. Thomé	Directeur de Recherches au CNRS, CSNSM, Orsay	<i>Rapporteur</i>
C. Jaouen	Professeur d'Université, LMP, Poitiers	
J. Colin	Professeur d'Université, LPC, Caen	
J.P. Duraud	Ingénieur au CEA, DRFMC, Grenoble	
C. Lemaignan	Ingénieur au CEA, DRN, Grenoble	

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

*A David qui a toujours cru en moi*

*A ma famille*

*A Olivier*

*« Tant que ceux que nous aimons  
restent présents dans nos mémoires  
il n'y a pas de mort.  
La mort c'est l'oubli. »*

## Remerciements

*Ce travail, rendu possible par les participations conjointes du Commissariat à l'Energie Atomique et de la région Basse Normandie, a été effectué au Centre Interdisciplinaire de Recherche Ions Laser (CIRIL), à Caen, et au Laboratoire Pierre Süe (LPS), à Saclay.*

*Je suis reconnaissante à J.P. Grandin, directeur du CIRIL de m'avoir accueilli au sein de ce laboratoire dans lequel j'ai pu mener cette aventure.*

*Point de thèse sans sujet de thèse. Que S. Bouffard et J.P. Duraud trouvent ici le témoignage de ma reconnaissance pour avoir eu la patience de m'encadrer. J'ai beaucoup apprécié la confiance et la liberté que vous m'avez laissées pour conduire ce travail.*

*Sans le duo féminin du Laboratoire Pierre Süe, M. Bonnin-Mosbah et S. Ayrault, ce travail n'aurait jamais vu le jour. Acceptez toutes deux mes remerciements pour l'aide et le plaisir que j'ai eus à travailler avec vous lors de mes séjours à Saclay.*

*Je tiens à remercier l'ensemble des membres du jury qui ont étudié avec intérêt ce travail, et plus particulièrement S. Della-Negra et L. Thomé qui ont accepté d'être rapporteurs de ce mémoire.*

*Une thèse est la somme d'un travail collectif où l'apport de chacun, bien que d'importance parfois inégale, est toujours indispensable et précieux. Je remercie donc vivement toute l'équipe du CIRIL, qui m'ont beaucoup apporté au plan scientifique et humain, et faute de quoi ce travail n'aurait pas vu le jour.*

*Le diplôme de Doctorat correspond à la fin des études universitaires et je tiens à associer les différentes personnes qui, tout au long de mon cursus, à Amiens et à Caen, m'ont donné à leur manière l'envie de faire de la recherche.*

*Je remercie également C. Prunier et H.W. Myron qui m'ont permis de faire un stage aux Etats-Unis, dans le cadre du programme d'échange entre l'ANS et la SFANS (Section Française de l'American Nuclear Society). J'ai été accueillie pour ce stage « pré-doctoral » de six mois à Argonne National Laboratory au Material Science Division par R.C. Birtcher qui m'a fait partager sa passion pour la recherche et je l'en remercie.*

*A mes Amis « ciriliens », « ex-ciriliens », « non-ciriliens » avec qui j'ai de nombreux souvenirs qui resteront inoubliables, lors de moments musicaux, de séances bricolages, de mémorables préparations de mariage, sur un vélo, lors de séances vidéos, sur des skis, autour d'un ballon, lors d'entraînements de natation... Je vous dis merci d'être mes Amis !*

# *Table des matières*

<b>INTRODUCTION .....</b>	<b>1</b>
<b>CHAPITRE 1 - GÉNÉRALITÉS SUR LE PASSAGE DES IONS DANS LA MATIÈRE .....</b>	<b>3</b>
I - INTRODUCTION .....	3
II - PARAMÈTRES PERTINENTS DE L'INTERACTION ION-MATIÈRE .....	4
II.1 - Le pouvoir d'arrêt.....	4
II.1.1 - Estimation du pouvoir d'arrêt nucléaire .....	5
II.1.2 - Estimation du pouvoir d'arrêt électronique .....	6
II.2 - La vitesse de l'ion.....	11
II.3 - La charge de l'ion.....	13
III - EFFETS INDUITS DANS LE MATÉRIAU CIBLE ET LES MÉTHODES D'ENDOMMAGEMENT .....	14
III.1 - Création de défauts par collisions élastiques .....	14
III.2 - Création de défauts par collisions inélastiques .....	15
III.2.1 - Morphologie et structure de la trace latente .....	15
III.2.2 - Les modèles de création de défauts.....	16
a) Le modèle de l'explosion coulombienne .....	17
b) Le modèle de la pointe thermique .....	17
c) Le modèle d'onde de choc.....	18

<b>CHAPITRE 2 - ETAT DES RECHERCHES SUR LA PULVÉRISATION.....</b>	<b>19</b>
I - GÉNÉRALITÉS.....	20
II - PULVÉRISATION NUCLÉAIRE.....	23
II.1 - Les mécanismes .....	23
II.1.1 - Le régime de collision simple.....	24
II.1.2 - Le régime de cascade linéaire.....	25
II.1.3 - Le régime de pointe .....	27
II.2 - Résultats expérimentaux.....	27
III - PULVÉRISATION ÉLECTRONIQUE .....	31
III.1 - Définition .....	31
III.2 - Les modèles .....	32
III.2.1 - Les modèles de pulvérisation par pointe thermique .....	32
a) La pulvérisation par évaporation thermique .....	33
b) La pulvérisation par flux gazeux .....	37
III.2.2 - Les modèles de pulvérisation par choc .....	41
a) La pulvérisation par onde de choc .....	42
b) La pulvérisation par impulsion de pression.....	47
III.3 - Résultats expérimentaux de la pulvérisation électronique .....	52
III.3.1 - Les distributions angulaires.....	52
III.3.2 - Les rendements de pulvérisation .....	53
III.3.3 - Evolution des rendements de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique.....	55
III.3.4 - Evolution des rendements de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence .....	60
III.4 - Conclusion.....	61
IV - LES OBJECTIFS DE CETTE ÉTUDE.....	62

<b>CHAPITRE 3 - LES EXPERIENCES DE PULVÉRISATION .....</b>	<b>63</b>
I - DÉTECTION DES PARTICULES PULVÉRISÉES.....	64
I.1 - Technique du collecteur.....	64
I.2 - Choix des matériaux .....	65
II - DISPOSITIF D'IRRADIATION AUX IONS LOURDS .....	66
II.1 - Production des ions projectiles.....	66
II.1.1 - Le GANIL .....	66
II.1.2 - Aire expérimentale D1 .....	67
II.2 - Chambre d'irradiation.....	68
II.2.1 - Le porte-cible .....	71
a) La rotation et le déplacement du porte-cible .....	71
b) L'inclinaison du porte-cible .....	72
II.2.2 - Les collecteurs.....	72
III - ANALYSE DES COLLECTEURS PAR LA MÉTHODE DES TRACES DE FISSION.....	73
III.1 - L'irradiation aux neutrons thermiques .....	73
III.2 - Détermination de la fluence de neutrons thermiques par activation neutronique.....	77
III.3 - L'attaque chimique.....	78
III.4 - Observation et comptage des traces de fission.....	82
IV - DÉTERMINATION DES DISTRIBUTIONS ANGULAIRES .....	83
IV.1 - Mesure des angles d'émission des particules pulvérisées .....	83
IV.2 - Détermination du nombre d'atomes d'uranium pulvérisés.....	85
IV.3 - Exemple d'une distribution angulaire.....	86
IV.4 - Fiabilité de la méthode des traces de fission .....	88
IV.4.1 – Comparaison avec l'analyse RBS des collecteurs.....	88
IV.4.2 – Comparaison des micas réplique et collecteur .....	88
a) En incidence normale ( $\psi=0^\circ$ ) .....	88
b) En incidence oblique ( $\psi\neq 0^\circ$ ).....	89

<b>CHAPITRE 4 - PRESENTATION ET ANALYSE DES RESULTATS.....</b>	<b>95</b>
I - LES DISTRIBUTIONS ANGULAIRES .....	96
I.1 - Présentation des distributions angulaires.....	96
I.2 - Description des distributions angulaires .....	98
I.2.1 - En incidence normale ( $\psi=0^\circ$ ) .....	98
I.2.2 - En incidence oblique ( $\psi\neq 0^\circ$ ) .....	100
a) Pour $\psi=45^\circ$ .....	101
b) Pour $\psi=60^\circ$ .....	101
I.3 - Bilan.....	103
II - COURBES DE TENDANCE ET DÉTERMINATION DES RENDEMENTS DE PULVÉRISATION .....	105
II.1 - Courbes de tendance .....	105
II.1.1 - Fonction en cosinus .....	107
II.1.2 - Fonction issue d'un modèle gazeux supersonique.....	110
II.2 - Détermination des rendements de pulvérisation.....	114
II.2.1 - Fonction en cosinus .....	114
II.2.2 - Fonction issue d'un modèle gazeux supersonique.....	115
II.2.3 - Analyse des rendements de pulvérisation .....	116
III - ÉTUDE DE L'ENDOMMAGEMENT INDUIT PAR LES IONS LOURDS DANS $UO_2$ .....	123
III.1 - Le dioxyde d'uranium .....	123
III.1.1 - Structure cristallographique et électronique de $UO_2$ .....	123
III.1.2 - Nos pastilles de $UO_2$ .....	124
III.2 - Résultats antérieurs sur l'endommagement dans $UO_2$ .....	125
III.3 - Comparaison entre l'évolution des rayons de traces et des rendements de pulvérisation ...	128
IV - DISTRIBUTION EN MASSE DES PARTICULES PULVÉRISÉES .....	132
IV.1 - Dispositif expérimental.....	132
IV.2 - Les résultats .....	133



<b>CONCLUSION .....</b>	<b>142</b>
<b>ANNEXE 1 - EXPRESSION DES ANGLES <math>\theta</math> ET <math>\varphi</math>.....</b>	<b>144</b>
<b>ANNEXE 2 – MODELE D’ECOULEMENT GAZEUX SUPERSONIQUE .....</b>	<b>148</b>
<b>ANNEXE 3 – OBSERVATION DES TRACES DANS UO<sub>2</sub> PAR MICROSCOPIE A FORCE ATOMIQUE.....</b>	<b>151</b>
<b>ANNEXE 4 – INTERPRETATION DES RESULTATS PAR LE MODELE DE LA POINTE THERMIQUE.....</b>	<b>158</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE .....</b>	<b>169</b>

# *Introduction*

Les ions lourds pénétrant dans un solide laissent dans leur sillage de fortes densités d'ionisation, pouvant provoquer de profondes modifications structurales. Ainsi, dans de nombreux isolants, ces ions sont susceptibles, par l'importance de la perturbation apportée au système électronique local, d'induire tout le long de leur parcours une zone amorphisée. Ces phénomènes ont ouvert un champ important à l'utilisation des ions lourds multichargés pour la modification des matériaux ou de leur surface et aux applications en résultant.

En revanche, sur le plan fondamental, la compréhension des mécanismes microscopiques de relaxation par lesquels les importantes quantités d'énergie déposées sur les électrons conduisent à la formation des défauts de structure, est nettement moins bien connue. Au sein des matériaux, l'étude des processus mis en jeu n'est simple ni sur le plan théorique, compte tenu des grandes quantités d'énergie déposée, ni sur le plan expérimental car les volumes concernés sont très faibles et les temps caractéristiques très courts. Cependant, à la surface des matériaux, les émissions d'électrons d'une part, d'ions et d'atomes neutres d'autre part, apportent respectivement des informations sur les mécanismes de dépôt d'énergie, de transport de celle-ci autour du passage de l'ion et de mise en mouvement des atomes. Nous avons donc entrepris l'étude des émissions de surface.

Au cours de cette thèse, menée au Centre Interdisciplinaire de Recherche Ion Laser (CIRIL) à Caen et en étroite collaboration avec le Laboratoire Pierre Süe (LPS) à Saclay, nous avons étudié l'endommagement et la pulvérisation du dioxyde d'uranium,  $\text{UO}_2$ , induits par les ions lourds multichargés du GANIL. Ce mémoire présente les résultats de ces études.

Avant de rentrer dans le vif du sujet, nous nous arrêterons, dans le premier chapitre sur l'interaction ion lourd-matière. Nous y ferons alors le point sur les connaissances actuelles de cette interaction ainsi que les paramètres importants à prendre en compte lors de notre étude.

Le deuxième chapitre sera consacré à une synthèse bibliographique, tant théorique qu'expérimentale sur la pulvérisation. Cette synthèse nous est apparue nécessaire pour, d'une part clarifier un tant soit peu les idées sur les modèles de pulvérisation proposés et d'autre part présenter les principaux résultats obtenus à basse énergie et à haute énergie. Ainsi, nous distinguerons deux types de pulvérisation : la pulvérisation nucléaire et la pulvérisation électronique. Ce bilan bibliographique servira de point de départ à notre étude et permettra de fixer les objectifs de cette dernière.

La description de la technique d'analyse utilisée lors de ce travail de thèse fera l'objet du troisième chapitre. Nous évoquerons les protocoles expérimentaux mis au point en vue de la réalisation d'expériences de pulvérisation. Au cours de ce chapitre, nous présenterons également le dispositif d'irradiation aux ions lourds.

Enfin, dans le dernier chapitre nous exposerons et analyserons nos résultats expérimentaux sur la pulvérisation par les ions lourds. Nous nous pencherons notamment sur l'évolution des distributions angulaires des atomes d'uranium pulvérisés nous permettant d'extraire les rendements de pulvérisation ainsi que sur la distribution en masse des particules émises de la cible d' $\text{UO}_2$  lors du bombardement aux ions lourds. Parallèlement à ces études, nous nous intéresserons à l'endommagement du dioxyde d'uranium par les ions lourds dans le but de corréler endommagement et émission de particules.

# Chapitre 1

---

## *Généralités sur le passage des ions dans la matière*

De façon générale, un processus d'irradiation peut être compris si l'on s'intéresse aux deux partenaires de l'interaction ion-matière. L'histoire de l'ion projectile ne renseigne en rien sur les défauts créés dans le matériau cible. De même, la façon dont l'énergie est déposée dans la matière est nécessaire pour comprendre sa réponse. Aussi, dans ce chapitre, nous allons présenter l'histoire vue du projectile puis de la cible.

### **I - Introduction**

Lors de l'irradiation d'un matériau par des particules chargées, ces dernières transfèrent progressivement leur énergie au milieu traversé par une succession d'interactions plus ou moins violentes, pouvant conduire à un endommagement de la cible. Une analyse complète de l'irradiation implique alors l'étude de l'ensemble des interactions particule-matière, considérant aussi bien les électrons et le noyau du projectile que ceux de la cible.

Le ralentissement d'un ion dans la matière peut être décrit par deux processus quasi-indépendants :

- **les collisions élastiques liées aux chocs nucléaires** : lorsque l'ion incident transmet de façon élastique de l'énergie cinétique au noyau de l'atome cible. Au cours de cette collision nucléaire, l'interaction est de type coulombien, plus ou moins écrantée. Ces transferts directs d'énergie conduisent à un endommagement pour tous les types de cible (isolants, métaux...).

• **les collisions inélastiques liées à des excitations électroniques** : l'ion incident peut interagir de façon inélastique avec les atomes de la cible (excitation électronique, ionisation des atomes au voisinage de la trajectoire des ions). Les défauts sont alors produits par conversion indirecte de l'énergie déposée dans les cibles. Ce processus d'endommagement est efficace essentiellement dans les isolants et dans certaines cibles métalliques dans le cas de fortes densités d'ionisation.

Bien que ces deux processus de perte d'énergie existent toujours de façon simultanée, leur importance relative dépend de l'ion projectile, de son énergie et pour leur efficacité, de la nature de la cible.

## II - Paramètres pertinents de l'interaction ion-matière

Les deux premiers paramètres pertinents de l'interaction ion-matière permettant de définir une irradiation sont :

- *le flux* ( $\phi$ ) représentant le nombre de particules incidentes envoyées sur la cible, par unité de surface et par unité de temps ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )
- *la fluence* ( $F$ ) correspondant au nombre total de particules reçues par la cible par unité de surface ( $\text{cm}^{-2}$ ) :  $F = \int_0^t \phi dt$ ,  $t$  étant le temps total de l'irradiation exprimé en seconde.

Nous allons, au cours de ce chapitre, décrire trois autres paramètres pertinents de l'interaction ion-matière : le pouvoir d'arrêt, la vitesse et la charge de l'ion.

### II.1 - Le pouvoir d'arrêt

Lors d'une interaction ion-matière, l'ion incident transmet son énergie à la cible tout au long de son passage dans le matériau. La quantité d'énergie perdue par l'ion lors de son ralentissement dans la matière constitue alors un paramètre caractéristique concernant aussi bien les processus d'endommagement de la cible que l'émission de particules de cette dernière induite par irradiation. Ce paramètre est appelé **pouvoir d'arrêt**. Le pouvoir d'arrêt est caractéristique du milieu traversé et de la particule incidente (nature et énergie de l'ion projectile). Noté,  $-\frac{dE}{dx}$ , on peut l'exprimer en  $\text{keV} \cdot \text{nm}^{-1}$  ou en  $\text{MeV} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ .

Selon le processus collisionnel considéré, interactions inélastiques ou élastiques, **un pouvoir d'arrêt électronique** et **un pouvoir d'arrêt nucléaire** sont définis. D'après J. Lindhard et collaborateurs [*Lindhard 1963a, Lindhard 1963b*], la perte d'énergie ou pouvoir d'arrêt par unité de longueur dans la cible est obtenue en sommant les pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique :

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_{\text{total}} = \left. \frac{dE}{dx} \right|_n + \left. \frac{dE}{dx} \right|_e$$

Dans le chapitre 2, nous précisons les contributions nucléaire et électronique conduisant respectivement aux pulvérisations nucléaire et électronique.

Le pouvoir d'arrêt permet d'évaluer le parcours réel de l'ion projectile dans la matière. Au cours de l'interaction, la vitesse de l'ion incident diminue et l'ion se retrouve piégé dans la matière. Il est alors possible de déterminer le parcours R de l'ion le long de sa trajectoire dans la cible, donné par la relation :  $R = \int_0^T \left( \frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE$ , où T représente l'énergie cinétique de la particule à son entrée dans le milieu.

### II.1.1 - Estimation du pouvoir d'arrêt nucléaire

Les interactions entre l'ion incident et les atomes de la cible sont traitées comme des chocs élastiques de deux particules, régis par les lois de la mécanique classique. Pour les transferts d'énergie conduisant à des déplacements d'atomes, l'interaction est purement coulombienne.

La section efficace de collision,  $\sigma$ , représente la probabilité pour que le projectile cède de l'énergie à la particule cible lors du processus collisionnel. L'ion incident (d'énergie cinétique initiale  $E_1$ , de numéro atomique  $Z_1$  et de masse  $M_1$ ) en déplaçant de son site l'atome cible (de numéro atomique  $Z_2$  et de masse  $M_2$ ) lui communique une certaine quantité d'énergie cinétique T. Pour transférer l'énergie T à l'atome de la cible, la section efficace de collision s'écrit dans ce cas [*Lehman 1977*] :

$$\sigma(E_1, T_2) = \frac{(\pi Z_1 Z_2 e^2)^2 M_1}{T^2 E_1 M_2}, \text{ où } e^2 = 1,44 \times 10^{-7} \text{ eV.cm}^{-1}.$$

L'ion incident perd l'énergie  $dE$  le long d'un parcours  $dx$ . Le pouvoir nucléaire s'écrit alors :

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

$N$  représente le nombre d'atomes cibles par unité de volume,  $T_{\min}$  correspond à une énergie minimale introduite afin d'éviter la divergence de l'intégrale et  $T_{\max}$  est l'énergie maximale

fournie lors du choc frontal :  $T_{\max} = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} E_1$ . L'expression du pouvoir d'arrêt

nucléaire devient alors :  $-\left. \frac{dE}{dx} \right|_n = 2\pi N \frac{M_1}{M_2} \frac{Z_1^2 Z_2^2}{E_1} e^4 \ln \frac{T_{\max}}{T_{\min}}$ . Notons que cette formule est une

approximation grossière qui ne tient pas compte de l'écrantage des noyaux par les électrons.

La formule du pouvoir d'arrêt nucléaire proposée par J.P. Biersack [Biersack 1968] est plus réaliste. A partir du potentiel écranté de Thomas-Fermi, J.P. Biersack [Biersack 1968] donne l'expression analytique du pouvoir d'arrêt nucléaire :

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_n = 4\pi \times N \times a^2 \times \left( \frac{M_1}{M_1 + M_2} \right) \times Z_1 Z_2 e^2 \times \frac{\ln \varepsilon}{2\varepsilon \times (1 - \varepsilon^{-1.49})}$$

avec  $\varepsilon = \frac{a}{r_m^0} = \frac{M_2}{M_1 + M_2} \times \frac{E \times a}{Z_1 Z_2 e^2}$  où  $a$  correspond au rayon d'écran,  $a = \frac{a_0}{Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}}$  et

$a_0 = 0,529 \times 10^{-8}$  cm et où  $r_m^0$  est le diamètre de collision,  $r_m^0 = \frac{2Z_1 Z_2 e^2}{M \times V_1^2}$ .

## II.1.2 - Estimation du pouvoir d'arrêt électronique

La description des interactions inélastiques ion-atome cible est beaucoup plus complexe<sup>1</sup> que celle des interactions élastiques. Le pouvoir d'arrêt électronique des ions est calculé avec précision lorsque l'interaction peut être considérée comme une perturbation (faible transfert d'énergie, faible durée d'interaction ou charge peu élevée). Ceci est vérifié pour les ions légers très rapides. Aux vitesses intermédiaires, l'état de charge de l'ion, dépendant du rapport des sections efficaces de capture<sup>2</sup> et d'ionisation, doit être pris en compte ainsi que l'énergie maximale transmissible à un électron. En dessous d'une certaine énergie, l'ion n'est

<sup>1</sup> Les interactions inélastiques ne peuvent pas être décrites par des collisions entre deux corps, car l'ion interagit avec plusieurs électrons liés eux-mêmes aux noyaux de la cible. L'énergie interne noyau cible-électrons est modifiée au cours de l'interaction.

<sup>2</sup> La capture correspond au transfert d'un ou plusieurs électrons de la cible vers le projectile. Après une capture électronique, la cible est ionisée puisqu'elle a perdu un ou plusieurs électrons.

plus totalement épluché et n'est plus capable d'exciter les électrons des couches profondes de la cible. Le pouvoir d'arrêt électronique diminue donc comme le carré de la charge de l'ion et comme le nombre d'électrons actifs de la cible. Ainsi, l'expression du pouvoir d'arrêt électronique est différente selon le domaine de vitesse considéré.

Trois domaines de vitesses sont à distinguer, définis par rapport à la quantité  $Z_1^{2/3} \times V_0$ , où  $V_0$  représente la vitesse orbitale de l'électron 1s de l'atome d'hydrogène, soit la vitesse de Bohr ( $V_0 = \frac{e^2}{\hbar} = 2,2 \times 10^8$  cm/s = 25 keV/uma).

• Le domaine des grandes vitesses :  $V_1 \pi Z_1^{2/3} V_0$

L'ion incident est complètement « épluché » de ses électrons et peut donc être considéré comme un ion de charge ponctuelle égale à  $Z_1 e$ . Il interagit à travers un potentiel coulombien (Rutherford) avec les électrons de la cible.

Le calcul permettant de déterminer la perte d'énergie par interaction inélastique est réalisé par un traitement quantique en perturbation, incluant l'ionisation et l'excitation des électrons de l'atome cible. Le résultat est donné par la **formule de Bethe** [Bethe 1933] :

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

où  $NZ_2$  est la densité électronique de la cible,  $M_e$  la masse de l'électron et  $I$  le potentiel moyen d'ionisation ( $\frac{I}{Z_2} \approx 10$  eV).

Le domaine de validité de la formule de Bethe est restreint par deux conditions essentielles :

- l'ion doit être « nu » dans la matière, sa vitesse  $V_1$  doit donc être supérieure à la vitesse de ses propres électrons :  $V_1 \pi V_0 Z_1^{2/3}$ ,  $V_0$  représentant la vitesse de Bohr.
- la vitesse de l'ion incident doit être supérieure à la vitesse des électrons de la cible,  $V_1 \pi V_0 Z_2^{2/3}$ .

Dans ce domaine de vitesse,  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_e$  est alors proportionnel à  $\frac{\ln E_1}{E_1}$ , ce qui induit une diminution de la perte d'énergie électronique lorsque l'énergie de la particule augmente.

Si la formule du pouvoir d'arrêt électronique de Bethe est universellement utilisée, il ne faut pas oublier que son domaine d'application présente des limites. En effet, cette formule a été développée pour des projectiles de grande vitesse afin de faire un traitement en



perturbation de l'excitation des électrons. Les ions les plus lourds du GANIL sont toujours en dehors de la limite de validité de cette formule. Lorsque la vitesse de l'ion projectile,  $V_1$ , diminue et devient du même ordre que la vitesse de ses propres électrons, l'ion projectile se trouve dans le domaine des vitesses intermédiaires.

• domaine des vitesses intermédiaires :  $V_1 \approx Z_1^{2/3} \times V_0$

Quand la vitesse du projectile diminue, le processus de capture entre en concurrence avec celui d'ionisation. Dans ce domaine, l'ion projectile n'est alors plus totalement épluché : il capture des électrons de la cible et son état de charge diminue. Sa charge électrique moyenne devient inférieure à  $Z_1 e$ , et le pouvoir d'arrêt électronique devient ainsi plus faible que ne le prévoit la formule de Bethe. Le domaine de validité de cette dernière peut alors être étendu en introduisant une charge effective  $Z_1^*$ . Ainsi, aux vitesses intermédiaires, du fait des effets

antagonistes entre la variation de la vitesse et de la charge effective  $\left(\frac{Z_1^*}{V_1}\right)^2$ , le dépôt d'énergie passe par un maximum, appelé **pic de Bragg**, et finit par décroître lorsque l'énergie des ions diminue. Les ions du GANIL sont pour la plupart dans ce domaine de vitesse.

• domaine des basses vitesses :  $V_1 \ll Z_1^{2/3} V_0$ .

A faible vitesse, l'ion possède la plus grande partie de ses électrons. Au cours de la collision entre l'ion et un atome cible, les nuages électroniques des deux partenaires se recouvrent, un réarrangement des niveaux électroniques a lieu au cours de l'interaction, engendrant la formation d'une quasi-molécule possédant ses propres états électroniques. Seuls les électrons faiblement liés de la cible contribuent à la perte d'énergie de l'ion [Lindhard 1961].

Certaines approches ont permis de montrer que le pouvoir d'arrêt électronique est proportionnel à la vitesse de l'ion dans ce domaine de vitesse. J. Lindhard [Lindhard 1963c] et O.B. Firsov [Firsov 1959] ont chacun proposé une expression du pouvoir d'arrêt électronique à faible vitesse. Ces expressions donnent cependant une valeur du pouvoir d'arrêt électronique assez éloigné des résultats expérimentaux.

$$-\left.\frac{dE}{dx}\right|_e = N_A \times 5,15 \times (Z_1 + Z_2) \times 10^{-15} \times \frac{V_1}{V_0} \quad (\text{Firsov, exprimé en eV/cm})$$

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = N_A Z_1^{1/6} \times 8\pi r_B e^2 \times \frac{Z_1 Z_2}{\left( Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3} \right)^{3/2}} \times \frac{V_1}{V_0} \quad (\text{Lindhard})$$

où  $r_B$  correspond au rayon de Bohr,  $r_B=0,53 \text{ \AA}$ .

Comme nous venons de le voir, l'ion passe par divers états de charge : à son entrée, l'ion est « dépouillé » de ses électrons ; en se ralentissant dans la cible, l'ion capture des électrons des atomes cibles pour finalement atteindre sa charge d'équilibre. A basse énergie, le ralentissement de l'ion est essentiellement de nature nucléaire, avec un maximum situé à environ 0,01 MeV/uma. En revanche, à haute énergie, il est essentiellement de nature électronique, avec un maximum localisé aux environs de quelques MeV/uma. Les ions utilisés dans ce travail sont produits par le GANIL, leur énergie se trouve dans une gamme allant de 4 MeV/uma à 11 MeV/uma. Dans ce domaine d'énergie le pouvoir d'arrêt nucléaire est négligeable par rapport au pouvoir d'arrêt électronique.

Les pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire ainsi que les parcours peuvent être estimés à partir de tables ou en utilisant le programme de simulation SRIM2000 [Ziegler 1999]. Ce

code de calcul a permis de déterminer les pertes d'énergie des ions lourds incidents dans le dioxyde d'uranium,  $\text{UO}_2$  (figure 1). Il a en outre été utilisé pour déterminer l'épaisseur des différents absorbants utilisés pour dégrader l'énergie des ions incidents. Dans ce programme, le pouvoir d'arrêt des ions est déduit d'expressions ajustant les pouvoirs d'arrêt expérimentaux des protons, corrigés de la

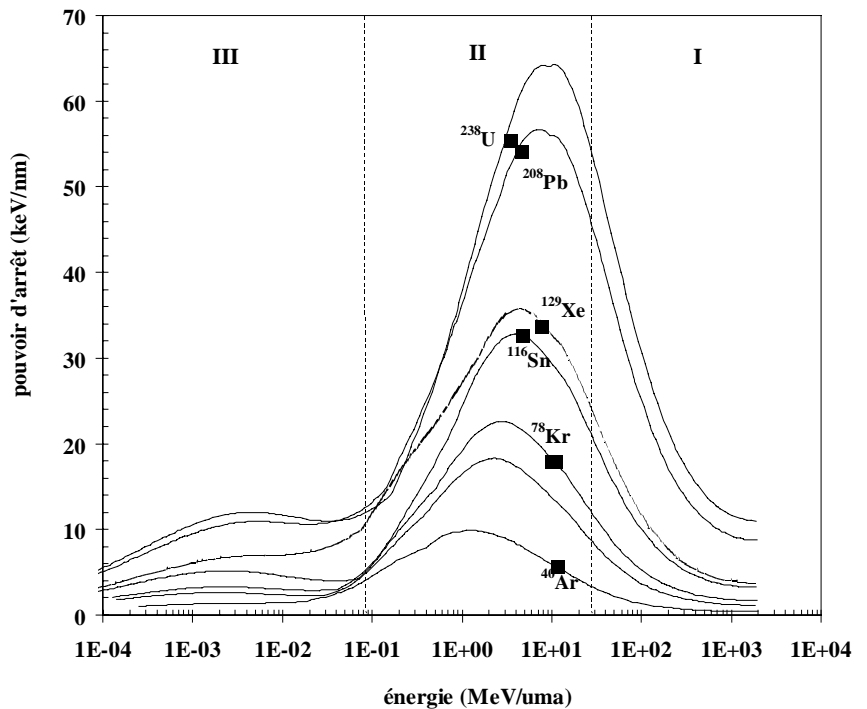


figure 1 : perte d'énergie des différents ions utilisés pour la pulvérisation de  $\text{UO}_2$ . Les différents domaines de perte d'énergie sont également repérés sur la figure par un carré plein. I : domaine des grandes vitesses, II : domaine des vitesses intermédiaires et III : domaine des basses vitesses

vitesse et de la charge effective de l'ion. Les paramètres pris en considération sont l'énergie, la vitesse, la masse de l'ion incident ainsi que les caractéristiques du matériau cible.

Les modifications induites dans les matériaux par les ions lourds sont la plupart du temps étudiées uniquement en fonction du pouvoir d'arrêt électronique. Or, ce paramètre n'est pas nécessairement suffisant pour décrire l'interaction ion-matière, la répartition spatiale de l'énergie ou des ionisations pouvant également jouer un rôle important.

Des calculs de type Monte-Carlo [Schiwietz 1990, Sparrow 1992], dont l'un mis au point au CIRIL [Gervais 1993], permettent de faire des simulations du passage d'un ion dans la

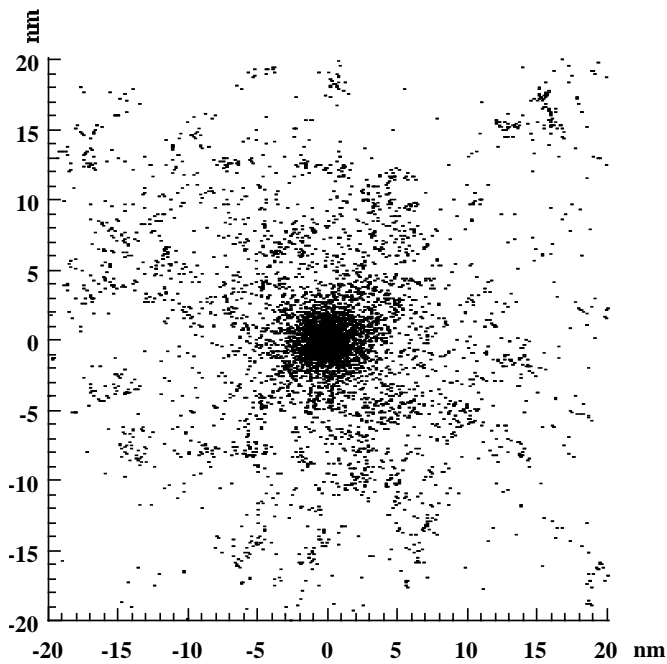


figure 2 : simulation Monte-Carlo pour un ion Xe dans  $UO_2$  ayant une énergie de 7,6 MeV/uma et un pouvoir d'arrêt électronique de 34 keV/nm  
Chaque point correspond à un processus d'ionisation.

matière et ainsi d'avoir accès à une description microscopique du transfert d'énergie. A partir de ces simulations, il est possible d'obtenir la distribution en énergie ou en type d'événements créés autour de la trajectoire (figure 2) et de tester l'influence des différents paramètres de l'irradiation : pouvoir d'arrêt, vitesse et charge de la particule incidente... sur ces distributions radiales [Gervais 1993].

Ces simulations permettent de constater que le pouvoir d'arrêt électronique n'est pas un paramètre suffisant pour définir entièrement l'interaction ion-matière. Il ne représente qu'une valeur moyenne de l'énergie transférée au solide mais ne donne aucune indication sur la façon dont cette énergie est transmise au matériau. L'effet de la vitesse et du numéro atomique du projectile sur l'extension radiale du dépôt d'énergie (ou de dose) autour de la trajectoire montre que ces deux paramètres sont indispensables à la caractérisation du transfert d'énergie.

## II.2 - La vitesse de l'ion

La vitesse du projectile lors d'une irradiation constitue également un paramètre clé dans la compréhension des phénomènes induits lors de l'interaction ion-matière. Grâce aux simulations Monte-Carlo, B. Gervais [Gervais 1993], par exemple, a montré que pour un même pouvoir d'arrêt électronique, donc, pour une même quantité d'énergie déposée, l'extension radiale du dépôt d'énergie autour de la trajectoire de l'ion augmente quand la vitesse augmente. Par conséquent, la quantité d'énergie déposée par unité de volume près de la trajectoire de l'ion est plus grande dans le régime basse vitesse.

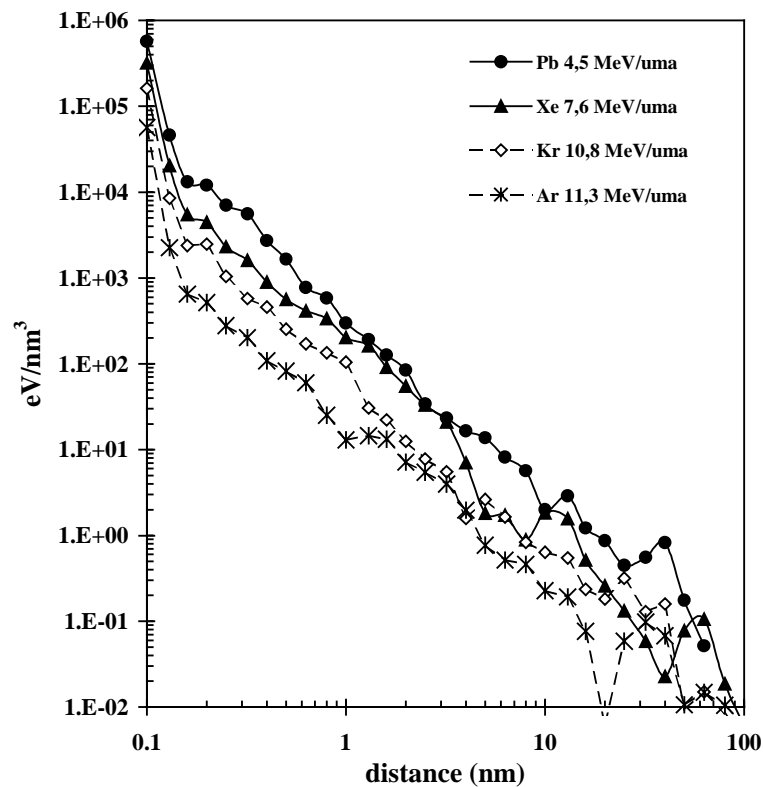


figure 3 : distributions radiales calculées par la méthode Monte-Carlo, pour différents ions projectiles dans  $UO_2$

Ces simulations ont également permis de montrer que la quantité d'énergie déposée dans les isolants suit, au delà du cœur de la trace, une loi en  $R^{-2}$  (figure 3),  $R$  étant la distance radiale [Waligorski 1986].

La distribution spatiale de dose autour du passage d'un ion est un paramètre important pour la création et la taille des traces dans le matériau cible. En effet, il est possible d'obtenir un même pouvoir d'arrêt électronique pour un même ion à deux énergies différentes (de part et d'autre du pic de Bragg) ou encore pour différents ions à différentes énergies (un ion lourd à

haute vitesse et un ion léger à plus basse vitesse). L'influence de cette distribution spatiale de la dose a été observée dans l'oxyde magnétique,  $Y_3Fe_5O_{12}$ , la taille des défauts du régime basse vitesse étant différente de celle du régime haute vitesse. Ainsi, A. Meftah et collaborateurs [Meftah 1993] ont montré que pour un même pouvoir d'arrêt électronique :

- le rayon de trace effectif ( $R_e$ ) déduit des expériences à faible énergie, est supérieur à celui des expériences à haute énergie (figure 4).
- le seuil de création de trace se trouve déplacé vers les faibles pouvoirs d'arrêt lorsque la vitesse du projectile diminue.

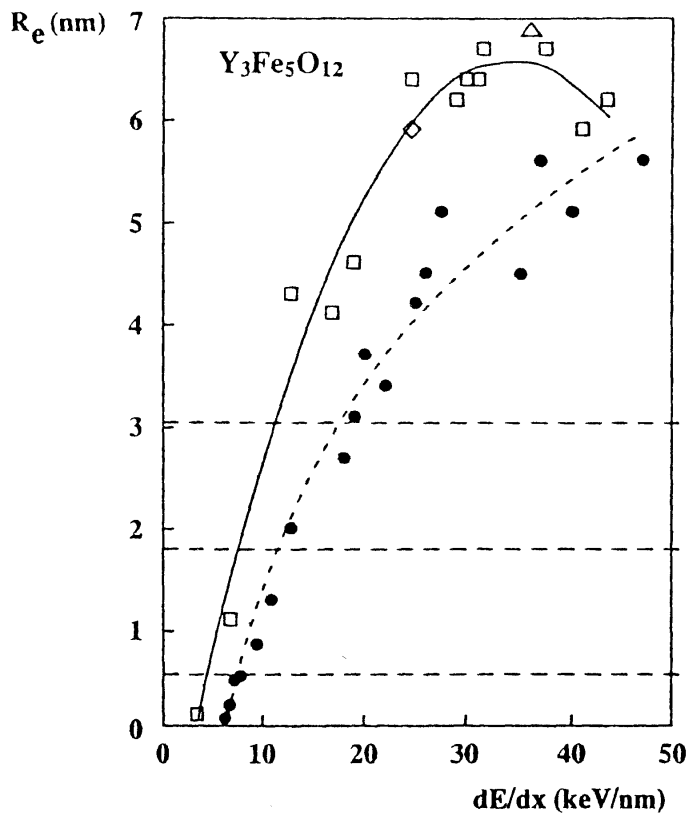


figure 4 : évolution du rayon effectif  $R_e$  des traces induites dans  $Y_3Fe_5O_{12}$  en fonction du pouvoir d'arrêt électronique pour deux régimes de vitesse

Les symboles noirs correspondent à des ions de haute vitesse (entre 10 et 20 MeV/uma), tandis que les symboles blanc correspondent à des ions de basse vitesse (de l'ordre de 5 MeV/uma) [Meftah 1993].

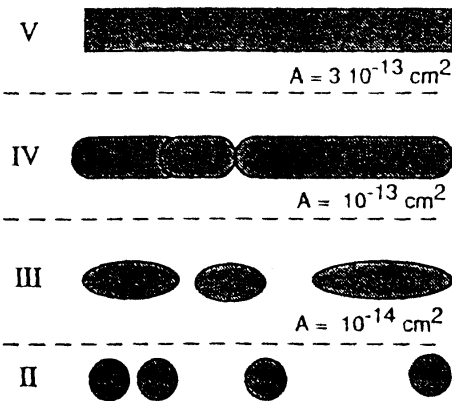


figure 5 : évolution de la morphologie des défauts d'irradiation dans le grenat  $Y_3Fe_5O_{12}$

Cette partie de la figure montre le passage des défauts sphériques vers les défauts cylindriques. Le domaine I où l'endommagement résulte de chocs nucléaires n'est pas représenté sur la figure.

Plus récemment, un tel effet de vitesse a été mis en évidence dans le polyéthylène et dans le mica [Leroy 1996]. Ceci montre que le pouvoir d'arrêt électronique n'est pas suffisant pour décrire les modifications induites dans les matériaux.

## II.3 - La charge de l'ion

Outre la vitesse de l'ion incident, sa charge doit également être considérée. L'effet de la charge a lieu uniquement près de la surface avant que l'ion ait atteint sa charge d'équilibre. L'effet de la charge de l'ion incident sur les modifications induites dans le matériau cible a été précédemment développé dans la thèse de C. Leroy [Leroy 1996]. Cette mise en évidence est basée sur l'observation des endommagements créés par l'impact d'ions plomb de charges différentes ( $\text{Pb}^{23+}$  à 4,6 MeV/uma et  $\text{Pb}^{56+}$  à 29 MeV/uma) dans des feuilles de mica. Pour chacun des faisceaux de plomb, différentes irradiations ont été réalisées à des vitesses et des pouvoirs d'arrêt électronique identiques, le seul paramètre variable étant la charge de l'ion incident. L'évolution des dommages induits dans le mica, mesurés par microscopie à force atomique, en fonction de la charge de l'ion incident (de 23+ à 61+ à 4,6 MeV/uma et de 56+ à 76+ à 29 MeV/uma) présente deux courbes en « escalier » assez surprenantes (figure 6). Le diamètre des traces à l'intérieur du matériau obtenu, après clivage des micas, reste constant quelle que soit la charge de l'ion incident et il est plus grand à faible vitesse (effet du pouvoir d'arrêt). Notons qu'aucune théorie ou modèle ne rend compte d'une telle variation en « escalier » du diamètre des traces en fonction de la charge des ions incidents.

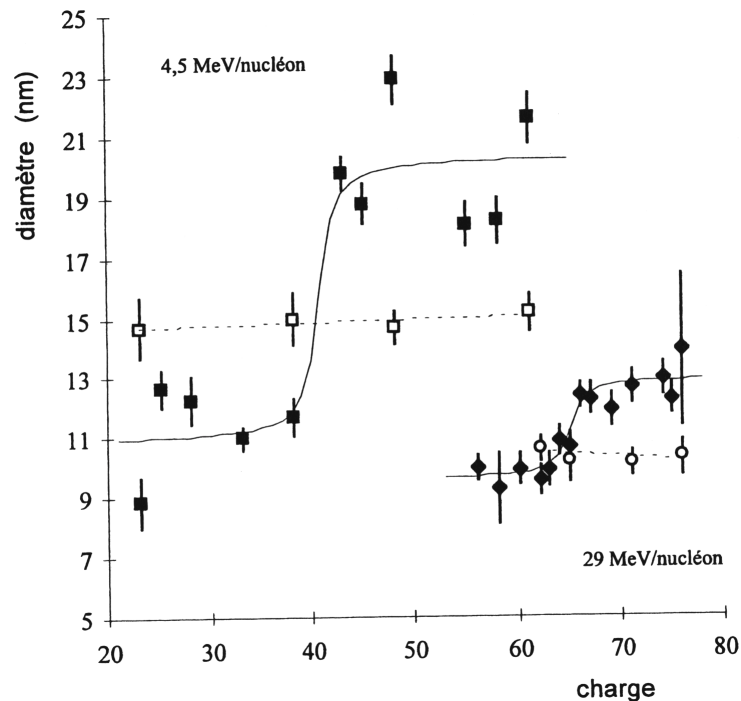


figure 6 : évolution du diamètre des traces mesuré par AFM en fonction de la charge des ions incidents  
Les points noirs représentent l'analyse de l'échantillon non clivé et les points blancs celle de l'échantillon clivé [Leroy 1996].

## III - Effets induits dans le matériau cible et les modèles d'endommagement

Si le dépôt d'énergie et sa répartition spatiale jouent un rôle déterminant dans l'endommagement des matériaux, ce sont les propriétés physico-chimiques de la cible qui gouvernent sa réponse à cette sollicitation. Ainsi, deux types de processus sont considérés être à l'origine de la création de défauts dans les solides : les processus élastiques conduisant à la mise en mouvement d'atomes du solide (atomes de recul) et les processus inélastiques impliquant les niveaux électroniques (ionisation ou excitation).

### III.1 - Création de défauts par collisions élastiques

Les processus élastiques sont simples à décrire : si l'énergie cinétique transférée par un ion incident à un atome cible est suffisamment grande, cet atome peut être éjecté de son site. Si l'énergie communiquée à un atome, est supérieure à l'énergie seuil de déplacement,  $E_s$ , comprise entre 10 et 60 eV suivant les matériaux cibles considérés, cet atome est éjecté suffisamment loin de son site et n'y revient pas immédiatement. De plus, si l'énergie communiquée à cet atome est suffisamment grande, il peut à son tour déplacer d'autres atomes. Le nombre  $nd$  d'atomes déplacés par un noyau primaire (premier atome frappé par l'ion projectile) ayant reçu l'énergie  $T$  suit le modèle de Kinchin & Pease. Trois cas différents se présentent [Kinchin 1955] :

- si  $T < E_s$ ,  $nd=0$ . Le noyau cible n'est pas déplacé.
- si  $E_s < T < 2E_s$ ,  $nd=1$ . Le noyau cible se déplace en position interstitielle laissant ainsi sa place à une lacune. L'ensemble interstitiel-lacune constitue une paire de Frenkel.
- si  $T > 2E_s$ ,  $nd = \frac{E_1}{2E_s}$ . Le noyau cible est déplacé et devient à son tour un projectile appelé primaire<sup>3</sup>. On assiste à une cascade de déplacements.

La section efficace de création de défauts a été calculée par J.P. Biersack et collaborateurs [Biersack 1980] :

$$\sigma_{\text{dpa}} = \int_{E_s}^{T_{\text{max}}} \sigma(E_1, T) nd(T) dT .$$

<sup>3</sup> Dans la littérature le terme PKA, Primary Knock-on Atom, est utilisé.

Il est donc possible de calculer le nombre d'atomes déplacés de leur site qui, compte tenu des recombinaisons thermiques et athermiques, est supérieur au nombre de défauts réellement créés.

## III.2 - Création de défauts par collisions inélastiques

Les défauts induits par collisions élastiques sont créés par des mécanismes directs. Au contraire, les défauts créés par chocs inélastiques, c'est-à-dire avec les électrons de la cible, font intervenir des processus complexes et indirects. La notion de déplacement n'est plus utilisée et l'on se réfère directement à des concentrations en défauts. Les interactions inélastiques jouent un rôle mineur dans les métaux, mais sont très importantes pour les isolants et les composés organiques. La question posée est alors de savoir comment se fait le retour à l'équilibre dans cette région perturbée après le passage d'un ion.

Avec les ions lourds rapides, dont le pouvoir d'arrêt électronique est supérieur au keV/nm, les densités d'énergie déposées près de la trajectoire de l'ion dépassent la dizaine de keV/nm<sup>3</sup>. Ainsi, plusieurs dizaines d'électrons par nm<sup>3</sup> sont éjectés avec des énergies cinétiques de l'ordre de la centaine d'eV. Cette forte densité d'ionisation peut conduire à la création d'une zone fortement endommagée, la « **trace latente** ».

### III.2.1 - Morphologie et structure de la trace latente

L'étude expérimentale des traces et des modifications induites dans la matière par irradiation avec des ions lourds, a fait l'objet de nombreux travaux. En 1959, Silk & Barnes [Silk 1959] ont observé pour la première fois, par microscopie électronique à transmission (MET), des défauts, induits par des fragments de fission d'uranium, dans du mica. En 1962, Price & Walker [Price 1962] ont constaté qu'il était possible de révéler ces traces par attaque chimique. Cette méthode a été appliquée à de nombreux matériaux pour lesquels l'influence du pouvoir d'arrêt électronique sur la formation des traces a pu être mise en évidence. Notons de façon très générale, que la grande majorité des isolants est sensible au dépôt d'énergie dans leur système électronique, ce qui se traduit plus précisément par la création de zones endommagées, localisées au voisinage immédiat de la trajectoire des ions. Les principales caractéristiques de ce type d'endommagement sont les suivantes :



- la création de trace n'a lieu que si le taux linéaire de dépôt d'énergie électronique est suffisant. Il faut donc introduire la notion de **pouvoir d'arrêt seuil de création de traces**. Ce pouvoir d'arrêt varie d'un isolant à un autre.
- lorsque le pouvoir d'arrêt électronique augmente au delà du seuil, la structure des traces évolue progressivement depuis une structure discontinue correspondant à un alignement de sphérules le long de la trajectoire des ions, jusqu'à une structure continue dans laquelle l'endommagement est uniforme à l'intérieur d'un cylindre dont le diamètre dépend fortement de la vitesse du projectile.

Ces effets sont résumés dans la figure 5 relative aux résultats obtenus dans un oxyde isolant de grenat d'yttrium,  $Y_3Fe_5O_{12}$  [Mefteh 1993]. A partir de la fraction amorphe paramagnétique, mesurée par spectroscopie Mossbauer, le rayon de trace effectif  $R_e$  a pu être déterminé. La morphologie des traces a été caractérisée par microscopie électronique à transmission et haute résolution. Dans ce matériau, l'endommagement consiste en la création d'une zone amorphe entourée d'une région sous contrainte : c'est une structure en couronne. Cette structure en couronne a été observée dans plusieurs matériaux tels que les oxydes magnétiques [Studer 1992] et le mica [Chailley 1996]. Les traces latentes apparaissent donc comme des objets limités en taille et de structure considérablement différente de celle du matériau non endommagé.

Le passage d'ions lourds dans les matériaux cristallins s'accompagne le plus souvent d'une amorphisation du matériau irradié. Ceci a été observé dans les alliages métalliques [Barbu 1991], dans les supraconducteurs [Hébert 1998], dans des oxydes magnétiques [Constantini 1992]... Cependant, dans certains cas tels que l'irradiation de poudre broyée d'oxyde d'yttrium,  $Y_2O_3$ , ce n'est pas une amorphisation qui est observée mais un changement de phase cristalline [Hémon 1998].

### III.2.2 - Les modèles de création de défauts

Plusieurs modèles ont été avancés pour décrire les mécanismes de formation des traces. Ces modèles traitent des mécanismes par lesquels l'énergie emmagasinée dans le système électronique est transformée en mouvement atomique.

Les processus d'excitation électronique et d'ionisation induisent une très forte densité de charge dans une région localisée autour de la trajectoire des ions. La nature de

l'endommagement en résultant est directement reliée à la durée de vie des états excités : c'est elle qui détermine l'efficacité de la conversion de l'énergie en mouvements atomiques. Le problème peut alors être considéré soit du point de vue des électrons éjectés, soit du point de vue des atomes ionisés de la cible. Ces deux points de vue correspondent aux deux modèles « génériques » suivants : l'explosion coulombienne et la pointe thermique, traitant des mécanismes d'endommagement.

#### **a) Le modèle de l'explosion coulombienne.**

Ce modèle souvent évoqué pour les isolants, a été proposé en 1965 par R.L. Fleischer et collaborateurs [*Fleischer 1965*] pour rendre compte de la sensibilité d'un matériau à la révélation chimique des traces.

Dans ce modèle, l'éjection d'un grand nombre d'électrons lors du passage d'un ion de grande énergie crée une zone chargée positivement le long de son trajet. Si dans cette zone, les répulsions coulombiennes entre les ions positifs sont supérieures aux constantes élastiques du matériau, les ions peuvent être déplacés.

L'endommagement du matériau, dans ce modèle, va dépendre de deux grandeurs : la durée d'écrantage des charges, devant être supérieure à la fréquence de vibration du réseau, et la rigidité élastique du matériau (le module d'Young). Donc, ce modèle prévoit que la création de traces sera beaucoup plus facile dans les isolants que dans les métaux où les électrons libres écrantent très rapidement la charge des ions positifs.

#### **b) Le modèle de la pointe thermique**

Les mécanismes de création de défauts peuvent être décrits dans certains cas par un modèle dit de « pointe thermique ». Seitz & Koehler [*Seitz 1956*] ont développé ce modèle qui avait été mis au point une trentaine d'année auparavant par F. Desauer [*Desauer 1923*]. Ce modèle est basé sur l'idée suivante : lors du ralentissement électronique, l'énergie déposée par l'ion incident sur les électrons de la cible est convertie en chaleur par interaction électron-phonon. Le transfert d'énergie vers les atomes du réseau se faisant très proche de la trajectoire de l'ion, l'échauffement est très local. Les forts dépôts d'énergie peuvent ainsi provoquer la fusion d'une région cylindrique le long du parcours de l'ion. Cette fusion est suivie d'un phénomène de trempe ultra-rapide pouvant geler le matériau dans une structure amorphe. Reste ensuite à établir une corrélation entre pointe thermique et défaut. L'évolution de la trace est donc décrite à l'aide de la thermodynamique à l'équilibre permettant de définir

les températures du gaz d'électrons libres, du réseau et leur mise en équilibre par interaction électron-phonon. L'hypothèse majeure réside dans la possibilité de définir une température.

En définissant le rayon de trace comme le rayon fondu du modèle de pointe thermique, il est possible de comparer les prédictions de ce modèle aux résultats expérimentaux. Jusqu'à présent, seul le modèle de la pointe thermique a été développé de façon qualitative et quantitative dans les semi-conducteurs [Toulemonde 1992], les métaux [Wang 1994] et les isolants [Toulemonde 1996].

Notons que les modèles de l'explosion coulombienne et de la pointe thermique ne sont pas les deux seuls modèles avancés. On peut également citer le modèle excitonique développé par M.N. Kabler [Kabler 1967] et G. Brunet [Brunet 1985]. D'autres modèles se sont inspirés du modèle d'explosion coulombienne, soit en utilisant des potentiels interatomiques modifiés [Watson 1985], soit en se basant sur un modèle d'onde de choc [Lesueur 1993].

### **c) Le modèle d'onde de choc**

Dans les isolants, l'énergie potentielle électrostatique résultant de l'ionisation des atomes n'est pas écrantée ; l'énergie de recul due à la répulsion coulombienne peut atteindre quelques 10 eV induisant des déplacements atomiques par processus individuels. Il en va tout autrement dans les cibles métalliques dans lesquelles il y a un écrantage important des charges positives par les électrons de conduction. Les impulsions radiales reçues par les atomes cibles situés au voisinage des trajectoires des ions varient de quelques 0,1 eV à 1 eV, de sorte que des modifications structurales ne peuvent être induites que si les atomes concernés sont repoussés de façon cohérente dans des processus collectifs. Ainsi Lesueur & Dunlop [Lesueur 1993] se sont inspirés du modèle d'onde de choc pour tenter d'expliquer la sensibilité des métaux aux fortes densités d'excitations électroniques.

Le champ électrique local, associé à la forte densité d'ionisation, induit une force radiale sur les atomes ionisés et donne lieu à une onde de choc qui, par cisaillement, peut induire une transformation de phase. D'après ce modèle, le rayon de la trace latente est une fonction quadratique du pouvoir d'arrêt électronique.

Maintenant que toutes les bases viennent d'être posées concernant l'histoire de la particule incidente et celle du matériau cible, nous allons, au cours du deuxième chapitre, nous concentrer sur le devenir des particules éjectées du matériau cible.

# Chapitre 2

---

## *Etat des recherches sur la pulvérisation*

Dans le chapitre précédent, nous nous sommes intéressés à la mise en mouvement des atomes de la cible dans le sillage d'une particule incidente et aux modifications induites dans le matériau cible. Au cours de ce chapitre, nous allons nous intéresser à l'éjection d'atomes ou d'ions du matériau cible induite par l'interaction ion-matière. Ce phénomène est appelé pulvérisation.

Nous avons vu que l'ion interagit avec la matière selon deux processus : les collisions élastiques liées aux chocs nucléaires et les collisions inélastiques liées à des excitations électroniques. Ces deux processus donnent lieu à deux types de pulvérisation : la **pulvérisation nucléaire** (ou pulvérisation par collisions) dans le domaine des collisions élastiques et la **pulvérisation électronique** dans le domaine des collisions inélastiques.

Avant de décrire ces deux types de pulvérisation, nous rappellerons dans une première partie la définition du rendement de pulvérisation et les techniques permettant de quantifier cette grandeur ainsi que le type des espèces pulvérisées. Au cours de la deuxième et troisième partie, nous aborderons respectivement la pulvérisation nucléaire et la pulvérisation électronique. Dans les deux cas, nous présenterons les aspects théoriques et les principaux résultats de la littérature en rapport avec le travail de cette thèse. Enfin, dans la quatrième partie, nous expliquerons les objectifs de notre travail.

## I - Généralités

La surface des matériaux s'érode lorsqu'elle est soumise à un bombardement de particules. Cette pulvérisation provient de l'éjection de particules induite par des collisions entre les particules incidentes et les atomes appartenant aux couches proches de la surface.

Ce phénomène a été observé pour la première fois au milieu du dix-neuvième siècle [*Grove 1853*] ; ces auteurs ont observé, lors de décharges électriques dans un gaz, un dépôt métallique sur les parois du tube à décharge. Et 50 ans plus tard, E. Goldstein [*Goldstein 1902*] mit en évidence l'origine de ce dépôt : il provient de la pulvérisation cathodique induite par l'impact d'ions positifs sur la cathode. Cependant, ce n'est que durant ces quarante dernières années que la communauté scientifique s'est intéressée à la compréhension du phénomène ; les théories de la pulvérisation doivent beaucoup aux travaux de P. Sigmund [*Sigmund 1969*]. Actuellement, la pulvérisation est devenue un moyen standard pour nettoyer une surface, déterminer sa composition ou encore réaliser des couches minces.

Quel que soit le but des études utilisant les processus de pulvérisation, la grandeur généralement utilisée est le rendement de pulvérisation, communément représenté par la lettre **Y** (yield en anglais). **Le rendement de pulvérisation donne le nombre moyen d'atomes (ou de molécules) éjectés par particule incidente.**

$$Y = \frac{\text{nombre moyen d'atomes éjectés}}{\text{nombre de particules incidentes}}$$

Dans le cas d'un matériau quelconque, tous les types de particules incidentes (des ions, des électrons, des neutrons...) peuvent éroder sa surface. Cependant, l'efficacité d'érosion dépend fortement du couple projectile-cible. Les mécanismes de cette érosion sont très proches de ceux précédemment décrits pour la création de défauts. Les collisions élastiques peuvent par transfert direct d'énergie cinétique aux atomes de la cible, quelle que soit la nature de cette dernière, éjecter un atome situé au voisinage de la surface. Les excitations électroniques ne vont être efficaces que dans des conditions particulières (possibilité de convertir cette énergie en mouvement atomique ou par des processus collectifs pour les fortes densités d'ionisation). S'il existe un mécanisme de conversion des excitations électroniques en énergie cinétique, la création de paires électron-trou peut conduire à l'éjection vers le vide d'atomes proches de la

surface. Les principales caractéristiques de la perte d'énergie de l'ion incident et de la conversion de cette énergie sont présentées dans la figure 1.

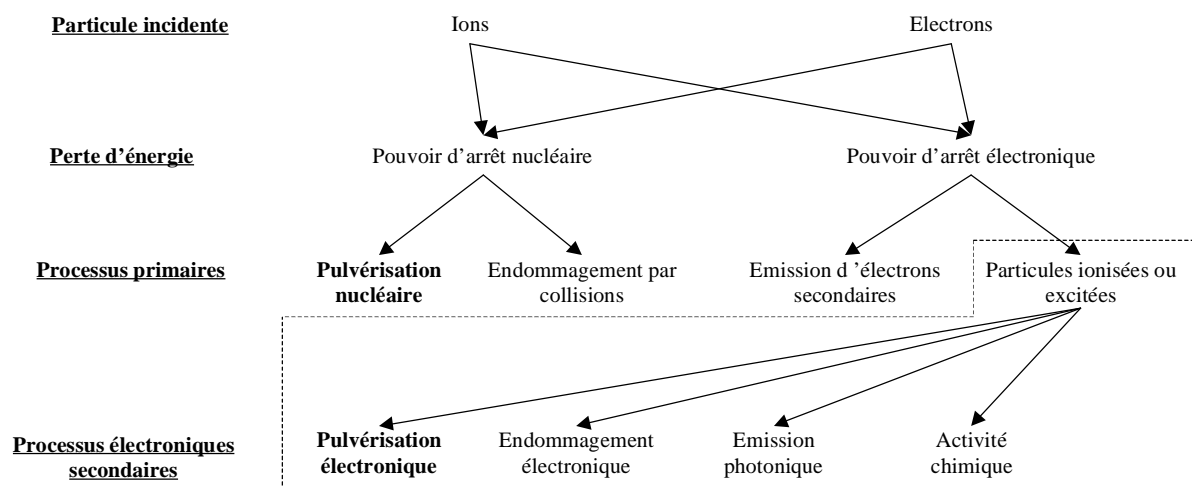


figure 1 : diagramme des différents processus associés à la perte d'énergie des particules incidentes

Si les processus d'interaction sont nombreux, les particules éjectées de la surface sont également très diverses : des atomes ionisés, des atomes neutres, des atomes excités, des molécules et des agrégats (figure 2). Les particules incidentes sont en partie rétrodiffusées, des électrons peuvent être également émis à partir de la surface ou à partir de particules pulvérisées excitées (figure 2).

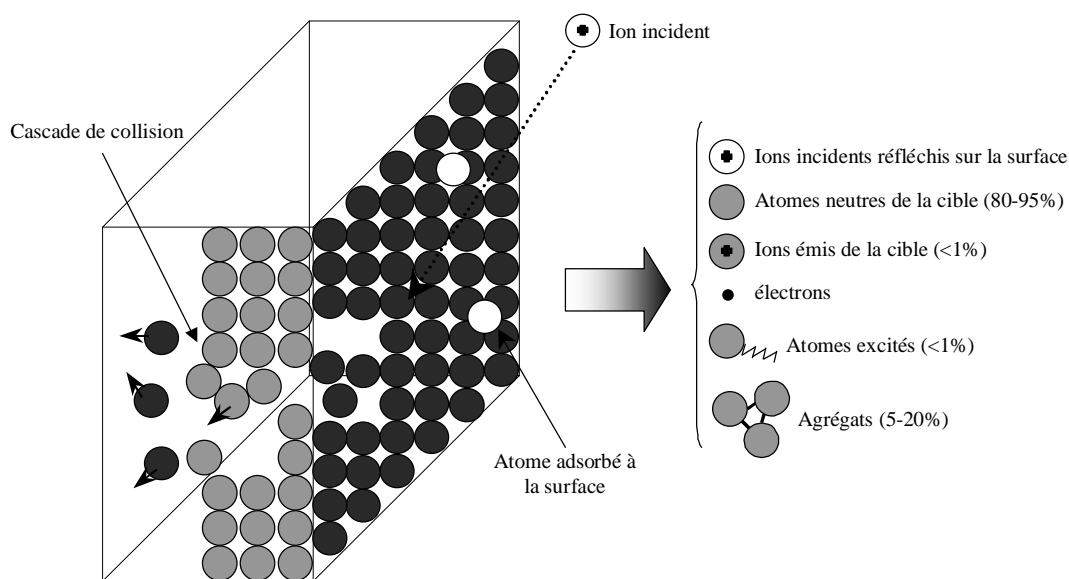


figure 2 : représentation des différentes particules émises lors du bombardement d'une surface par des ions  
Les pourcentages donnent les contributions des différentes particules pulvérisées dans le cas d'une surface métallique propre.

Néanmoins, les atomes neutres de basse énergie représentent la fraction majoritaire de particules pulvérisées [Wittmaack 1977]. Dans le cas d'une irradiation par des ions lourds d'une cible d'oxyde d'euporium,  $\text{Eu}_2\text{O}_3$ , K. Wien et collaborateurs [Wien 1991] ont observé que moins d'1% des atomes d'Eu pulvérisés sont ionisés.

Une classe particulière de particules pulvérisées est souvent étudiée : les atomes adsorbés à la surface de la cible. On parle alors d'étude de désorption. En effet, le terme « pulvérisation » est utilisé généralement pour les espèces éjectées de la cible (processus souvent appelé « ablation » dans le cas d'irradiation par lasers pulsés).

Plusieurs techniques sont utilisées pour déterminer expérimentalement les rendements de pulvérisation, allant de la perte de masse de l'échantillon (rendement total) à la mesure de l'émission d'une espèce particulière (rendement partiel).

Le premier type de technique consiste à mesurer les rendements de pulvérisation à partir des modifications de la cible avant et après irradiation. Afin de déterminer la quantité de matériau éjecté, plusieurs mesures sont possibles :

- des variations de masse de la cible avant et après irradiation. Dans la majorité des cas, une balance à quartz est utilisée.
- des variations d'épaisseur de la cible. L'analyse par rétrodiffusion Rutherford (RBS) permet de mesurer cette variation dans le cas de cibles minces.

Le deuxième type de technique porte sur une mesure directe de la composition du flux de particules pulvérisées par spectrométrie de masse soit d'ions secondaires (SIMS), soit d'atomes neutres secondaires (SNMS).

La troisième technique de mesure des rendements de pulvérisation utilise **la méthode dite du « collecteur »**. Un matériau est placé en vis-à-vis de la cible ; les particules pulvérisées de la cible vont « se coller » sur la surface de ce matériau appelé « collecteur ». La détection des particules se trouvant sur le collecteur est faite en utilisant différentes méthodes : RBS, ERDA, SIMS, spectroscopie d'électrons Auger, microscopie électronique à transmission [Birtcher 2000] et également la détection des traces de fission (détaillée dans le chapitre 3).

Nous allons décrire dans la suite de ce chapitre les différents modèles qui ont été suggérés pour décrire le processus de pulvérisation. Les domaines de validité de ces différents modèles dépendent évidemment des mécanismes élémentaires de collisions entre les particules incidentes et les atomes de la cible. Aussi allons nous décrire séparément le domaine dans lequel la perte d'énergie par collisions élastiques conduit à la **pulvérisation nucléaire** et celui

dans lequel les excitations électroniques peuvent mener, dans certains matériaux, à la **pulvérisation électronique**.

## II - Pulvérisation nucléaire

Les modèles de pulvérisation nucléaire (ou par collisions) ont été essentiellement développés pour le cas d'ions incidents d'énergie de l'ordre du keV. Dans ce régime « basse vitesse », la vitesse du projectile  $V_1$  est inférieure à la vitesse de Bohr  $V_0$  et l'ion incident dépose son énergie sur les atomes de la cible par des collisions élastiques. Les atomes cibles, mis en mouvement par le projectile<sup>1</sup>, subissent des collisions qui peuvent mettre en mouvement une seconde génération d'atomes. L'ensemble des atomes excités constitue une « cascade de collisions ». La taille, la morphologie et même la description de ces cascades vont dépendre de l'énergie initiale du PKA et de la densité d'énergie déposée au sein de la cascade.

### II.1 - Les mécanismes

Pour éjecter un atome du voisinage d'une surface vers le vide, une énergie cinétique suffisante, perpendiculaire à cette surface, doit lui être communiquée afin qu'il puisse vaincre le potentiel de surface. Compte tenu des transferts d'énergie lors d'une collision élastique, l'atome frappé est rarement éjecté directement lors de la collision (sauf en incidence rasante). Plus généralement, cet atome subit une ou plusieurs collisions avant d'être éjecté. Le développement de la cascade lors de ces collisions multiples est responsable de l'éjection d'un nombre plus ou moins grand d'atomes. Deux paramètres vont jouer un rôle prépondérant : d'une part la profondeur de la cascade et d'autre part la densité de la cascade. Lorsque les cascades de collisions sont indépendantes les unes des autres, c'est le **régime de pulvérisation linéaire**. En revanche, lorsque la densité de cascades devient importante, ces dernières interagissent entre elles, il s'agit du **régime de pulvérisation non-linéaire**. Aussi, traditionnellement distingue-t-on trois régimes conduisant à la pulvérisation, présentés sur la figure 3 [Sigmund 1981a] : le régime de **collision simple**, le régime de **cascade linéaire** et le régime de **pointe**. Le régime de collision simple et de cascade linéaire appartiennent au

---

<sup>1</sup> Ces atomes sont appelés PKA, Primary Knock-on Atom ou atomes primaires.



domaine linéaire de la pulvérisation et le régime de pointe relève du domaine non-linéaire de la pulvérisation nucléaire.

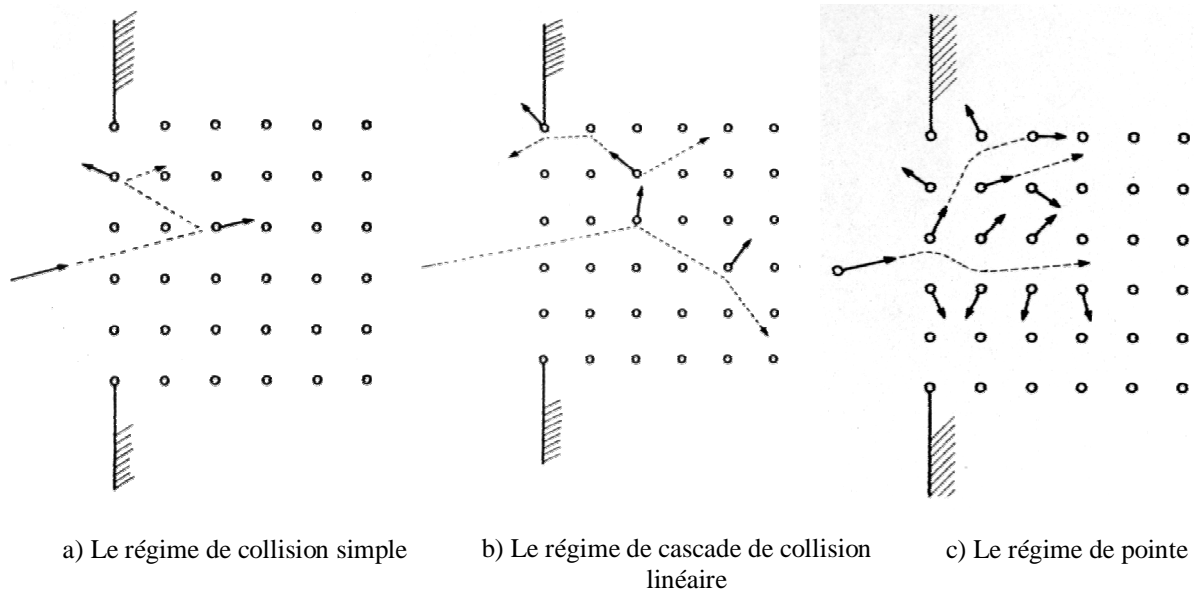


figure 3 : les trois régimes de pulvérisation nucléaire [Sigmund 1981a]

### II.1.1 - Le régime de collision simple

Dans le régime de collision simple, les atomes de la cible sont éjectés après un nombre réduit de collisions. Ce régime, caractérisé par le faible nombre d'atomes pulvérisés, a lieu pour des basses énergies et/ou pour des ions légers, comme par exemple pour des ions incidents H, He de quelques keV pour lesquels l'énergie moyenne transmise au PKA est trop faible pour que se développe une cascade de collision. Dans ce régime, la pulvérisation est alors induite par de très courtes séquences de collisions pouvant mener à l'éjection (figure 4). Bien que les rendements de pulvérisation soient faibles ( $Y < 0,1$ ), il existe de nombreuses données concernant la pulvérisation dans ce régime. En effet, la pulvérisation est un phénomène très étudié dans la fusion thermonucléaire contrôlée car de fortes fluences d'ions légers peuvent endommager les parois contenant les dispositifs de fusion.

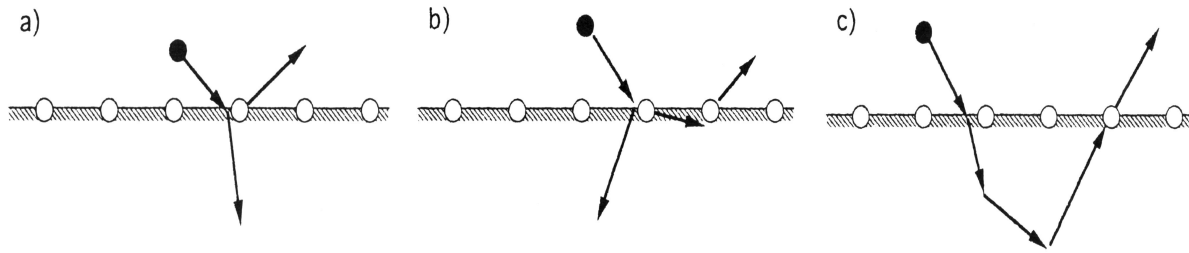


figure 4 : les mécanismes d'éjection dans le régime de collision simple  
 a) un atome de recul primaire produit lors de la première collision est directement éjecté  
 b) un atome de recul secondaire est éjecté  
 c) le projectile subit de multiples collisions avant d'éjecter un atome de la surface

Ce régime par collision simple peut être facilement simulé par des programmes Monte-Carlo tels que TRIM [Biersack 1984] et le code ACAT de Y. Yamamura et collaborateurs [Yamamura 1978]. Les résultats de simulation pour la pulvérisation dans le régime de collision simple mais également dans le régime de cascade linéaire sont en accord avec les résultats expérimentaux et sont présentés dans la partie II.2 du Chapitre 2.

En ce qui concerne le régime de pulvérisation par cascade linéaire et le régime de pointe, les atomes de reculs primaires sont assez énergétiques pour générer des reculs secondaires voire d'ordre plus élevé, parmi lesquels certains peuvent approcher la surface de la cible et passer la barrière de surface.

### II.1.2 - Le régime de cascade linéaire.

Dans le régime de cascade linéaire, les collisions entre la particule incidente et les atomes de la cible produisent des atomes de recul énergétiques qui peuvent à leur tour produire une autre génération d'atomes de recul. La densité des atomes en mouvement à l'intérieur du volume de la cascade est supposée être assez petite pour que des collisions entre les atomes en mouvement soient rares. Dans ces conditions, la phase de collision peut être décrite dans le cadre de la théorie de transport.

La théorie de cascade de collision linéaire est bien établie et décrite avec précision par P. Sigmund [Sigmund 1969, Sigmund 1981a]. D'après cet auteur, les mécanismes de pulvérisation peuvent se décomposer en trois processus :

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

Cette théorie est basée sur une approche de l'intégrale de Boltzmann en supposant un « chaos moléculaire » et des déplacements statistiques des particules et des vitesses après chaque collision, vérifiant la fonction de distribution statistique. L'hypothèse de base de cette théorie est la linéarité de la cascade. Cela signifie que la cascade est si étendue qu'un atome de la cible, déjà en mouvement, a une probabilité nulle de rentrer en collision avec un autre atome de la cible en mouvement.

La théorie de cascade linéaire prédit une distribution angulaire du flux,  $\phi$ , d'atomes pulvérisés du type :

$$\frac{d\phi}{d\Omega} \propto \cos^n \theta \text{ avec } 1 \leq n \leq 2,$$

$\theta$  représente l'angle polaire entre les particules émises et la normale à la surface.

En prenant  $n=1$ , le rendement différentiel de pulvérisation, contenant les distributions en angle et en énergie, donne la **distribution de Sigmund-Thompson** pour le flux  $\phi$  d'atomes pulvérisés :

$$\frac{d^3\phi}{dE d^2\Omega} \propto \frac{E}{(E + U_s)^{3-2m}} \times \cos \theta \quad (1)$$

$U_s$  représente l'énergie de liaison de surface qui par convention est équivalente à la chaleur de sublimation et  $m$  est un paramètre dépendant de l'énergie utilisée dans la description d'un potentiel d'écrantage coulombien. La forme de la distribution en énergie du flux d'atomes pulvérisés (équation 1) est indépendante de l'énergie, de l'incidence de l'ion projectile ainsi que de la direction d'émission des atomes pulvérisés et présente un maximum :  $E_{\max} = \frac{U_s}{2(1-m)}$ . De plus, le rendement de pulvérisation déduit à partir de

l'expression du flux, est proportionnel au pouvoir d'arrêt nucléaire,  $(dE/dx)_n$ .

La théorie de cascade de collision linéaire a été développée pour des cibles amorphes par résolution des équations de transport de Boltzmann, en utilisant les sections efficaces appropriées pour les collisions élastiques (nucléaires). Les données expérimentales sur les rendements totaux, les distributions en énergie et en angle pour des cibles polycristallines sont assez bien reproduites par cette théorie, bien qu'elle ne soit strictement valable que pour des cibles amorphes. Le bon accord avec l'expérience indique que le réseau cristallin ne joue pas un rôle important pour la plupart des quantités étudiées.

Le domaine d'énergie du régime de cascade linéaire s'étend du keV jusqu'à quelques centaines de keV, sauf pour les ions lourds pour lesquels la densité spatiale d'atomes en mouvement devient trop élevée. En effet, lorsque la cascade de collision devient trop dense, l'hypothèse de linéarité n'est plus respectée ; on se trouve dans le domaine des effets non-linéaires qui sont causés par les cascades de forte densité.

### II.1.3 - Le régime de pointe

Lorsque l'ion incident transmet de fortes densités d'énergie aux atomes du réseau, presque toutes les particules à l'intérieur d'un petit volume de la cascade de collision, appelé pointe, sont mises en mouvement. Dans le régime de pointe, la densité d'atomes en mouvement est suffisamment grande pour que tous les atomes dans le « volume de pointe » soient en mouvement, conduisant à des collisions entre eux, ce qui induit des effets non-linéaires.

Les mesures expérimentales des rendements de pulvérisation montrent des effets non-linéaires pour des particules incidentes d'énergie d'environ 100 keV, voire plus élevée pour les ions lourds. Ces effets non-linéaires ont été expliqués par le concept de la pointe thermique. Nous exposerons ce concept au cours du paragraphe concernant les modèles de pulvérisation électronique. En effet, les modèles utilisés pour interpréter la pulvérisation nucléaire dans le régime non-linéaire ont été transposés à la pulvérisation électronique. Nous allons maintenant nous intéresser aux principaux résultats expérimentaux obtenus dans le domaine de la pulvérisation nucléaire.

## II.2 - Résultats expérimentaux

Dans ce paragraphe, nous allons aborder uniquement les résultats expérimentaux concernant les distributions angulaires des particules pulvérisées.

La pulvérisation nucléaire des isolants a été beaucoup moins étudiée que la pulvérisation électronique. En fait, les résultats expérimentaux sur les distributions angulaires dans le domaine de la pulvérisation nucléaire sont en grande majorité obtenus pour des cibles métalliques.

En règle générale, la forme de la distribution angulaire peut être approximée par une loi de type  $(\cos\theta)^n$ . Le coefficient  $n$ , inférieur à 1 dans le cas d'ions de basse énergie (inférieur au

keV, c'est-à-dire dans le régime de collision simple), augmente avec l'énergie des ions pour atteindre une valeur comprise entre 1 et 2 [Andersen 1985, Matsuda 1986]. Cette tendance est confirmée par les simulations de J.P. Biersack et W. Eckstein [Biersack 1984], permettant une analyse de l'influence du type d'ion et de l'énergie sur les distributions angulaires des particules pulvérisées (figure 5). Ces simulations ont été réalisées dans le cas de cibles de nickel irradiées en incidence normale<sup>2</sup> par des ions Ne<sup>+</sup> à différentes énergies et par différents ions projectiles pour une énergie donnée (1 keV).

---

<sup>2</sup> Les ions projectiles arrivent perpendiculairement à la surface de la cible de nickel.

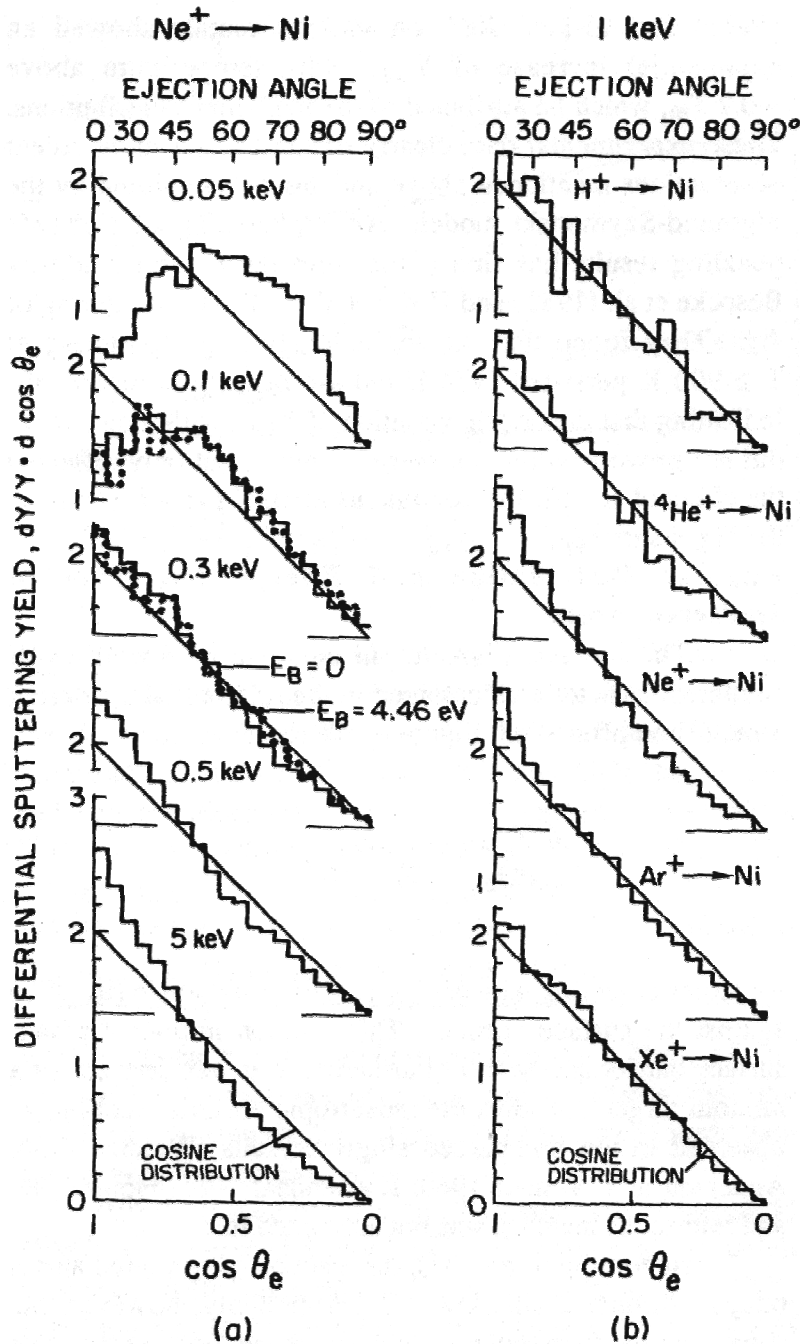


figure 5 : rendements de pulvérisation de Ni en fonction de l'angle d'émission des particules, calculés avec TRIM, dans le cas d'une incidence normale :  
 (a) pour des ions Ne<sup>+</sup> à différentes énergies  
 (b) pour différents ions à 1 keV

Une distribution en cosinus est représentée par une ligne noire [Biersack 1984].

Pour les ions Ne<sup>+</sup> d'énergie supérieure à 500 eV, la distribution angulaire de la figure 5(a) est de la forme  $(\cos\theta)^n$  avec  $1 < n < 2$ , en accord avec le développement de petites cascades de collision. En dessous de 500 eV, la distribution angulaire suit une loi en cosinus sauf à très basse énergie où les collisions multiples deviennent très peu probables : l'émission vers l'arrière des atomes nécessite plusieurs transferts importants d'énergie. Ceci explique la chute

des rendements dans la direction perpendiculaire à la surface. De plus, notons que les distributions angulaires semblent indépendantes du type d'ions incidents figure 5(b).

D'après la théorie de cascade linéaire, les distributions angulaires pour des cibles amorphes (polycristallines) varient comme  $(\cos\theta)^n$ , avec  $n$  proche de 1. Cela reste toujours vrai dans le régime de pointe, lorsque les ions projectiles arrivent perpendiculairement à la surface de la cible [Sigmund 1981a]. Cette prédiction est confirmée par de nombreuses mesures expérimentales de distributions angulaires réalisées pour des cibles amorphes et polycristallines [Andersen 1985, Carter 1983]. Les études de pulvérisation ont également concerné l'influence de la contamination [Szymonski 1986] et de la topographie [Zhenxia 1997] de la surface de la cible sur les distributions angulaires des particules émises. Dans ce cas, les distributions présentent généralement une dépendance en cosinus à une puissance supérieure à 1.

P. Sigmund et collaborateurs [Sigmund 1982] ont également montré que les distributions angulaires peuvent être différentes pour les atomes pulvérisés de la première et de la seconde couche. En effet, l'angle d'éjection étant corrélé à la profondeur d'origine des atomes pulvérisés, la distribution angulaire des atomes éjectés de la première monocouche est large, tandis que la distribution des atomes pulvérisés provenant de la seconde monocouche est plus « piquée », c'est-à-dire que les atomes sont éjectés préférentiellement suivant la normale à la surface.

En résumé deux éléments sont à retenir concernant la pulvérisation nucléaire :

- quel que soit le régime considéré : régime de collision simple, régime de cascade linéaire ou régime de pointe, tous les modèles prédisent une variation des distributions angulaires des particules pulvérisées en  $(\cos\theta)^n$ , avec  $1 < n < 2$ . Expérimentalement, les particules pulvérisées présentent des distributions angulaires en accord avec ces prédictions,  $n$  augmentant d'une part en fonction de l'énergie des ions projectiles et d'autre part en fonction du rapport masse de la cible sur masse du projectile [Andersen 1985].
- dans le régime de cascade linéaire, le rendement de pulvérisation,  $Y$ , varie linéairement en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire.

## III - Pulvérisation électronique

### III.1 - Définition

Au delà de la vitesse de Bohr,  $V_0=2\times 10^8$  cm.s<sup>-1</sup>, équivalente à une énergie de 25 keV/uma, la perte d'énergie d'un ion lourd provient principalement de l'excitation électronique de la cible. Nous avons vu au cours du chapitre 1 que les excitations électroniques intenses peuvent conduire à la mise en mouvement des atomes et à la création de défauts. Près de la surface, cette mise en mouvement des atomes pourra se traduire par une émission de particules vers le vide. Ce phénomène d'érosion de la surface d'un solide, en réponse à une excitation électronique, est appelé **pulvérisation électronique**. Une échelle de temps caractéristiques des événements induits lors du passage d'un ion lourd dans un solide est présentée figure 6.

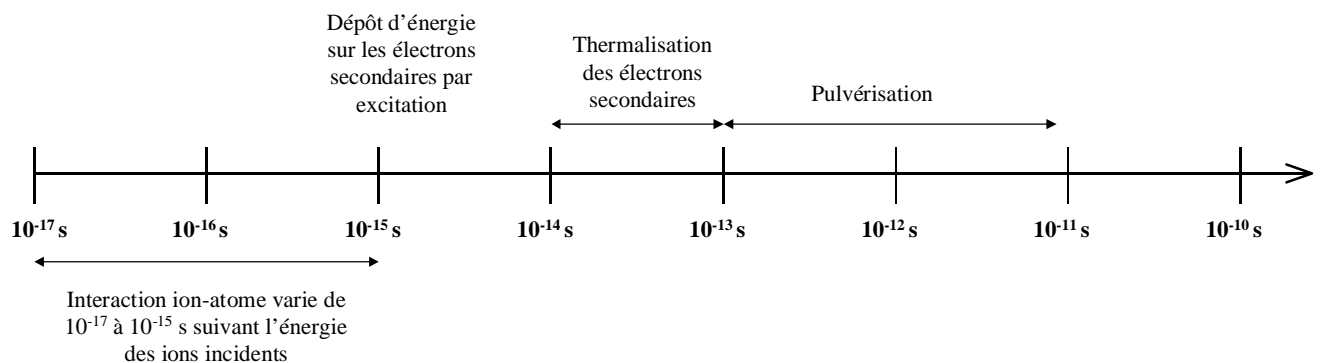


figure 6 : temps caractéristiques de l'interaction ion lourd-matière  
Si les ions incidents déposent leur énergie sur une distance caractéristique de trace de 10 nm, l'interaction varie de  $10^{-17}$  s à  $10^{-15}$  s. La pulvérisation des particules du matériau cible a lieu après  $10^{-13}$  s.

La pulvérisation électronique nécessite donc l'existence d'un mécanisme permettant de convertir l'excitation du système électronique en mouvement d'atomes. Aussi dépend-elle beaucoup du matériau considéré, contrairement à la pulvérisation par collision qui est similaire dans les isolants et les métaux. Dans les cristaux ioniques ou les gaz rares solides dans lesquels les mécanismes excitoniques sont efficaces pour créer des défauts, la pulvérisation électronique est observée à faible pouvoir d'arrêt. Pour une forte densité d'excitation électronique, la différence entre les matériaux s'estompe et on observe une pulvérisation électronique dans les isolants comme dans les semi-conducteurs [Itoh 1987] et les métaux [Johnson 1993a, Brown 1993].



## III.2 - Les modèles

Les modèles développés afin d'expliquer la pulvérisation induite par les ions lourds rapides ont de nombreux points communs avec ceux décrivant la création de défauts par ces ions. Ainsi, on retrouve deux grandes classes de modèles : les uns font référence à une approche thermique du problème, les autres considèrent une hypothèse de choc.

De nombreuses variantes ont été proposées, la première fut celle de P.K. Haff [*Haff 1976*]. Cet auteur a montré que les ions rapides induisaient une pulvérisation électronique dans les matériaux dans lesquels ils créent des traces. En effet, P.K. Haff suggère que les ions de recul de la cible, suite à une explosion coulombienne, entrent en collision avec les atomes voisins et génèrent ainsi une cascade de collision de basse énergie pouvant induire la pulvérisation. Une autre variante est celle de L.E. Seiberling et collaborateurs [*Seiberling 1980*], proposant un modèle d'explosion coulombienne « thermalisée » afin d'expliquer la pulvérisation du tétrafluorure d'uranium, UF<sub>4</sub>. En fait, dans ce modèle, la répulsion coulombienne engendre une pointe thermique.

Nous allons tenter, au cours des prochains paragraphes, de synthétiser au mieux les principaux modèles théoriques de pulvérisation électronique existant à ce jour.

### III.2.1 - Les modèles de pulvérisation par pointe thermique

Les modèles de pointe thermique ont été largement utilisés pour décrire le transport de l'énergie et la formation de traces dans les solides. Ceux-ci ont été également employés pour décrire la pulvérisation des solides induite soit par collision (transfert direct de quantité de mouvement), soit par libération d'énergie non-radiative après excitation électronique du solide [*Johnson 1993b*].

Lors de l'impact d'un ion projectile, l'énergie est déposée localement sur les électrons de la cible. La thermalisation de ces électrons se fait en grande partie, du moins dans les isolants, par interaction électron-phonon. Si ce couplage est suffisamment efficace, les atomes proches de la trajectoire de l'ion sont portés à une température élevée, on parle de « **pointe thermique** » pour la zone où a lieu le dépôt d'énergie. L'évolution de la température au cœur de la trace va dépendre de la quantité d'énergie déposée, de son extension spatiale, de la diffusion des électrons et bien sûr des propriétés thermiques du matériau cible. Suite à l'élévation brutale de température au niveau de la surface, le matériau peut émettre des

particules par les deux mécanismes suivants (figure 7). Le premier est une pulvérisation par **évaporation thermique** : les atomes sont émis **un à un** suite à une évaporation dans le cœur de la trace. Le second mécanisme est la pulvérisation par **flux gazeux** : la zone de la cible où l'énergie est déposée se vaporise instantanément et toutes les particules sont émises **en une seule fois**. Nous verrons que, quel que soit le mécanisme considéré, les particules émises présentent des distributions angulaires pouvant être approximées par une loi en cosinus. Nous allons dans un premier temps décrire le mécanisme de pulvérisation par évaporation puis la pulvérisation par flux gazeux.

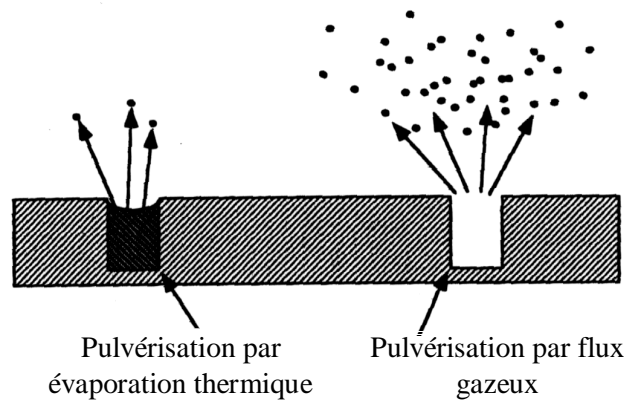


figure 7 : schéma des mécanismes de pulvérisation par pointe thermique [Reimann 1993]

### a) La pulvérisation par évaporation thermique

Dans l'approche de la pulvérisation par évaporation, l'évolution de la température,  $T(r,t)$ , de la région de symétrie cylindrique excitée par l'ion projectile est calculée grâce à l'équation de conduction de la chaleur. Cette équation s'écrit :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \kappa(T) \frac{\partial T}{\partial r} \right) = C(T) \frac{\partial T}{\partial t} \quad (2)$$

Dans cette équation  $\kappa(T)$  représente la conductivité thermique et  $C(T)$  la chaleur spécifique de la cible. Ces deux quantités sont des fonctions de la température qui dépend elle-même de la distance à l'axe de la trace et du temps.

Dans le cas d'une géométrie de trace cylindrique, la solution de l'équation de la chaleur est souvent assimilée à une gaussienne de la forme :  $T(r,t) = \frac{T_0}{1 + \frac{4\delta t}{r_0^2}} \times e^{-\frac{r^2}{r_0^2 + 4\delta t}}$ . Dans cette

solution,  $r$  représente la distance à l'axe de la trace,  $t$  correspond à la durée écoulée après le passage de l'ion incident et  $\delta = \frac{\kappa}{C}$  est la diffusivité thermique, supposée être indépendante de

la température. Les caractéristiques du transfert d'énergie sont définies grâce à la température initiale  $T_0$  au cœur de la trace, de largeur initiale  $r_0$ .

Le profil de température ainsi obtenu et son évolution temporelle permettent le calcul du rendement de pulvérisation. Pour cela, il est supposé que le profil de température à la surface de la cible,  $T_{\text{surf}}(r,t)$ , est le même que celui au cœur du matériau,  $T(r,t)$ . Ce profil de température à la surface est utilisé pour calculer la probabilité qu'un atome ait une énergie plus grande que l'énergie de liaison de surface,  $U$ . De cette façon, le flux de particules pulvérisées,  $\phi$ , dépend uniquement de la température locale.

Le nombre de particules émises par unité de surface et par unité de temps s'échappant de la surface de la cible à un temps  $t$  après l'impact de l'ion incident détermine le flux de particules. Ce flux de particules,  $\phi$ , activé thermiquement, s'évaporant de la surface et dépendant de la température locale, est intégré sur la surface  $A$  de la cible et sur le temps  $t$  afin de déterminer le nombre total d'atomes et de particules éjectées :

$$Y = \int_0^{\infty} dt \int dA \phi(T, U).$$

Un choix typique pour l'expression de  $\phi$  est de prendre le flux d'un gaz idéal s'évaporant avec une densité constante à travers une barrière de surface de géométrie plane,  $U$ . Cette expression est calculée à partir de la loi de Maxwell-Boltzmann.

$$\phi = \frac{n_M k_B T}{\sqrt{2\pi M k_B T}} \times e^{-\frac{U}{k_B T}}$$

$n_M$  correspond au nombre de molécules,  $M$  à la masse moléculaire et  $k_B$  à la constante de Boltzmann.

Le flux est souvent calculé en utilisant un critère de vaporisation pour de fortes densités d'excitation, d'autres expressions sont utilisées [Johnson 1993b], comme par exemple la

forme plus simple d'Arrhenius :  $\phi \propto e^{-\frac{U}{k_B T}}$ .

D'après les considérations précédentes, trois hypothèses essentielles sont à respecter dans le modèle de pulvérisation activée thermiquement :

- l'équilibre thermique local
- la conduction de la chaleur
- le flux d'éjection déterminé uniquement par la température  $T(r,t)$ .

Nous allons maintenant nous intéresser aux différentes « prédictions » de la pulvérisation par évaporation thermique. En général, ces « prédictions » présentent une **dépendance quadratique du rendement de pulvérisation en fonction du dépôt d'énergie lorsque ce dernier est élevé.**

R. Evatt [Evatt 1980] et R.E. Johnson [Johnson 1987a] ont discuté de l'évolution du rendement,  $Y$ , en fonction du pouvoir d'arrêt électronique. Lorsque l'extension radiale du dépôt d'énergie, de géométrie cylindrique, est supposée étroite ( $r_0$  et  $\frac{U}{k_B T_0}$  petits), alors

$Y \propto \left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^2$ . Pour des extensions radiales du dépôt d'énergie plus importantes, cette loi est

vérifiée seulement pour les forts pouvoirs d'arrêt électronique ; pour les faibles pouvoirs

d'arrêt,  $Y$  varie linéairement en fonction de  $\left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)$ .

Dans le cas de la désorption de molécules, R.R. Lucchese [Lucchese 1987] trouve une variation linéaire du rendement de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique

pour les forts pouvoirs d'arrêt :  $Y \propto \left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^1$ . Ce modèle repose sur la combinaison de deux

hypothèses, en effet :

- seules les molécules de la première monocouche à la surface sont désorbées
- la désorption est activée de façon exponentielle.

En fait, à chaque impact du faisceau d'ions incident, il existe une limite relativement abrupte entre la zone où presque toutes les molécules à la surface sont désorbées et celle où aucune molécule n'est désorbée, créant ainsi, un « îlot » de molécules désorbées. Le problème de ce modèle est qu'aucune raison n'est donnée pour expliquer que seule la première monocouche émet thermiquement des ions et/ou des atomes neutres.

Jusqu'à présent nous avons considéré d'une part des traces de forme cylindrique, correspondant à la forme des traces associées à un dépôt d'énergie par des ions dans le domaine du MeV, et d'autre part les deux grandeurs  $\kappa$  et  $C$  comme étant indépendantes de la température. Cependant, d'autres solutions de l'équation de conduction de la chaleur (équation (2)) existent. Les hypothèses faites sont différentes : **la géométrie des traces est sphérique et/ou les quantités  $\kappa$  (la conductivité thermique) et  $C$  (la chaleur spécifique)**

**dépendent de la température.** Ces hypothèses ont été proposées par Evatt & Johnson [Evatt 1980], Sigmund & Claussen [Sigmund 1981b] et Urbassek & Sigmund [Urbassek 1984]. L'intérêt majeur de ces modèles est de donner une expression analytique du rendement de pulvérisation,  $Y$ . Une synthèse de ces expressions est présentée dans l'article de E.M. Bringa [Bringa 1999]. Les solutions « analytiques » du modèle d'évaporation thermique proposées par Evatt & Johnson, Sigmund & Claussen et Urbassek & Sigmund sont identiques et permettent d'interpréter les résultats de pulvérisation dans le cas de cibles métalliques et isolantes. Il faut cependant noter que le rendement de pulvérisation dans ces modèles dépend très fortement du choix des valeurs des propriétés thermodynamiques du matériau cible.

Comme l'a remarqué P. Sigmund [Sigmund 1974], les gradients de densité d'énergie déposée par un ion incident peuvent être si élevés que le concept d'équilibre thermodynamique n'est plus valable. Un système est dit à l'équilibre thermodynamique lorsqu'il se trouve à la fois en équilibre mécanique, chimique et thermique. Dans ces conditions, il n'y a aucune tendance ni pour le système, ni pour le milieu extérieur, à changer d'état. En réponse à la remarque faite par P. Sigmund, R.E. Johnson et collaborateurs [Johnson 1991] ont donné un formalisme de pointe dans lequel l'équilibre thermodynamique n'est plus respecté. En ce cas, dans l'équation de diffusion (équation (2)), la température est remplacée par une densité d'énergie. Ces auteurs ont utilisé le modèle d'évaporation thermique en géométrie cylindrique afin d'interpréter leurs résultats de pulvérisation induite par des ions rapides dans des cibles de gaz condensés. Dans ces conditions, l'évolution des rendements en fonction de la densité d'excitation déposée est **linéaire pour de faibles densités d'excitation** et **devient quadratique pour de fortes densités d'excitation**.

Pour le modèle de pulvérisation par évaporation thermique, la forte densité d'énergie déposée dans une zone cylindrique peut mener à l'évaporation ou la sublimation des couches en surface. Cette zone est ensuite refroidie par la conduction de la chaleur et par l'évaporation. Nous allons maintenant nous intéresser au modèle de flux gazeux pouvant être considéré comme une extension du modèle de pulvérisation par évaporation thermique dans le cas de fortes densités d'énergie déposée.

## b) La pulvérisation par flux gazeux

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

Dans le cas du modèle de flux gazeux, la densité d'énergie déposée sur un volume du matériau cible est si grande que le volume ou des parties de ce dernier, ayant une densité d'énergie élevée, peuvent être amenés au-dessus du **point critique** de la transition de phase. La forte pression agissant sur le milieu gazeux entraîne alors l'éjection dans le vide du volume de matériau cible.

Quand un point critique existe, cela signifie qu'une transition entre deux états quelconques

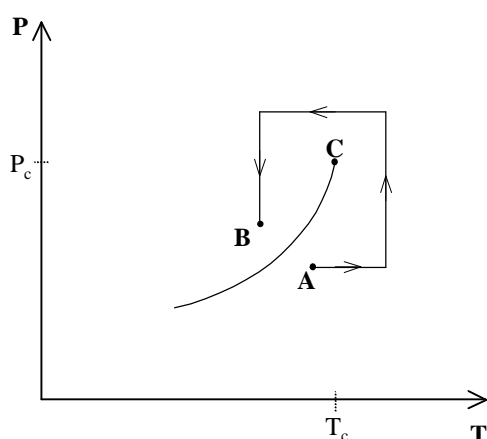


figure 8 : courbe de transition de phases  
En présence du point critique, C, le passage de A à B se fait sans changement de phase.

de la matière peut être effectuée sans qu'il n'y ait jamais séparation en deux phases (figure 8). La courbe d'équilibre des phases dans le plan (P,T) peut s'arrêter à un certain point C, appelé **point critique**.

Le point critique est repéré par ses trois coordonnées ( $P_c$ ,  $V_c$ ,  $T_c$ ). A des températures  $T > T_c$  et des pressions  $P > P_c$ , il n'y a pas de différence entre les phases : la matière est toujours homogène et on peut dire qu'au point critique les deux phases deviennent

identiques. Pour ce faire, le point représentatif du système doit décrire une courbe passant autour du point critique sans jamais couper la courbe de séparation de phase. Donc, lorsqu'un point critique existe, le concept de phases différentes est assez arbitraire et il n'est pas toujours possible de dire quel état est dans une phase et quel état est dans l'autre.

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

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

- 1) J. Sunner et collaborateurs [Sunner 1988] ont utilisé un modèle thermodynamique simple.
- 2) Urbassek & Waldeer [Urbassek 1991] ont eu recours à des simulations de dynamique moléculaire.

Bien qu'une approche thermodynamique ne décrive pas en détail la pulvérisation, les approches en dynamique classique et en thermodynamique présentent les mêmes conclusions, à savoir qu'une grande partie de la cible est vaporisée et éjectée sous forme de gaz, avec présence d'un grand nombre d'agrégats lors de la détente gazeuse.

- 3) D.E. David et collaborateurs [David 1986], Urbassek & Michl [Urbassek 1987] et R. Kelly [Kelly 1990] ont utilisé des descriptions analytiques de l'expansion adiabatique.

D.E. David et collaborateurs [David 1986] suggèrent que n'importe quelle région de la cible obéissant à la condition  $T > T_c$  subit une expansion adiabatique stable à une dimension. Le gaz se propage alors à travers la surface du matériau cible comme un « jet » s'échappant librement dans le vide [Grundy 1969], puis se refroidit très rapidement.

Urbassek & Michl [Urbassek 1987] interprètent la pulvérisation nucléaire de gaz rares condensés dans le régime non-linéaire, pour un domaine d'énergie de l'ordre du keV, en utilisant le modèle de « flux gazeux ». Ces auteurs décrivent le processus comme un « collision-free molecular flow » (cmf), c'est-à-dire un flux dans lequel les particules gazeuses se déplacent sans collisions. Cette modélisation fournit une description du flux par la cinétique des gaz, à trois dimensions, en tenant compte de la dissipation de l'énergie et de la recondensation sur les parois de la trace de géométrie cylindrique. Dans ce cas, à un temps  $t=0$ , le gaz monoatomique de température  $T_0$  et de densité de particules  $N_0$  est confiné dans le cylindre dont les parois sont réfléchissantes. Pour  $t>0$ , le volume considéré est alors libre de se propager dans le vide, mais est limité par la condensation sur les parois de la trace d'une part, et par le transfert d'énergie autour de la trace d'autre part. Bien sûr, la dynamique « cmf » utilisée ne permet pas de présenter les caractéristiques des phénomènes de dissipation tel que la conduction de la chaleur. Urbassek & Michl [Urbassek 1987] simulent donc la dissipation de l'énergie en introduisant une force non-conservative qui agit sur le flux de particules. La condensation est modélisée en considérant que le flux gazeux est complètement refroidit, une fois la température  $T$  inférieure à la température de condensation du matériau,  $T_{con}$ . En résumé, dans ce modèle, le matériau à l'intérieur de la pointe de température, de forme cylindrique, est un gaz dense dont la température est supérieure à la température

critique, comme dans l'interprétation de Sigmund & Clausen [Sigmund 1981b]. De plus, si  $T > T_{\text{con}}$ , ce gaz est libre de se répandre vers l'extérieur **sans présence de barrière de surface**. La propagation du flux gazeux s'arrête lorsque la température devient inférieure à la température de condensation  $T_{\text{con}}$ . Arbitrairement,  $T_{\text{con}}$  correspond à la température de fusion du matériau cible à pression normale. Donc, l'expression pour le flux est la même que celle utilisée par Sigmund & Clausen [Sigmund 1981b], sans la partie exponentielle impliquant l'énergie de liaison, puisque dans le modèle de flux gazeux, comme nous l'avons expliqué auparavant, la notion de barrière de surface n'existe pas. L'expression analytique du rendement de pulvérisation,  $Y$ , est déduite en supposant d'une part un profil de température gaussien, dont la largeur est le rayon de la zone cylindrique, et d'autre part que tout le matériau pulvérisé provient de l'intérieur de cette zone cylindrique. Cette expression s'écrit :

$$Y = \frac{\pi N r_0^4}{8} \frac{\xi^2}{\kappa} \sqrt{\frac{8k_B T_0}{\pi M}} \left\{ \sqrt{\frac{T_0}{T_{\text{con}}}} - 1 \right\}$$

$N$  représente la densité de particules,  $r_0$  la largeur initiale du profil gaussien de la température,  $\xi$  est égal au rapport  $\frac{\text{rayon cylindrique du flux}}{r_0}$  (supposé constant pour simplifier),  $\kappa$  est la diffusivité thermique,  $k_B$  la constante de Boltzmann,  $M$  la masse de la particule cible et  $T_{\text{con}}$  la température de condensation. La température initiale est donnée par

le pouvoir d'arrêt  $\frac{dE}{dx}$  et la chaleur spécifique  $C$  par  $T_0 = \frac{\frac{dE}{dx}}{\pi C r_0^2}$ .

Si la température initiale  $T_0$  est inférieure à  $T_{\text{con}}$ , il n'y a pas de pulvérisation. **Il existe donc un pouvoir d'arrêt électronique seuil pour la pulvérisation par flux gazeux.**

Dans le cas d'ions lourds incidents d'énergie de l'ordre du keV, le rendement de pulvérisation varie en  $\left(\frac{dE}{dx}\right)^3$  lorsque  $T_0 < T_c$  [Urbassek 1987].

La distribution angulaire est supposée être une distribution en cosinus car le flux de particules pulvérisées est supposé être sans collision, mais l'inclusion de collisions à l'intérieur du flux de particules émises favoriserait alors une distribution plus « piquée » suivant la normale à la surface de la cible.



R. Kelly [Kelly 1990] utilise une analyse de dynamique de gaz basée sur une expansion adiabatique instable à une dimension en vue d'interpréter les résultats de l'irradiation de gaz condensés avec des ions incidents d'énergie de l'ordre du keV. Cet auteur prend l'image d'un « bouchon » de matériau chaud pour modéliser la situation. La taille et la température du bouchon sont déterminées par les paramètres du matériau et de l'ion incident. Si la température du bouchon dépasse la température critique, le matériau cible transformé en « gaz chaud » est pulvérisé. Bien que le modèle soit unidimensionnel, les mesures des distributions angulaires des particules pulvérisées permettent d'apporter une information supplémentaire. En effet, plus la vitesse du flux de gaz est élevée, plus la distribution angulaire des particules pulvérisées est étroite.

En fait, la description réelle du processus de flux gazeux se situe entre la description proposée par Urbassek & Michl [Urbassek 1987] et celle proposée par R. Kelly [Kelly 1990]. Ces deux approches présentent une description basée sur une expansion adiabatique instable. Dans le cas d'Urbassek & Michl, ces derniers utilisent une approximation du modèle de flux gazeux dans une approche à trois dimensions, et, dans le cas de R. Kelly, l'auteur utilise une approche à une dimension. Actuellement, aucun modèle analytique rigoureux n'est donc disponible, il n'existe que des modèles « approchés ». Le modèle de flux gazeux semble également applicable pour la pulvérisation électronique dans le domaine d'énergie du MeV.

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

Ces deux modèles mettent également en évidence :

- l'existence d'un seuil de pulvérisation qui est lié dans le cas :
  - du modèle individuel, à la barrière de surface U
  - du modèle collectif, à la température de condensation  $T_{con}$
- une dépendance du rendement de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt :

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

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

- une dépendance angulaire du rendement de pulvérisation en  $(\cos\theta)^1$ , que ce soit avec le modèle individuel ou collectif<sup>3</sup>.

Notons de plus, dans le cas du modèle de pulvérisation par flux gazeux, que les températures présentes dans le volume cylindrique de la trace, même si elles sont inférieures à  $T_{con}$ , peuvent également conduire à une évaporation considérable. Le modèle de flux gazeux peut donc être considéré comme une extension des modèles d'évaporation thermique à haute température où le flux gazeux devient dominant. Il est clair qu'il existe des cas intermédiaires où les deux mécanismes d'évaporation et de flux gazeux coexistent.

Après le passage d'ions lourds incidents à travers une région du matériau cible, cette région est laissée dans un état excité et l'excès d'énergie peut entraîner une pulvérisation par évaporation ou par flux gazeux, comme nous venons de l'examiner. L'émission de particules peut également avoir lieu en réponse au fort gradient de densité d'énergie sous forme de choc, comme nous allons maintenant le découvrir.

### III.2.2 - Les modèles de pulvérisation par choc

D'après M.J. Guinan [*Guinan 1974*], l'énergie se dissipe plus probablement par un mécanisme hydrodynamique<sup>4</sup> que par un mécanisme thermique. Contrairement aux modèles de pulvérisation par pointe thermique (évaporation ou flux gazeux), les modèles de pulvérisation par choc correspondent à une réponse du continuum du matériau cible excité. Ainsi, la pulvérisation par choc se caractérise soit par son caractère indirect, soit par le mouvement collectif induit à distance. Les modèles de pulvérisation par choc ne traitent donc pas uniquement l'émission de particules comme un processus diffusif mais également comme un processus collectif.

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

<sup>3</sup> Dans le cas du modèle collectif, H.M. Urbassek [*Urbassek 1987*] et R. Kelly [*Kelly 1990*] prédisent une évolution en  $(\cos\theta)^n$ , avec  $n>1$ .

<sup>4</sup> Les modèles de pulvérisation par flux gazeux ou par choc reposent sur une approche hydrodynamique.

### a) La pulvérisation par onde de choc

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

Y. Hayashiuchi et collaborateurs [Hayashiuchi 1977] considèrent la répulsion coulombienne des atomes ionisés comme une source d'ondes de choc. En effet, dans le cas du bombardement d'une cible isolante par des ions lourds rapides, le fort taux d'ionisation dans le sillage de l'ion lourd projectile dans la cible conduit à un transfert d'énergie cinétique via une explosion coulombienne collective, assimilable à une onde de choc<sup>5</sup>. La brusque dissipation de l'énergie déposée par l'ion projectile au cœur de la trace serait à l'origine de cette onde de choc. Ainsi, la création de traces et la pulvérisation peuvent résulter de la création et de la propagation de cette onde (figure 9).

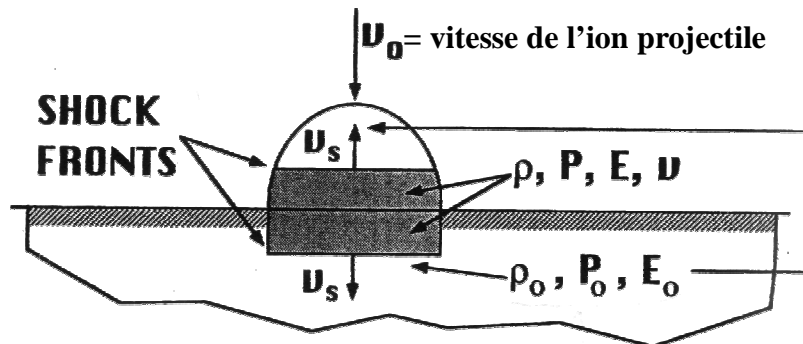


figure 9 : schéma des fronts d'ondes de choc créés lors de l'impact d'un ion sur un matériau cible [Reimann 1993]

La région située devant l'onde de choc est caractérisée par  $(P_0, V_0, E_0, \rho_0)$  et la région se trouvant derrière l'onde de choc est caractérisée par  $(P, V, E, \rho)$ .  $v_s$  correspond à la vitesse de l'onde de choc.

Le front de l'onde de choc traverse le matériau cible et conduit à une augmentation de la densité atomique, de la température et de la pression derrière le front de l'onde de choc, créant ainsi une contrainte. Si cette dernière est suffisamment forte, le matériau peut alors se fracturer et des parties peuvent être éjectées (figure 10).

<sup>5</sup> Ceci est vrai si l'écrantage par les électrons ne s'établit pas trop rapidement.

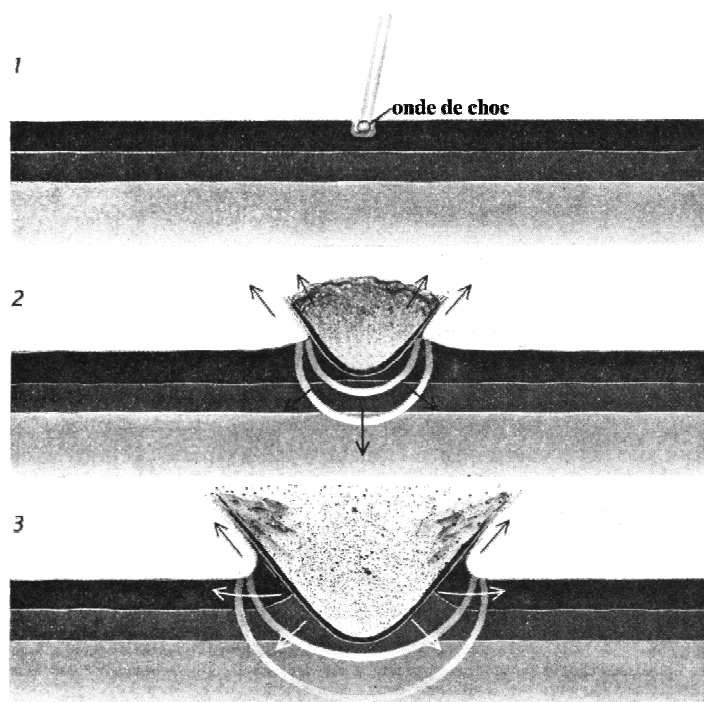


figure 10 : représentation des différentes étapes de la pulvérisation par onde de choc [Moshammer 1991]

C'est seulement pour des ions lourds incidents ayant une énergie de l'ordre d'une centaine de keV que les effets de l'onde de choc joue un rôle pour la pulvérisation [Hayashiuchi 1977, Kitazoe 1980] et la création de trace, c'est-à-dire quand le libre parcours moyen des collisions élastiques devient comparable à la distance interatomique.

Dans l'interprétation de Y. Kitazoe et collaborateurs [Kitazoe 1981, Yamamura 1982], les ions d'une centaine de keV sont supposés déposer leur énergie à une profondeur  $R_c$  (figure 11). Si l'énergie cinétique déposée par atome  $\epsilon_0$  à l'intérieur de la sphère de rayon  $R_c$  est supérieure à une certaine valeur critique  $\epsilon_c$ , l'onde de choc générée par ce brusque dépôt d'énergie provoque à la surface du matériau cible l'éjection d'un cône de matière.

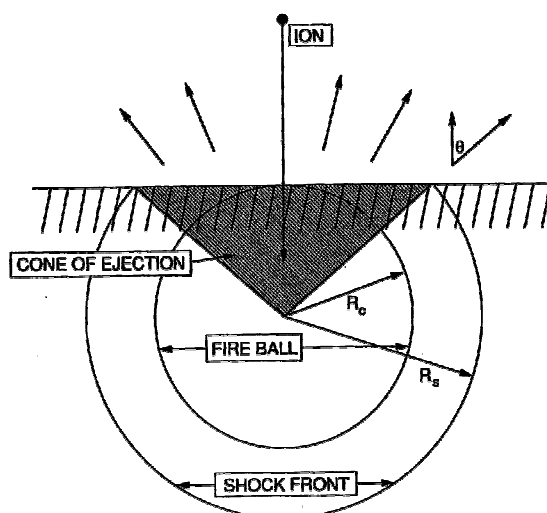


figure 11: schéma d'une onde de choc sphérique induite par un excès d'énergie à l'intérieur d'une sphère de rayon  $R_c$ , appelée « fire ball »  $R_s$  représente le rayon maximum de matière pulvérisée [Reimann 1993].

Ainsi, pour ces auteurs, la pulvérisation par onde de choc a lieu si  $\epsilon_0 > \epsilon_c$ . L'expression de  $\epsilon_0$  s'écrit :  $\epsilon_0 = \frac{3}{4\pi N R_c^2} \left( \frac{dE}{dx} \right)$ ,  $N$  étant la densité de particules. Dans ce cas, le rayon de matière pulvérisée<sup>6</sup>,  $R_c$ , dépend de la densité d'énergie et du pouvoir d'arrêt. Par conséquent, le volume final pulvérisé du matériau cible étant de forme conique et proportionnel à  $R_c^3$ , le rendement de pulvérisation,  $Y$ , est proportionnel à  $\left( \frac{dE}{dx} \right)^{3/2}$  et dépend bien sûr de l'angle d'ouverture du cône d'éjection  $\theta$  (figure 11).

Contrairement à Y. Kitazoe et collaborateurs [Kitazoe 1981, Yamamura 1982], qui utilisent un critère d'énergie dans leur approche de la pulvérisation par onde de choc, Bitensky & Parilis [Bitensky 1987] considèrent un critère de pression. La pression<sup>7</sup> considérée est celle créée par le front avant de l'onde de choc. D'après Y. Hayashiuchi [Hayashiuchi 1977], la propagation de l'onde de choc dans la cible est de symétrie cylindrique pour des ions lourds ou des fragments de fission incidents. Mais, dans une région proche de la surface, cette symétrie n'est plus respectée. Afin de modéliser les rendements de pulvérisation, Bitensky & Parilis [Bitensky 1987] considèrent deux cas :

- pour des ions projectiles en incidence rasante par rapport à la normale à la surface de la cible ( $\psi \leq \frac{\pi}{2}$ ), l'onde de choc est de symétrie cylindrique
- pour des ions projectiles perpendiculaires à la surface de la cible, l'onde de choc possède une symétrie sphérique.

Dans le cas d'une onde de choc sphérique, la pression est définie comme une fonction de la distance  $r$  :  $P(r) = P_0 \left( \frac{R_c}{r} \right)^s$ ,  $P_0$  représentant la pression initiale et  $s$  l'atténuation de l'onde de choc. Dans le cas réel, l'onde de choc doit être considérée comme une superposition d'ondes de choc sphériques partant d'un ensemble de sources ponctuelles et se propageant le long de

---


$${}^6 R_c = \sqrt{\frac{3 \left( \frac{dE}{dx} \right)}{4\pi N \epsilon_c}}$$

<sup>7</sup> Sur le front de l'onde de choc, la matière étant comprimée, il y a un excès de densité atomique comparée à la densité atomique normale et cela induit une forte pression.

la trace. L'onde de choc résultant de la sommation de toutes ces contributions jusqu'à la surface de la cible est une hémisphère de rayon  $R_s$  (figures 11 et 12), dont les composantes normales,  $P_n$ , et tangentielles,  $P_t$ , de la pression au point M de coordonnées cylindriques  $\rho$  et  $z$ , sont définies par :

$$\begin{cases} P_n = \frac{P_0 R_c}{r} \\ P_t = P_0 \frac{R_c}{r} \times \left( \frac{r}{\rho} + \frac{z}{\rho} \right) \end{cases}$$

$P_0$  représente la pression initiale dans chaque onde de choc sphérique,  $R_c$  le rayon de la « fire ball » et enfin  $r = (\rho+z)^{1/2}$ .

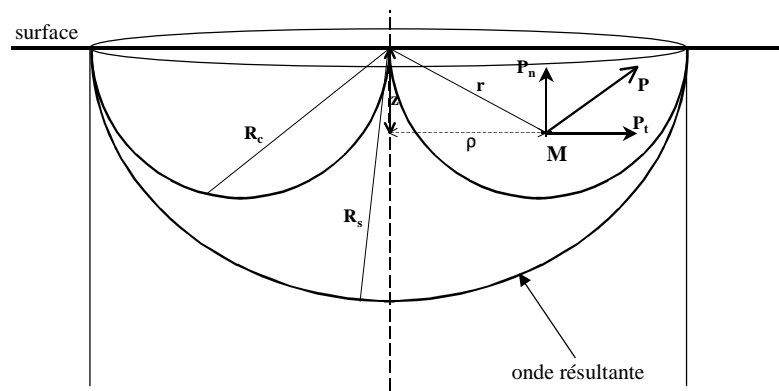


figure 12 : représentation de l'onde de choc résultant de la superposition de deux ondes de choc sphériques, pour  $\psi = 0^\circ$

Si la pression normale,  $P_n$ , dans la zone où l'énergie est confinée, est supérieure à la pression critique,  $P_{cr}$ , alors une partie conique de rayon  $R_s$  du matériau cible est pulvérisée. Le nombre de particules émises du cône sont déduites de  $R_s$ , dépendant lui-même de  $R_c$  par la

relation :  $R_s = R_c \times \left( \frac{P_0}{P_{cr}} \right)^{\frac{1}{s-1}}$ . Comme  $R_c$  est proportionnel à la racine carrée du pouvoir

d'arrêt<sup>6</sup>, le rendement de pulvérisation est proportionnel à  $\left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^{3/2}$ .

En incidence rasante ( $\psi \leq \frac{\pi}{2}$ ), Bitensky & Parilis [Bitensky 1987] obtiennent la même variation du rendement de pulvérisation avec le pouvoir d'arrêt électronique, montrant ainsi que la largeur du cratère de matière pulvérisée est indépendante de l'angle d'incidence des ions projectiles.

La variation du rendement de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt, obtenue par Bitensky & Parilis [Bitensky 1987], a été utilisée avec succès pour ajuster les résultats de A. Hedin et collaborateurs [Hedin 1985] concernant la désorption de molécules ionisées induite par des ions incidents d'énergie dans le domaine du MeV. Mais, cette dépendance ne correspond pas à l'évolution des rendements de molécules neutres pulvérisées obtenus expérimentalement, où  $Y \propto \left(\frac{dE}{dx}\right)^3$ . La divergence observée entre les prédictions du modèle d'onde de choc et les résultats expérimentaux repose sans doute sur l'hypothèse de base de ce modèle. En effet, l'onde de choc est considérée comme une superposition d'ondes de choc sphériques partant d'un ensemble de sources ponctuelles et se propageant le long de la trace. Cette hypothèse de sommation soulève une interrogation dans la mesure où le processus de propagation par onde de choc est un mécanisme fortement non-linéaire.

Dans cette même approche, I.S. Bitensky et collaborateurs [Bitensky 1990] obtiennent par calcul l'évolution des distributions angulaires des particules pulvérisées, pour différents

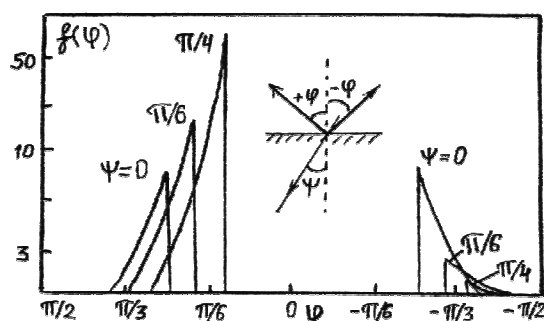


figure 13 : distributions angulaires des particules pulvérisées calculées par I.S. Bitensky et collaborateurs [Bitensky 1990] pour différents angles d'incidence du projectile

angles d'incidence  $\psi$  (figure 13). Ces distributions sont asymétriques et dépendent fortement de l'angle d'incidence de l'ion projectile. Le résultat le plus remarquable est qu'aucune particule n'est émise dans la direction d'incidence de l'ion projectile et lorsque  $\psi=0^\circ$ , la distribution présente un maximum vers  $45^\circ$ .

Nous allons maintenant découvrir au cours du paragraphe suivant que le modèle de pulvérisation par impulsion de pression décrit parfaitement l'évolution cubique observée par A. Hedin et collaborateurs [Hedin 1985].

### b) La pulvérisation par impulsion de pression

Afin d'expliquer les résultats expérimentaux concernant l'éjection de molécules organiques, où  $Y$  varie en  $\left(\frac{dE}{dx}\right)^3$  [Hedin 1985], R.E. Johnson et collaborateurs [Johnson 1989, Fenyö 1992] guidé par ces résultats et le modèle d'onde de choc, ont proposé le modèle de pulvérisation par impulsion de pression.

Dans ce modèle, l'énergie considérée correspond à  $\Delta E_i$ , c'est-à-dire l'énergie cédée par un ion dans un petit volume sphérique de rayon  $r_0$ . Cette énergie cinétique résulte, soit d'une interaction par collisions élastiques lors du développement d'une cascade de déplacement, soit d'une interaction électronique avec conversion partielle de l'énergie électronique déposée en énergie cinétique (figure 14).

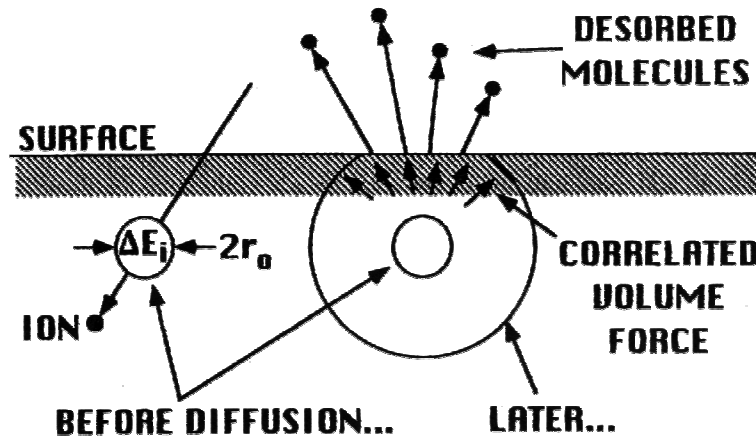


figure 14 : représentation du mécanisme de pulvérisation par impulsion de pression

A gauche : un ion incident crée une région excitée par collision ou par excitation électronique.

A droite : lorsque l'énergie atteint la surface, il y a création d'une « force en volume » induisant la pulvérisation par impulsion de pression.

Le point de départ du modèle d'impulsion est encore l'équation de diffusion (équation (2)), déjà présentée dans le paragraphe traitant de la pulvérisation par évaporation thermique :

$\nabla(\kappa\nabla T) = \frac{\partial T}{\partial t}$ . Contrairement aux modèles de pulvérisation par pointe thermique où la température est le paramètre essentiel, pour le modèle d'impulsion de pression, la densité d'énergie,  $\epsilon_i$ , liée à la température via les relations :  $\epsilon_i = CNT$  et  $\kappa = CN\delta$ , représente le paramètre essentiel.  $C$  est la chaleur spécifique,  $\delta$  la diffusivité thermique et  $N$  la densité de particules. L'énergie se propage selon l'équation de diffusion suivante :  $\vec{\nabla} \cdot [\delta \vec{\nabla} \epsilon_i(r_i, t)] = \frac{\partial \epsilon_i}{\partial t}$ .



La solution de cette équation pour la densité d'énergie dans le cas d'une source ponctuelle

est de la forme :  $\epsilon_i(\vec{r}_i, t) = \frac{\Delta E_i}{\pi^{3/2}(r_0^2 + 4\delta t)^{3/2}} e^{-\frac{r^2}{r_0^2 + 4\delta t}}$ , où  $r_0$  est la largeur initiale de la trace sur

laquelle est déposée l'énergie initiale  $\Delta E_i$  au temps  $t = 0$ . La quantité de mouvement  $\vec{p}$  cédée à une molécule de la cible pendant le temps  $t_e$  correspond à :

$$\frac{\Delta M \vec{v}}{\Delta V} = N \vec{p} = \beta \int_0^{t_e} -\vec{\nabla} \epsilon_i(\vec{r}_i, t) dt \quad (3)$$

La constante de proportionnalité  $\beta$  est une constante thermodynamique de l'ordre de 2/3.

Les impulsions individuelles sont décrites par la densité locale d'énergie,  $\epsilon_i$ , d'une part, et par le gradient d'énergie,  $-\vec{\nabla} \epsilon_i$ , d'autre part. Or, le gradient radial de densité d'énergie, dirigé vers la surface de la cible, induit une « **force en volume** » sur une zone de la cible, qui a pour effet de « pousser » les molécules de cette zone vers la surface. Cette force est la force totale par unité de volume sur une zone de la cible contenant la densité d'énergie  $\epsilon_i(\vec{r}_i, t)$ .

Dans le modèle d'impulsion de pression, la pulvérisation par des ions lourds rapides est

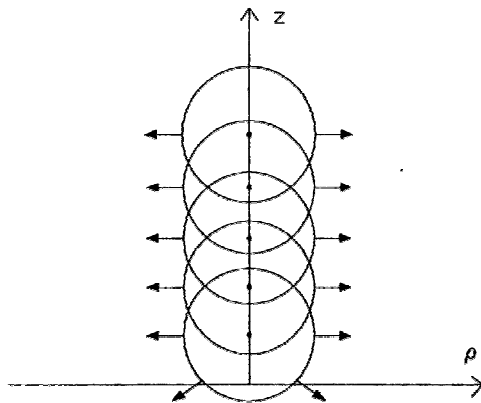


figure 15 : l'éjection de particules du matériau cible résulte de l'expansion induite par les impulsions radiales tout le long de la trace

décrite comme une somme d'impulsions (figure 15). L'impulsion totale (l'impulsion de pression) induite par la pression transitoire appliquée au matériau se trouvant dans la trace détermine la taille du volume éjecté.

Le modèle d'impulsion de pression s'applique au cas de traces de géométrie cylindrique, qui sont considérées comme une suite de petites impulsions régulièrement espacées d'une distance  $\lambda$ . Pour de fortes densités d'excitation, les impulsions se

recouvrant agissent collectivement. Ainsi, la densité d'excitation totale est obtenue en

$$\text{sommant tous les } \epsilon_i : \epsilon(\rho, z, t) = \int_0^\infty \epsilon_i(r_i, t) \frac{dz_i}{\lambda} \quad (4)$$

A partir de la relation (3), lorsque  $t_c$  est grand, les composantes normales et tangentielles de la quantité de mouvement sont données par :

$$\begin{cases} p_n = -\frac{\beta \left( \frac{dE}{dx} \right)}{4\pi \delta N r} \\ p_t = \frac{\beta \left( \frac{dE}{dx} \right)}{4\pi \delta N r} \left[ \frac{r}{\rho} + \frac{z}{\rho} \right] \end{cases}$$

R.E. Johnson et collaborateurs [Johnson 1989] supposent que toutes les molécules sont émises dans une demi-sphère de rayon  $r_c = \sqrt{\rho_c + z_c}$  si la composante normale de la quantité de mouvement atteint une valeur critique,  $p_c$ , reliée à l'énergie de liaison de surface,  $U$ , par la relation  $p_c = \sqrt{2MU}$ . En substituant l'expression de  $\varepsilon$  (équation (4)) dans l'équation (3) et en identifiant  $\frac{\Delta E_i}{\lambda}$ , comme l'énergie effective perdue par unité de longueur, au pouvoir

d'arrêt  $\frac{dE}{dx}$ , l'expression de  $p_c$  s'écrit :  $p_c = \frac{\beta}{4\pi \delta N r_c} \left( \frac{dE}{dx} \right)$ . En utilisant également la relation

liant  $p_c$  à l'énergie de liaison, l'expression de  $r_c$  devient :  $r_c \propto \frac{1}{N^{2/3}} \frac{1}{U} \frac{dE}{dx}$ .

La surface sur laquelle le critère de pulvérisation est vérifiée étant une demi-sphère de rayon  $r_c$ , le rendement de pulvérisation  $Y$  varie alors comme :  $\left( \frac{1}{U} \frac{dE}{dx} \right)^3$ . L'origine de la dépendance cubique du rendement est établie par le mécanisme de pulvérisation par impulsion de pression dans le régime des fortes densités d'excitation. Dans le cas de faibles densités d'excitation, les impulsions agissent indépendamment les unes des autres. Si l'extension spatiale et l'énergie des impulsions sont élevées pour permettre l'éjection de particules, le rendement de pulvérisation,  $Y$ , varie comme  $\left( \frac{dE}{dx} \right)^1$ .

Le modèle de pulvérisation par impulsion de pression prédit **une distribution angulaire piquée à 45° par rapport à la normale à la cible dans le cas d'ions en incidence perpendiculaire à la cible**. Lorsque le faisceau d'ions incidents est incliné par rapport à la normale à la cible, l'éjection des particules se fait plus proche de la perpendiculaire à la cible qu'à 45°. Dans le cas extrême d'une incidence rasante, dans le plan déterminé par le faisceau

d'ion projectile et la normale à la cible, les particules sont éjectées suivant la perpendiculaire à la cible.

En résumé, le modèle de pulvérisation par impulsion de pression est basé sur le concept qu'une force peut être induite par la modification locale de la densité d'énergie et conduit alors à une émission dirigée. Dans le cas d'ions incidents d'énergie de l'ordre du MeV sur des cibles organiques, le modèle d'impulsion de pression rend compte de manière plutôt convaincante des observations expérimentales [Hedin 1985].

Les modèles de pulvérisation par onde de choc et par impulsion de pression sont tous deux des modèles collectifs et mettent en évidence l'existence d'un seuil de pulvérisation lié à la barrière de surface  $U$ . Cependant, la différence entre ces deux modèles réside dans les caractéristiques des processus d'excitation propres à chaque modèle, et non pas dans les mécanismes d'émission. Cette différence est perceptible dans les dépendances du rendement de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt obtenues pour chaque modèle. Dans le prochain paragraphe, nous présenterons les principaux résultats expérimentaux obtenus en pulvérisation électronique et les comparaisons réalisées avec les différents modèles théoriques que nous venons de présenter. Afin de clarifier les connaissances théoriques, le tableau présente un récapitulatif des différents modèles de pulvérisation :

	<i>Modèles de pulvérisation thermique</i>		<i>Modèles de pulvérisation par choc</i>	
	<b>Pulvérisation par évaporation thermique</b>	<b>Pulvérisation par flux gazeux</b>	<b>Pulvérisation par onde de choc</b>	<b>Pulvérisation par impulsion de pression</b>
<b>Evolution du rendement de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt</b>	<p>*<u>Evatt [Evatt 1980]</u> et <u>Johnson [Johnson 1987a]</u> :</p> <p>- Pour une distribution radiale de l'énergie étroite : <math>Y \propto (dE/dx)_e^2</math></p> <p>- Pour une distribution radiale de l'énergie large :</p> <p>→ pour les forts pouvoirs d'arrêt : <math>Y \propto (dE/dx)_e^2</math></p> <p>→ pour les faibles pouvoirs d'arrêt : Y a tendance à varier <b>linéairement</b></p> <p>*<u>Lucchese [Lucchese 1987]</u> : pour les forts pouvoirs d'arrêt électronique : <math>Y \propto (dE/dx)_e^1</math></p> <p>*<u>Johnson [Johnson 1991]</u> :</p> <p>- Pour des faibles densités d'excitation : <math>Y \propto (dE/dx)_e^1</math></p> <p>- Pour de fortes densités d'excitation : <math>Y \propto (dE/dx)_e^2</math></p>	<p><u>Urbassek [Urbassek 1987]</u> :</p> <p>Pour des ions de l'ordre du keV : quand <math>T_0 &lt; T_c</math>, <math>Y \propto (dE/dx)_e^3</math></p>	<p>*<u>Kitazoe [Kitazoe 1981]</u> : <b>critère d'énergie</b></p> <p><math>Y \propto (dE/dx)_e^{3/2}</math></p> <p>*<u>Bitensky [Bitensky 1987]</u> : <b>critère de pression</b></p> <p><math>Y \propto (dE/dx)_e^{3/2}</math></p>	<p>*<u>Johnson [Johnson 1989]</u> :</p> <p>- Pour de fortes densités d'excitation : <math>Y \propto (dE/dx)_e^3</math></p> <p>- Pour de faibles densités d'excitation : <math>Y \propto (dE/dx)_e^1</math></p>
<b>Evolution des distributions angulaires des particules pulvérisées</b>	<p>De la forme : <math>(\cos\theta)^1</math></p>	<p>*<u>Urbassek [Urbassek 1987]</u> : distributions angulaires de la forme : <math>(\cos\theta)^1</math> mais l'inclusion de collisions dans le flux de particules pulvérisées entraîne une distribution plus « piquée ».</p> <p>*<u>Kelly [Kelly 1990]</u> : distributions angulaires de la forme : <math>(\cos\theta)^1</math> mais plus la vitesse du flux gazeux est élevée, plus la distribution angulaire est « piquée ».</p>	<p>*<u>Bitensky [Bitensky 1990]</u> : Distributions angulaires asymétriques et fortement dépendantes de l'angle d'incidence de l'ion projectile. Aucune particule n'est émise dans la direction d'incidence de l'ion projectile. Incidence normale : distribution « piquée » à 45°.</p>	<p>*<u>Johnson [Johnson 1989]</u> :</p> <p><b>Incidence normale</b> : distribution « piquée » à 45° par rapport à la normale à la cible.</p> <p><b>Incidence inclinée</b> : distribution « piquée » plus vers 90° que vers 45°.</p> <p><b>Incidence rasante</b> : distribution « piquée » suivant la normale à la cible.</p>

### III.3 - Résultats expérimentaux de pulvérisation électronique

Dans ce paragraphe, les principaux résultats expérimentaux de pulvérisation électronique seront exposés<sup>8</sup>. Nous allons nous concentrer plus particulièrement sur les points suivants : les distributions angulaires des particules pulvérisées, les rendements de pulvérisation, l'évolution de ces derniers en fonction du pouvoir d'arrêt et de l'angle d'incidence,  $\psi$ , des ions lourds projectiles. Les ions lourds rapides peuvent pulvériser différents types de matériaux : des semi-conducteurs, des métaux et des isolants parmi lesquels des oxydes, des halogénures alcalins, des gaz condensés et même des molécules organiques. Dans la plupart des cas, les rendements de pulvérisation mesurés dans le régime électronique sont plus élevés que dans le régime nucléaire.

#### III.3.1 - Les distributions angulaires

Le premier intérêt de la mesure des distributions angulaires est de donner la direction préférentielle d'éjection des particules pulvérisées, qui est une des données prédites par les différents modèles théoriques. Les distributions angulaires obtenues expérimentalement sont :

- soit de la forme  $(\cos \theta)^n$ , n variant de 0,5 à 6 (tableau 1)
- soit de la forme  $e^{-m|\theta|}$ , m variant de 1,9 à 5,5 (tableau 1)

$\theta$  est l'angle défini par rapport à la normale à la cible.

Cible	Ion incident	Energie	Atomes détectés	Forme de la distribution	Référence
UO <sub>2</sub>	fragments de fission de <sup>252</sup> Cf	fragments légers ≈100 MeV fragments lourds ≈80 MeV	U	$(\cos \theta)^2$	[Baranov 1988]
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	<sup>35</sup> Cl	20 MeV	Al	$(\cos \theta)^{3,25}$	[Qiu 1982]
Y <sub>3</sub> Fe <sub>5</sub> O <sub>12</sub>	Au	230 MeV	Fe	$e^{-1,9 \theta }$	[Mieskes 1999]
			Y	$e^{-5,5 \theta }$	
UF <sub>4</sub>	<sup>19</sup> F <sup>3+</sup>	4,75 MeV	U	$(\cos \theta)^{0,81}$	[Griffith 1980]
CsI	fragments de fission de <sup>252</sup> Cf	fragments légers ≈100 MeV fragments lourds ≈80 MeV	Cs <sup>+</sup>	$(\cos \theta)^3$	[Moshhammer 1991]
			I <sup>-</sup>	$(\cos \theta)^1$	
CsI	I <sup>5+</sup>	210 MeV	Cs	$(\cos \theta)^{3,2}$	[Mieskes 1999]
Au	Au	230 MeV	Au	$(\cos \theta)^{3,6}$	[Mieskes 1999]
Au	fragments de fission de <sup>252</sup> Cf	fragments légers ≈100 MeV fragments lourds ≈80 MeV	Au	$e^{-2,2 \theta }$	[Baranov 1988]
$\alpha$ -cyclodextrine	fragments de fission de <sup>252</sup> Cf	fragments légers ≈100 MeV fragments lourds ≈80 MeV	(M+H) <sup>+</sup>	$(\cos \theta)^1$	[Moshhammer 1991]
			H <sup>+</sup>	$(\cos \theta)^6$	
			H	$(\cos \theta)^{0,5}$	

tableau 1 : distributions angulaires des particules pulvérisées obtenues expérimentalement

<sup>8</sup> Pour une synthèse complète des résultats expérimentaux, le lecteur pourra se référer aux articles de K. Wien [Wien 1989, Wien 1992], Johnson & Schou [Johnson 1993b], C.T Reimann [Reimann 1993] et Betz & Wien [Betz 1994].

L'émission préférentielle de particules suivant la normale à la cible est la seule conclusion pouvant être dégagée de toutes ces mesures de distributions angulaires. Dans le cas du saphir,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , du grenat d'yttrium,  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ , de l'halogénure alcalin, CsI, de l'or et des ions  $\text{H}^+$  pour l' $\alpha$ -cyclodextrine, les distributions angulaires des particules pulvérisées présentent des formes très « piquées » sur la perpendiculaire à la cible, comme le suggère la puissance élevée (supérieure à 1) du cosinus.

Notons également une information très intéressante concernant l'évolution des distributions angulaires des espèces ionisées : il semble que la puissance du cosinus diminue lorsque les ions pulvérisés sont négatifs, comme c'est le cas du  $\Gamma^-$  pour le CsI et du  $\text{H}^-$  pour l' $\alpha$ -cyclodextrine (tableau 1). De plus, l'observation des variations des distributions angulaires des ions  $\text{Cs}^+$  en  $(\cos \theta)^3$  [Moshammer 1991] et des atomes Cs (neutres et ionisés) en  $(\cos \theta)^{3,2}$  [Mieskes 1999] permet d'émettre l'hypothèse que les espèces ionisées positivement semblent imposer la forme de la distribution angulaire des atomes Cs pulvérisés. Cependant, cette hypothèse ne peut être confirmée puisque la distribution angulaire des atomes neutres Cs n'a pas été mesurée.

### III.3.2 - Les rendements de pulvérisation

Nous avons dressé une liste des principaux rendements de pulvérisation obtenus expérimentalement pour différents composés (tableau 2).

Cible	Ion incident	Energie	Pouvoir d'arrêt électronique (MeV/mg/cm <sup>2</sup> )	Atomes détectés	Rendement de pulvérisation	Référence
$\text{SiO}_2$ (cristallin)	$^{35}\text{Cl}$	20 MeV	20,3	Si	2,7	[Qiu 1983]
		5 MeV	13,0		1,48	
$\text{Si}_3\text{N}_4$	$^{35}\text{Cl}$	20 MeV	20,4	Si	0,27	[Qiu 1983]
		5 MeV	14,0		0,17	
Si <111>	$^{35}\text{Cl}$	20 MeV	18,1	Si	<0,01	[Qiu 1983]
		5 MeV	12,8		<0,01	
$\text{Al}_2\text{O}_3$	$^{35}\text{Cl}$	20 MeV	19,1	Al	0,22	[Qiu 1982]
		5 MeV	11,8		0,14	
$\text{UO}_2$	$^{35}\text{Cl}$	20 MeV	6,9	U	0,06	[Meins 1983]
$\text{UO}_2$	fragments de fission		18	U	100-1000	[Biersack 1974]
$\text{LiNbO}_3$	$^{35}\text{Cl}$	20 MeV	14,9	Nb	0,16	[Qiu 1982]
		5 MeV	9,2		0,06	
$\text{Eu}_2\text{O}_3$	$^{134}\text{Xe}$	17 MeV	7,4	Eu-atomes	150	[Wien 1991]
				Eu-ions	0,08	
$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	$\text{Au}^{29+}$	230 MeV	64,0	Y	19,6	[Mieskes 1999]

				Fe	1,04	
UF <sub>4</sub>	<sup>35</sup> Cl	20 MeV	9,4	U	205	[Seiberling 1982]
		5 MeV	5,3		40	
CaF <sub>2</sub>	<sup>35</sup> Cl	20 MeV	18,8	Ca	1	[Tombrello 1983a]
InP	<sup>35</sup> Cl	20 MeV	10,9	In	0,06	[Tombrello 1983b]
				P	0,12	
CsI	Au <sup>29+</sup>	230 MeV	40,5	Cs	9676	[Mieskes 1999]
				I	2908	
CsI	Kr	80 MeV	19,4	Cs	30000	[Guthier 1986]
Ti	Au <sup>29+</sup>	275 MeV	67,1	Ti	6,5	[Mieskes 1999]
Mn	Au <sup>29+</sup>	275 MeV	61,1	Mn	3,29	[Mieskes 1999]
Ge	Au <sup>29+</sup>	275 MeV	54,3	Ge	2,61	[Mieskes 1999]
Zr	Au <sup>29+</sup>	275 MeV	49,7	Zr	2,86	[Mieskes 1999]
Au	Au <sup>29+</sup>	275 MeV	31,0	Au	12,1	[Mieskes 1999]
Peptide Tri-leucine	<sup>127</sup> I	55 MeV		Leu <sub>3</sub>	3500	[Eriksson 1996]

tableau 2 : rendements de pulvérisation pour différents matériaux

Mis à part les rendements de pulvérisation obtenus avec des faisceaux d'ions projectiles Au<sup>29+</sup>, dont l'énergie est supérieure à 1 MeV/uma, la plupart des résultats présentés dans le tableau 2 sont réalisés avec des ions projectiles dont l'énergie est largement inférieure à 1 MeV/uma. De même, la gamme de pouvoir d'arrêt électronique couverte par ces expériences de pulvérisation est faible. Les rendements de pulvérisation varient de 0,01 pour le Si <111> à 30000 dans le cas de CsI. Concernant les composés à base de silice, les rendements ne varient pas énormément, en revanche les halogénures alcalins et les oxydes présentent des variations importantes des rendements de pulvérisation.

Notons une information très importante : dans le cas de l'oxyde d'euporium, Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, le rendement des atomes neutres d'Eu est 1900 fois plus élevé que celui des atomes d'Eu ionisés. En fait, d'après ces mesures, il semble que les atomes neutres soient l'espèce la plus représentative de la pulvérisation.

Il est également intéressant de constater les différences des rendements obtenus pour un même composé, comme c'est le cas de CsI. La question peut alors se poser concernant la reproductibilité des mesures expérimentales. En effet, l'état de surface des matériaux cibles et les conditions expérimentales (expérience sous ultravide, angle d'incidence des ions projectiles...) sont des facteurs importants dans la détermination des rendements.

### III.3.3 - Evolution des rendements de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique

Au cours de ce chapitre, dans la partie « *Modèles de pulvérisation électronique* », nous avons exposé les différents comportements des rendements de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt :  $Y$  est proportionnel à  $\left(\frac{dE}{dx}\right)^n$ ,  $n$  variant de 1 à 3. Nous allons maintenant découvrir si les rendements obtenus expérimentalement présentent les mêmes variations.

Nous allons tout d'abord nous intéresser à la pulvérisation de l'oxyde d'aluminium,  $Al_2O_3$  et du niobiate de lithium,  $LiNbO_3$ , par des ions  $Cl^+$  dont l'énergie varie de 5 à 25 MeV [Qiu 1982]. Les rendements de pulvérisation d'Al et de Nb sont obtenus par analyse RBS des « collecteurs »<sup>9</sup>.

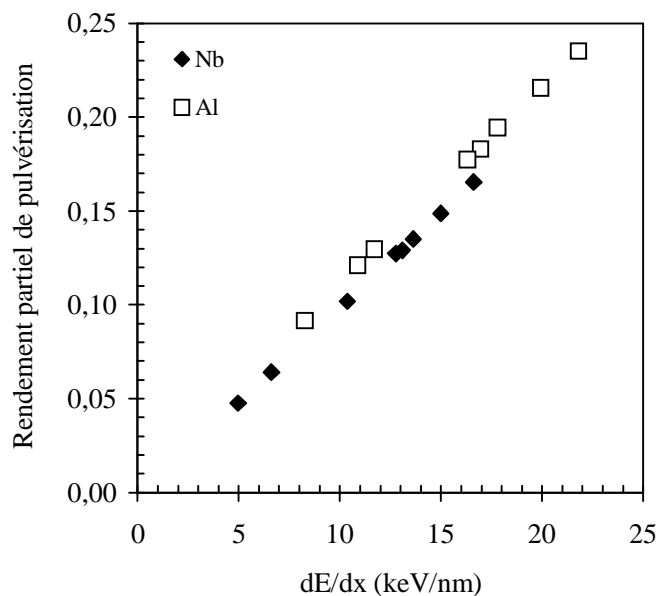


figure 16 : évolution des rendements de pulvérisation d'Al et de Nb [Qiu 1982]  
 Pour représenter cette figure, nous avons calculé les pouvoirs d'arrêt à l'aide de SRIM2000 [Biersack 1980].

Les rendements varient linéairement en fonction du pouvoir d'arrêt, comme le prédit la pulvérisation par évaporation thermique ou par impulsion de pression pour les faibles pouvoirs d'arrêt [Johnson 1987a, Johnson 1991]. Nous pouvons déjà noter un premier problème dans les modèles, concernant le manque de clarté de la définition de faible et fort pouvoir d'arrêt. En effet, cette notion est totalement subjective puisqu'il n'existe aucun critère

<sup>9</sup> La méthode dite des « collecteurs » est présentée en détail dans le chapitre 3.



quantitatif. Le second problème apparaît si l'on s'intéresse plus particulièrement à l'allure des distributions angulaires des particules pulvérisées par évaporation thermique. En effet, dans ce modèle la distribution angulaire varie en  $(\cos \theta)^1$ , ce qui n'est pas le cas de la distribution angulaire expérimentale des atomes d'Al, variant en  $(\cos \theta)^{3,25}$  [Qiu 1982]. Cette distribution « piquée » suivant la normale à la cible ressemble à celle obtenue lors de la pulvérisation par flux gazeux.

Les résultats expérimentaux alliant distributions angulaires et évolution en fonction du pouvoir d'arrêt apportent sans conteste des renseignements intéressants concernant les mécanismes de pulvérisation et permettent de tester la validité des modèles de pulvérisation.

A. Meftah et collaborateurs [Meftah 1993] ont réalisé en parallèle à l'étude de l'évolution des traces créées par des ions lourds incidents dans le grenat d'yttrium,  $Y_3Fe_5O_{12}$  (voir figure 4 dans le chapitre 1) un travail concernant l'évolution des rendements de pulvérisation du fer et de l'yttrium en fonction du pouvoir d'arrêt (figure 17).

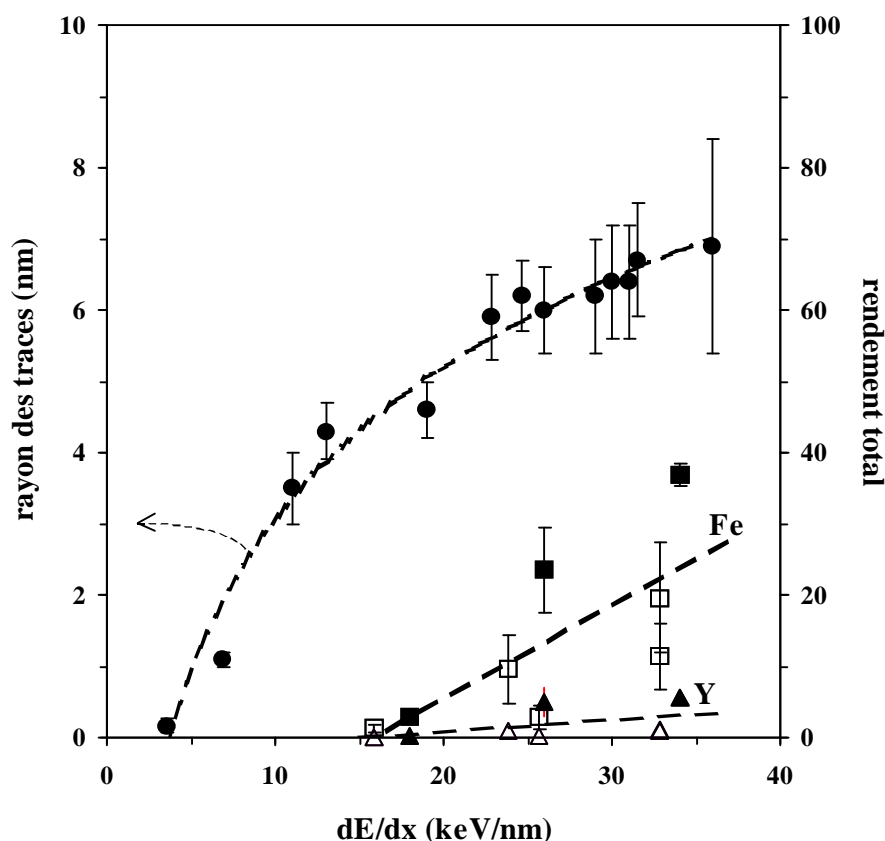


figure 17 : évolution des rayons de traces et des rendements de pulvérisation du Fe et de l'Y en fonction du pouvoir d'arrêt [Meftah 1993, Mieskes 1999]  
 Les symboles pleins correspondent aux mesures réalisées par Meftah et collaborateurs et les symboles vides aux mesures de H.D. Mieskes.

Les rendements de pulvérisation obtenus présentent une grande dispersion, rendant difficile une interprétation avec les modèles de pulvérisation. Il apparaît cependant que les rendements ne reflètent pas la stœchiométrie de la cible d' $Y_3Fe_5O_{12}$ . Une extrapolation à zéro des rendements de Fe et d'Y donne une valeur seuil pour le rendement de pulvérisation de  $16 \pm 3$  keV/nm. Cette valeur est environ quatre fois plus grande que celle correspondant au seuil de création de traces. Au vu de ces résultats, il semble que la pulvérisation ne soit pas liée de manière directe à la création de traces.

Une dépendance linéaire des rendements de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt n'est pas toujours observée expérimentalement. W. Guthier [Guthier 1986] a étudié, par la méthode du « collecteur », l'évolution des rendements de pulvérisation dans l'oxyde d'euporium,  $Eu_2O_3$ , pour des ions projectiles Xe et U d'énergie comprise entre 0,5 et 1 MeV/uma. La figure 18 montre une évolution non-linéaire des rendements de pulvérisation de Eu ; ils varient en effet en  $\left(\frac{dE}{dx}\right)^{2,4}$ .

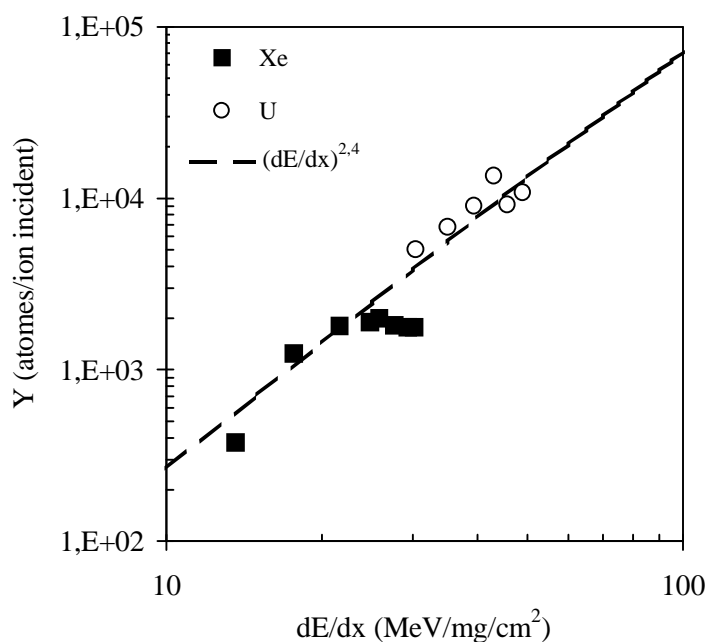


figure 18 : rendement des atomes d'Eu pulvérisés d'une cible d' $Eu_2O_3$  en fonction du pouvoir d'arrêt [Guthier 1986]

Dans le cas d'halogénures alcalins, tels que  $UF_4$  et  $CsI$ , les rendements de pulvérisation présentent également des dépendances fortement non-linéaires.

L'évolution des rendements d'atomes d'uranium pulvérisés d'une cible  $UF_4$  par des ions  $^{35}Cl$  d'énergie comprise entre 0,1 et 0,9 MeV/uma est présentée dans la figure 19.

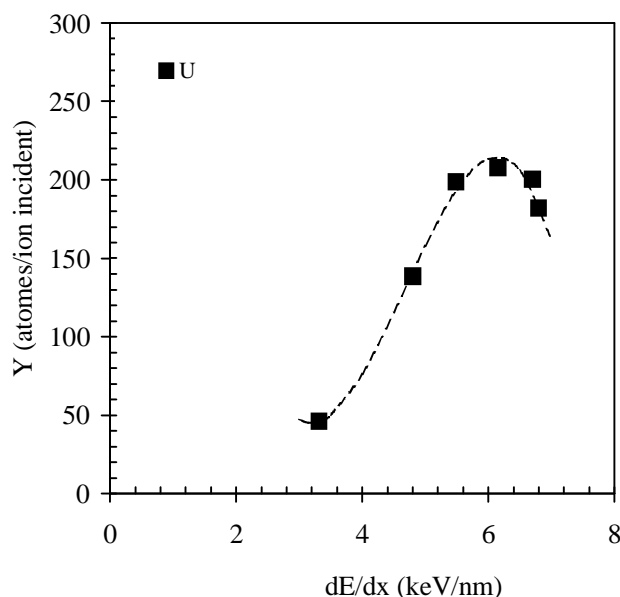


figure 19 : évolution des rendements d'atomes d'uranium pulvérisés d'une cible  $UF_4$  en fonction du pouvoir d'arrêt [Seiberling 1982]

Les rendements de pulvérisation peuvent être reproduits par une courbe de la forme  $ax^3+bx^2+cx+d$ , difficilement explicable par un modèle. En revanche, L.E. Seiberling et collaborateurs [Seiberling 1980] utilisent un modèle d'explosion coulombienne thermalisée pour décrire cette évolution. Les rendements de pulvérisation sont alors proportionnels à  $\left(\frac{dJ}{dx}\right)^4$ ,  $\left(\frac{dJ}{dx}\right)$  étant le taux d'ionisation primaire. Ce taux a été proposé par R.L. Fleischer et collaborateurs [Fleischer 1967] afin de décrire le seuil de création de traces. Il est défini comme étant le nombre d'ionisations<sup>10</sup> créées directement par l'ion incident par unité de longueur.  $\left(\frac{dJ}{dx}\right)$  est obtenu à partir de l'expression théorique proposée par H. Bethe [Bethe 1930]. Dans le modèle de pulvérisation proposé par L.E. Seiberling et collaborateurs, l'explosion coulombienne (ou ionique) correspond au mécanisme couplant l'excitation électronique au mouvement nucléaire, c'est-à-dire au recul des noyaux. Après quelques collisions entre les noyaux, un quasi-équilibre thermique peut s'établir, caractérisé par une forte température, comme dans le modèle de Sigmund & Clausen [Sigmund 1981b]. Les températures des molécules pulvérisées (4000 K) obtenues expérimentalement sont

<sup>10</sup> Dans les ionisations sont incluses les multiples ionisations, mais les ionisations secondaires dues aux électrons diffusés ne sont pas prises en compte.

suffisantes pour produire une évaporation de  $UF_4$  avant le refroidissement de la trace par conduction thermique. Bien que ce modèle décrive avec succès l'évolution des rendements de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt, l'estimation du temps de vie de la pointe thermique reste cependant discutable. En effet, l'équilibre thermique local s'établit pour des temps bien inférieurs à  $10^{-13}$  s, c'est-à-dire qu'il peut y avoir pulvérisation avant que l'équilibre thermique soit atteint.

Dans le cas de CsI, P. Håkansson et collaborateurs [Håkansson 1982a] présentent la dépendance du rendement de pulvérisation des ions positifs  $Cs^+$  en fonction du pouvoir d'arrêt électronique (figure 20).

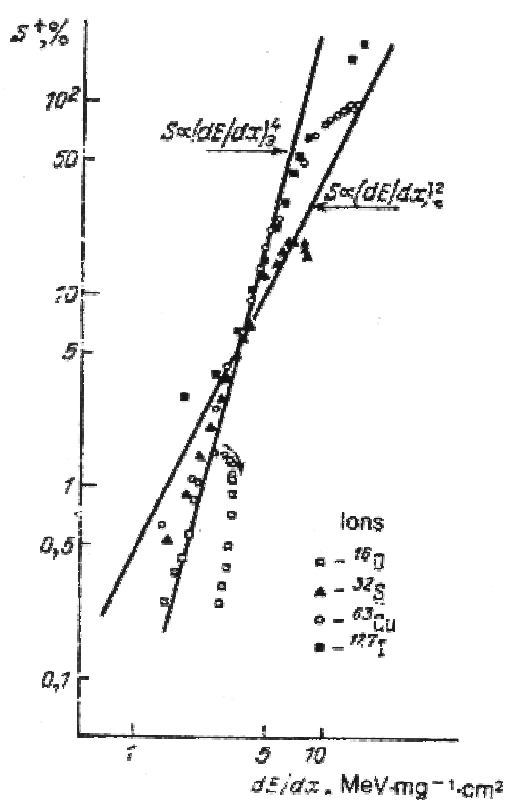


figure 20 : évolution des rendements des  $Cs^+$  en fonction du pouvoir d'arrêt électronique lors de la pulvérisation de CsI par des ions  $^{16}O$ ,  $^{32}S$ ,  $^{63}Cu$  et  $^{127}I$

Les rendements varient comme  $\left(\frac{dE}{dx}\right)^n$ , avec  $2 \leq n \leq 4$ . L'effet de boucle, observé pour les ions projectiles  $^{16}O$ ,  $^{32}S$  et  $^{63}Cu$  est dû à un effet de vitesse, le pic des évolutions des rendements de pulvérisation correspondant au pic de Bragg.

Comme nous l'avons déjà constaté lors de la description des modèles de pulvérisation électronique et comme nous venons de le découvrir au cours de ce paragraphe, les rendements des espèces pulvérisées présentent des évolutions très diverses en fonction du pouvoir d'arrêt. Ces évolutions ont été également observées dans d'autres matériaux, parmi lesquels l'oxyde de plutonium et d'américium pulvérisés par des fragments de fission [Aleksandrov 1975], des cibles organiques comme la leucine [Hedin 1987], la glace [Brown 1980] ou l'insuline [Håkansson 1984]...

### III.3.4 - Evolution des rendements de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence des ions projectiles

Dans la théorie de la pulvérisation nucléaire, le rendement de pulvérisation est généralement proportionnel à  $(\cos \psi)^{-1}$ ,  $\psi$  représentant l'angle d'incidence des ions projectiles par rapport à la normale à la cible<sup>11</sup>. Une telle dépendance en  $\psi$  devrait également être observée dans le domaine électronique si les rendements de pulvérisation,  $Y$ , sont proportionnels à l'aire de l'intersection de la zone cylindrique excitée avec la surface. Cela signifierait une augmentation du rendement de 15% lorsque  $\psi=30^\circ$ . Cependant, il n'y a aucune évidence expérimentale pour confirmer une telle dépendance dans le domaine de la pulvérisation électronique.

Pourtant, des prédictions théoriques sur la dépendance des rendements des ions émis en fonction de l'angle  $\psi$  ont été proposées par Bitensky & Parilis [Bitensky 1987]. Les calculs de ces auteurs, basés sur un mécanisme d'onde de choc indiquent que  $Y$  est proportionnel à  $\left(\frac{dE}{dx}\Big|_e\right)^{3/2}$ , comme nous l'avons vu précédemment. Or, pour des petits angles  $\psi$ , l'énergie déposée près de la surface est proportionnelle à  $(\cos \psi)^{-1}$ . Par conséquent, le rendement de pulvérisation,  $Y$ , devient proportionnel à  $(\cos \psi)^{-1.5}$ . En revanche, en incidence rasante (pour des grands angles  $\psi$ ), le modèle prédit une dépendance de  $Y$  en  $(\cos \psi)^{-1}$ . Ces résultats sont en accord avec les courbes expérimentales obtenues lors de la pulvérisation de cibles d'acide aminé, d'ergosterol et de CsI présentant des variations de l'exposant  $\alpha$  de l'expression  $(\cos \psi)^{-\alpha}$  de 1 à 2 suivant l'ion éjecté et l'échantillon considéré [Håkansson 1982b, Bolbach 1987].

<sup>11</sup>  $\psi = 0^\circ$  correspond au cas où le faisceau d'ions projectiles est perpendiculaire à la surface de la cible.

R.E. Johnson et collaborateurs [Johnson 1987b] montrent qu'une dépendance en  $(\cos \psi)^{-1}$  est toujours observée si la distribution spatiale de l'énergie déposée électroniquement est indépendante de la profondeur traversée par le projectile et s'il n'existe aucun effet de surface. Lorsque l'ion projectile n'est pas à la charge d'équilibre ou si de nombreux électrons secondaires sont éjectés dans le vide, des déviations de l'évolution en  $(\cos \psi)^{-1}$  peuvent apparaître.

Les résultats expérimentaux sont insuffisants pour établir une dépendance claire de l'exposant  $\alpha$  du cosinus en fonction de la cible et des paramètres de l'ion projectile.

### III.4 - Conclusion

Dans ce paragraphe, nous avons présenté les grandes lignes des modèles de pulvérisation ainsi que les principaux résultats expérimentaux. L'ensemble des données obtenues dans ces différentes études nous a amenés aux conclusions suivantes :

- les résultats expérimentaux de pulvérisation sont essentiellement axés sur l'étude d'un seul paramètre (soit l'émission des particules pulvérisées, soit l'évolution des rendements de pulvérisation), ne permettant pas de tester l'ensemble de prédictions de chaque modèle de pulvérisation. Notons de plus, dans le cas de cibles solides, le peu de résultats interprétés avec les modèles de pulvérisation.
- il existe deux catégories de modèles de pulvérisation : la pulvérisation par pointe thermique et par choc. Pour chacun de ces modèles, un manque de clarté des prédictions concernant les évolutions des distributions angulaires ou des rendements de pulvérisation entraîne des difficultés pour l'interprétation des résultats expérimentaux.
- au vu des résultats expérimentaux de A. Mefath et collaborateurs [Mefath 1993], il apparaît que l'étude comparative des évolutions de l'endommagement et de la pulvérisation apporte des informations importantes concernant un couplage éventuel entre les mécanismes de création de traces et la pulvérisation résultante. Or, une seule étude a été menée dans ce sens jusqu'à présent.

Le but de notre mission, si vous l'acceptez, sera de combler ces lacunes (du moins en parti)...

## IV - Les objectifs de cette étude

Les mécanismes de mise en mouvement des atomes dans le sillage d'un ion lourd restent à ce jour non entièrement élucidés. En effet, les données expérimentales donnent accès soit à des informations sur les mécanismes primordiaux des collisions, soit à des informations sur les modifications stabilisées induites par les ions (comme par exemple les traces latentes). Le passage de l'un à l'autre, c'est-à-dire la mise en mouvement des atomes et leur relaxation, ne semble pas accessible actuellement de manière directe. C'est dans ce cadre que les expériences de pulvérisation avec des ions multi-chargés ont retrouvé un regain d'intérêt. En effet, il n'est pas déraisonnable de supposer que les processus responsables de la formation de traces et de l'éjection de particules lors de l'impact soient les mêmes.

Sur la base des considérations précédentes, nous nous sommes concentrés sur l'étude concomitante de l'endommagement et de la pulvérisation d'un matériau donné, le dioxyde d'uranium  $\text{UO}_2$ <sup>12</sup>. Les objectifs de cette étude sont :

- l'évolution de l'endommagement de la cible de  $\text{UO}_2$  induit par différents ions lourds incidents
- la pulvérisation des atomes d'uranium lors de l'irradiation de la cible de  $\text{UO}_2$ .

L'analyse des particules émises nous donnera des informations sur les impulsions transférées aux atomes après une excitation intense. Dans ce but, nous mesurerons les distributions angulaires et le nombre d'atomes d'uranium éjectés pour différents ions incidents. Une étude systématique de l'influence de l'orientation de la cible de dioxyde d'uranium par rapport au faisceau d'ions lourds sera faite pour chaque type d'ion incident. Nous utiliserons pour cela la technique dite du « collecteur » que nous allons exposer en détail au cours du chapitre 3.

---

<sup>12</sup> Nous aborderons les critères de choix du matériau dans le chapitre 3.

# Chapitre 3

---

## *Les expériences de pulvérisation*

La mise en mouvement des atomes d'un matériau induite par un ion projectile se traduit dans le volume par la création d'un endommagement et à la surface par l'éjection d'atomes vers le vide. Ainsi, l'étude expérimentale de la pulvérisation peut apporter de précieuses informations afin d'appréhender les mécanismes initiaux de l'endommagement des matériaux par les ions, en particulier en vue de comprendre la dynamique de formation des traces. La caractérisation de cet endommagement peut être réalisée à l'aide de la nature des atomes éjectés, de la détection ou non d'amas (molécules ou agrégats) et surtout à l'aide de leurs distributions angulaire et en vitesse. L'état de charge (positif, neutre ou négatif) des espèces éjectées est également un paramètre important. En effet, parmi les particules éjectées, environ 1% des particules sont chargées et la grande majorité sont des particules neutres (non chargées). Ne sachant pas si l'état de charge des atomes éjectés provient des mécanismes d'interaction ou d'un échange de charge au cours de leur mise en mouvement, nous nous sommes intéressés aux particules émises en plus grand nombre lors de la pulvérisation, c'est-à-dire les particules neutres.

Dans ce chapitre, nous allons nous focaliser sur l'obtention des distributions angulaires des atomes d'uranium pulvérisés à partir d'une cible de  $\text{UO}_2$ . Pour cela, nous avons choisi de détecter l'ensemble des particules pulvérisées sans distinction de charge et de masse, en utilisant la technique dite du « collecteur ». Nous allons tout d'abord exposer le principe de cette technique du « collecteur » et justifier le choix des collecteurs et du matériau cible utilisés dans nos expériences. Ensuite, nous présenterons en détail le dispositif expérimental d'irradiation aux ions lourds. Dans une troisième partie, nous décrirons la méthode d'analyse permettant d'accéder aux distributions angulaires et nous en discuterons la fiabilité.



# I - Détection des particules pulvérisées

## I.1 - Technique du collecteur

Dans ce travail, la détection des particules pulvérisées est basée sur la technique dite du « collecteur ». Les espèces éjectées de la cible viennent s'adsorber sur une surface en regard de la zone d'interaction (figure 1).

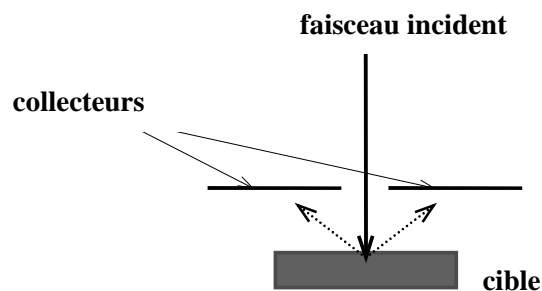


figure 1 : dispositif des collecteurs

Le nombre d'atomes collectés sur cette surface est ensuite mesuré par la technique la plus adaptée à l'espèce adsorbée. Cette méthode a déjà fait ses preuves lors de nombreuses études sur la pulvérisation, comme par exemple avec le tétrafluorure d'uranium,  $UF_4$ , afin de mesurer les rendements d'atomes d'uranium pulvérisés dont nous avons présenté les résultats dans le chapitre 2 [Griffith 1980]. Nous avons choisi d'utiliser cette méthode du collecteur dans le cas de notre étude sur la pulvérisation du dioxyde d'uranium par les ions lourds.

Pour détecter les atomes d'uranium pulvérisés de la cible de  $UO_2$  et adsorbés sur la surface des collecteurs, ces derniers sont soumis à un flux de neutrons thermiques dans le réacteur ORPHEE à Saclay, afin de faire fissionner une partie des atomes d'uranium 235. Les fragments de fission induisent des traces dans le mica, qui sont observées après révélation chimique pour obtenir les distributions angulaires des atomes d'uranium éjectés.

## I.2 - Choix des matériaux

Dans le cadre de nos expériences, nous avons choisi le dioxyde d'uranium,  $\text{UO}_2$ , comme matériau pour la cible et des micas pour les collecteurs.

La cible utilisée est une pastille de dioxyde d'uranium frittée<sup>1</sup> et enrichie à 3,7% d'uranium 235, de 20 mm de diamètre et de densité  $10,96 \text{ g/cm}^3$ . Le choix de la cible de  $\text{UO}_2$  a été guidé par :

- la technique de détection des particules pulvérisées avec la méthode des traces de fission. En effet, le matériau doit être composé d'un élément fissile, comme par exemple l'euporium, Eu, dans l' $\text{Eu}_2\text{O}_3$  [Mieskes 1986] ou l'uranium, U, dans l' $\text{UF}_4$  [Griffith 1980]. Cette méthode de détection des traces de fission dans les solides est très utile pour la mesure de faibles rendements de pulvérisation, car d'une grande sensibilité [Gregg 1977]. Cette technique de détection a été utilisée par J.P. Biersack et collaborateurs [Biersack 1974] pour mesurer la pulvérisation du dioxyde d'uranium induite par des flux de neutrons.
- le choix d'une pastille enrichie, nous permet d'augmenter le rendement des atomes d'uranium 235 pulvérisés.
- les propriétés d'endommagement de la cible. Dans l'optique d'une étude comparative de l'évolution de l'endommagement et de la pulvérisation, le matériau cible doit s'endommager pour des densités d'excitation électronique, ce qui est le cas de l' $\text{UO}_2$ . Nous reviendrons plus en détail sur l'endommagement du dioxyde d'uranium au cours du chapitre 4.

La sélection des collecteurs de mica a été dictée par les arguments suivants.

- Le mica est un bon candidat pour les études de surface, car il est aisé d'obtenir une surface propre et plane sur plusieurs milliers de  $\mu\text{m}^2$  par simple clivage. Parmi les différents types de mica, nous avons utilisé le mica muscovite comme collecteur, de formule  $\text{KAl}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ . Les micas forment une famille de minéraux à structure lamellaire, construits en feuillets à clivage (001).
- Une bonne connaissance de la probabilité de collage des particules d'uranium sur le mica. Une analyse correcte du nombre d'atomes d'uranium pulvérisés, nécessite une connaissance parfaite du pourcentage d'atomes d'uranium pulvérisés se « collant » à la

---

<sup>1</sup> Les pastilles d' $\text{UO}_2$  enrichies en uranium 235 nous ont été fournies par C. Lemaignan.

surface du mica. Ce pourcentage a été mesuré par K.G. Libbrecht et collaborateurs [Libbrecht 1980]. Pour des énergies inférieures à 10 eV, environ 90% des atomes pulvérisés d'une cible d'uranium métallique s'adsorbent sur la surface du mica, et pour des grandes énergies, le taux de collage est alors presque de 100%. Le fait d'utiliser une cible de dioxyde d'uranium, et non pas une cible d'uranium métallique, peut induire un changement dans le taux de collage. En effet, dans le cas de  $\text{UO}_2$ , les atomes d'uranium sont liés à un ou plusieurs atomes d'oxygène. Une expérience concernant la probabilité de collage a donc été réalisée au Laboratoire Pierre Süe [Duraud 1996] en irradiant un monocristal de  $\text{UO}_2$  avec le faisceau de la microsonde nucléaire. Au vu des résultats de cette expérience, il semble que les liaisons entre les atomes d'uranium et d'oxygène n'affectent en rien le taux de collage puisqu'il est proche de 100%.

- Le nombre d'atomes d'uranium pulvérisés est mesurée avec la méthode des traces de fission. Or, les caractéristiques des traces de fission dans le mica sont bien connues. En effet, en 1959 Silk & Barnes [Silk 1959] ont observé pour la première fois, à l'aide d'un microscope électronique à transmission, des traces de fission dans le mica. Ensuite, dans les années soixante, la collaboration de trois scientifiques de General Electric Laboratory, R.L. Fleischer, P.B. Price et R.M. Walker [Fleischer 1965], a énormément contribué au développement de la méthode de détection par les traces de fission.

## II - Dispositif d'irradiation aux ions lourds

### II.1 - Production des ions projectiles

Les irradiations ayant été effectuées au GANIL, nous décrivons donc brièvement le fonctionnement de cet accélérateur, et plus précisément la ligne Moyenne Energie.

#### II.1.1 - Le GANIL

Le GANIL est représenté sur la figure 2. Les faisceaux d'ions multichargés sont produits dans les injecteurs C01 ou C02, équipés de sources ECR (Electron Cyclotron Resonance). Ils sont injectés dans le premier Cyclotron à Secteurs Séparés CSS1, qui accélère les ions à une énergie de l'ordre de 10 MeV/uma. Un épilucheur d'épaisseur adéquate permet d'augmenter la charge des ions,  $Q$ , d'un facteur 2,5. L'un des états de charge est dirigé vers le second cyclotron et un autre état de charge vers la salle D1 (Sortie Moyenne Energie). Les

ions accélérés par le deuxième Cyclotron à Secteurs Séparés CSS2 ont à la sortie une énergie de l'ordre du GeV. Le faisceau est alors analysé dans le spectromètre  $\alpha$  de haute résolution puis dirigé vers les différentes salles d'expériences.

Par ce dispositif, le GANIL produit des faisceaux d'ions allant du carbone à l'uranium, d'énergie pouvant atteindre 90 MeV/uma pour le carbone et 24 MeV/uma pour l'uranium. Les flux varient entre  $10^5$  et  $10^{13}$  ions.s<sup>-1</sup>.cm<sup>-2</sup>.

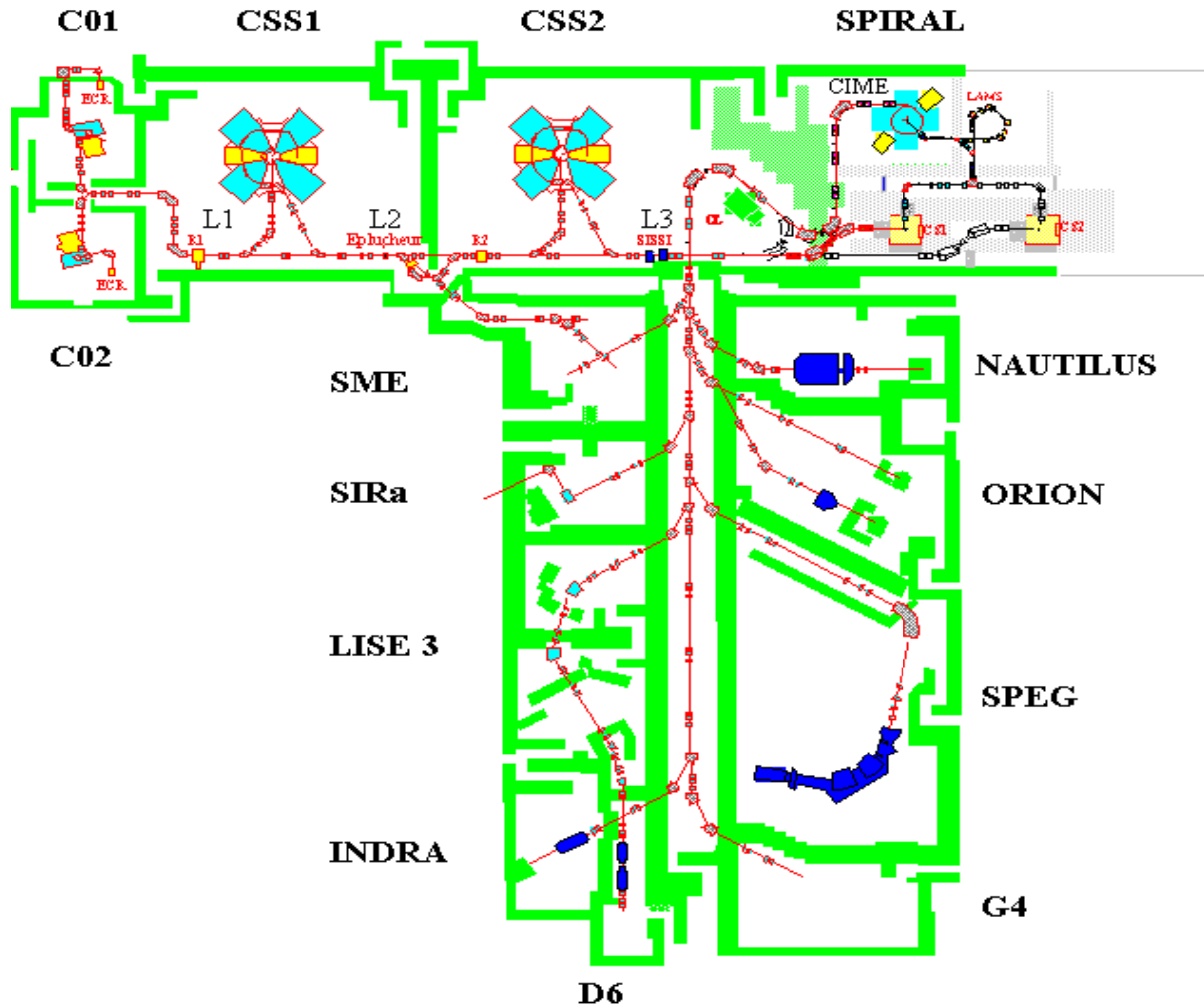


figure 2 : le GANIL

## II.1.2 - Aire expérimentale D1

La salle D1, dans laquelle nous avons travaillé (figure 3), est constituée de trois lignes d'irradiation. Deux d'entre elles utilisent le faisceau d'ions de Moyenne Energie qui sort de CSS1. Il s'agit de la ligne IraSME (Irradiation en Sortie Moyenne Energie) destinée aux expériences de matière condensée et de la ligne de physique atomique. La troisième ligne

est issue du spectromètre  $\alpha$  qui délivre des ions de haute énergie. Un dispositif IraBaT (Irradiation à Basse Température) permet également de réaliser des expériences à basse température (jusqu'à 4 K). L'ensemble des irradiations présentées dans la suite a été réalisé avec IraSME.

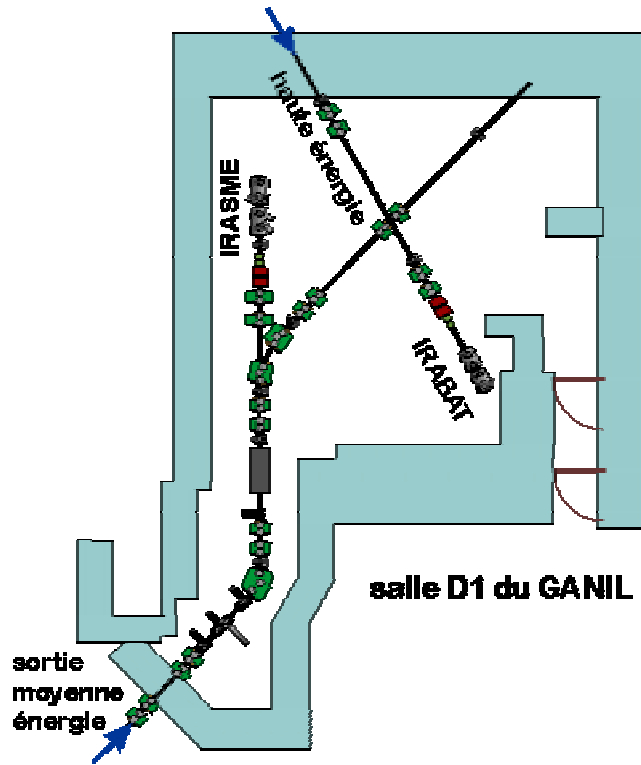


figure 3 : salle D1 du GANIL

## II.2 - Chambre d'irradiation

Afin de réaliser les expériences de pulvérisation, le dispositif est placé à la sortie de la ligne Moyenne Energie du GANIL. La figure 4 présente une vue de notre montage, dans le cas où le porte-cible est incliné par rapport au faisceau d'ions projectiles.

Le faisceau d'ions lourds provenant de la SME est collimaté par une succession de diaphragmes, dont le dernier a un diamètre de 1 mm, et vient finalement frapper la cible de  $UO_2$ . En regard de la cible, sont placés les collecteurs en mica sur lesquels les espèces pulvérisées sont adsorbées. Notons enfin que le vide à l'intérieur de la chambre d'expérience est d'environ  $10^{-6}$  mbar.

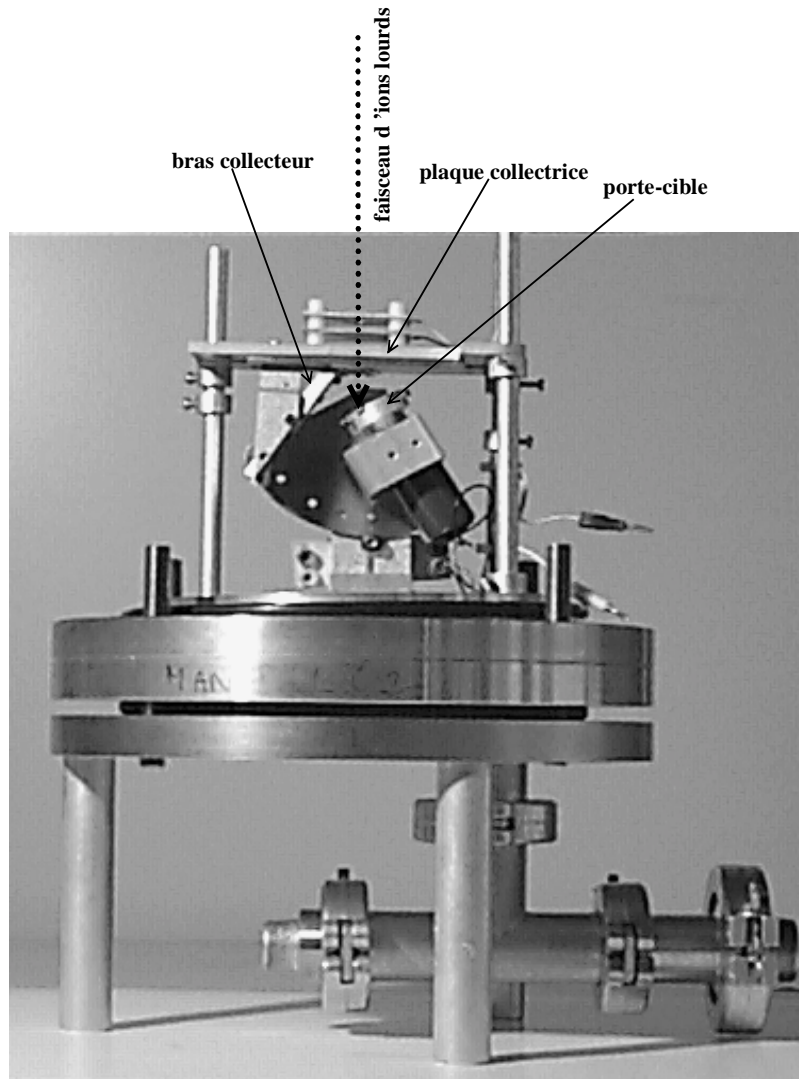


figure 4 : la chambre d'irradiation

Lors des irradiations, il est nécessaire de connaître le nombre total d'ions arrivant sur la cible de  $\text{UO}_2$ . Ce nombre est mesuré à l'aide des éléments constituant la ligne IraSME, représentée sur la figure 5. Le faisceau d'ions projectiles, sorti de CSS1, passe par des *dipôles de balayage* permettant d'irradier de façon homogène la surface de la cible. Le rôle des *steerers* est le centrage du balayage en un point choisi. La taille de la surface à irradier est définie grâce aux *fentes* et le profil de l'intensité du faisceau est analysé par une *sonde de profils*, constituée de deux réseaux perpendiculaires de fils conducteurs. Les trois feuilles métalliques ( $0,8 \mu\text{m}$  de Al/ $1 \mu\text{m}$  de Ti/ $0,8 \mu\text{m}$  de Al) formant le *détecteur plein* (*détecteur à électrons secondaires*) permettent la mesure du flux d'ions pendant l'irradiation. Le nombre total d'ions lourds incidents est obtenu, soit en mesurant directement l'intensité du faisceau sur le diaphragme, soit en utilisant le détecteur plein. La *cage de Faraday*, escamotable, est mise en place pendant le réglage du faisceau afin de mesurer le flux d'ions incidents. Elle

nous permet de calibrer les diaphragmes ou le détecteur plein. Ce dispositif permet de mesurer le flux d'ions incidents et, connaissant la surface irradiée, d'en déduire le nombre total d'ions reçus par la cible.

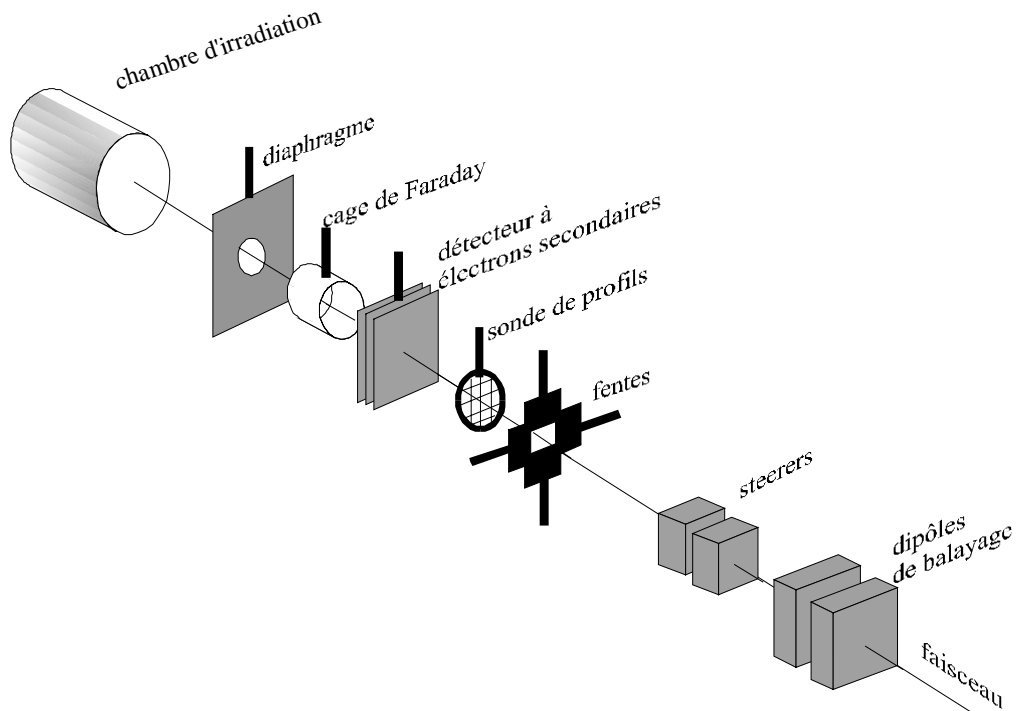


figure 5 : éléments constitutifs IraSME

Nous allons maintenant nous intéresser aux composantes de la chambre d'irradiation : le porte-cible et les collecteurs (figure 6).

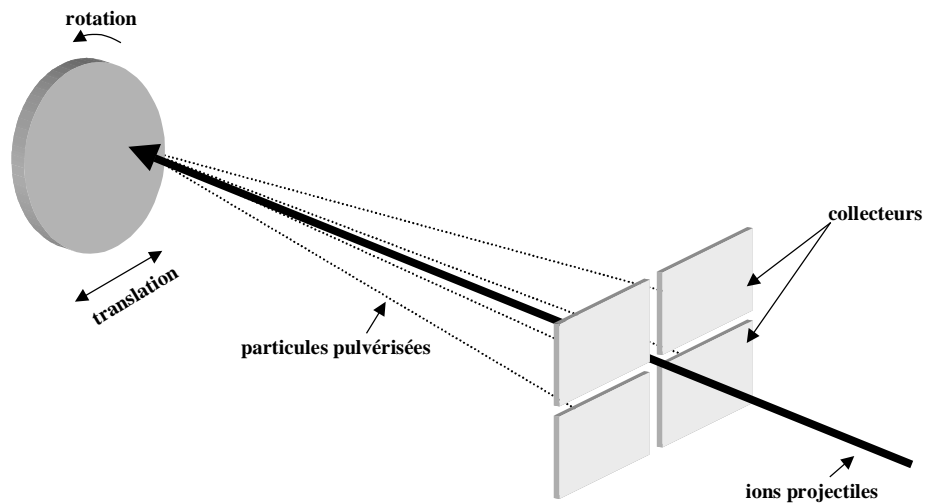


figure 6 : schéma synoptique du dispositif expérimental

## II.2.1 - Le porte-cible

Le porte-cible est animé de trois mouvements différents. En effet, il peut tourner sur lui-même, se déplacer latéralement et être incliné par rapport au faisceau d'ions projectiles (figure 6).

### a) La rotation et le déplacement du porte-cible

Afin d'étudier la pulvérisation de  $\text{UO}_2$  vierge et non celle d'un oxyde d'uranium endommagé, il est important de ne pas dépasser la fluence correspondant au seuil de recouvrement des traces, soit une fluence de l'ordre de  $10^{12}$  ions par  $\text{cm}^2$ . Pour cela, la pastille de  $\text{UO}_2$  est placée dans le porte-cible qui tourne à une vitesse d'environ 1000 tours/minute. A la rotation de la pastille de  $\text{UO}_2$ , s'ajoute un déplacement latéral et longitudinal par rapport au faisceau d'ions projectiles. En effet, dès que le recouvrement de traces est atteint sur la couronne irradiée, le faisceau d'ions projectiles est déplacé sur une zone vierge de toute irradiation sur la cible de  $\text{UO}_2$ . Nous avons en effet constaté, au cours de deux expériences, que le fait de laisser le faisceau d'ions lourds fixe sur la cible provoque une baisse significative des rendements de pulvérisation pour des fluences proches du recouvrement des traces.

Nous avons ainsi comparé « l'efficacité » de pulvérisation, pour des ions lourds projectiles  $^{238}\text{U}^{55+}$ , dans le cas où le taux de recouvrement des traces dans la zone de  $\text{UO}_2$  irradiée est d'environ 80% et lorsque le recouvrement est total ; nous constatons alors une baisse significative du rendement de pulvérisation d'environ 35%. Ce fait est également confirmé pour des ions projectiles  $^{116}\text{Sn}^{36+}$  de plus faible perte d'énergie. Ainsi, pour éviter la modification de la surface à pulvériser, due au recouvrement des traces, nous avons opté pour un dispositif tournant du porte-cible. Le faisceau d'ions lourds incidents décrit alors une couronne sur la cible. La largeur de cette couronne correspond à la largeur du faisceau d'ions projectiles (1 mm de diamètre).



### b) L'inclinaison du porte-cible

Le porte-cible peut également être incliné par rapport au faisceau d'ions projectiles. On

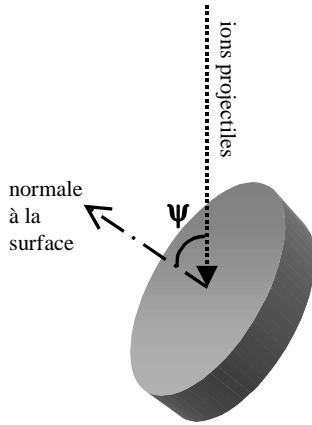


figure 7 : définition de l'angle  $\psi$ , directement lié à la cible de  $UO_2$

peut ainsi obtenir les distributions angulaires des atomes d'uranium pulvérisés pour différentes inclinaisons de la cible. Comme le montre la figure 7,  $\psi$  représente l'angle entre le faisceau incident et la normale à la surface de dioxyde d'uranium. Grâce à ce dispositif, nous avons obtenu les distributions angulaires des atomes d'uranium pulvérisés pour différentes inclinaisons de la pastille : pour  $\psi=0^\circ$  (la pastille est perpendiculaire au faisceau d'ions projectiles), pour  $\psi=45^\circ$  et  $\psi=60^\circ$ .

### II.2.2 - Les collecteurs

Les atomes d'uranium pulvérisés sont collectés sur des micas placés sur un dispositif (plaque+bras) situé en face de la pastille de  $UO_2$ . La partie collectrice est composée d'une

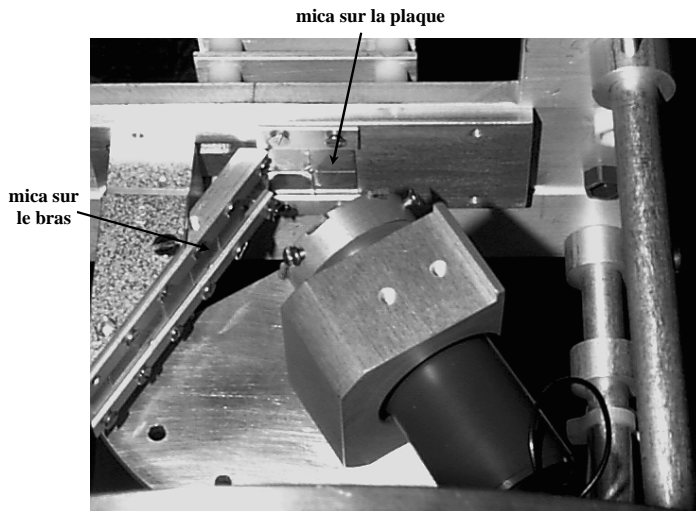


figure 8 : dispositif pour les collecteurs

plaque percée au milieu d'un trou d'1 mm de diamètre afin de laisser passer le faisceau projectile et d'un bras incliné d'un angle de  $120^\circ$  par rapport à la plaque (figure 8). Sur la plaque, il y a toujours quatre micas se trouvant de part et d'autre du diaphragme d'1 mm de diamètre. En ce qui concerne les micas disposés sur le bras,

leur nombre est variable suivant l'inclinaison de la pastille : deux pour  $\psi=0^\circ$  et six pour  $\psi=60^\circ$ . Les atomes d'uranium pulvérisés et collectés sur les micas disposés sur le bras ont une probabilité de collage plus importante, puisqu'ils sont adsorbés en incidence rasante sur les collecteurs.

## III - Analyse des collecteurs par la méthode des traces de fission

Cette méthode des traces de fission est utilisée dans différents domaines : en physique nucléaire (pour l'étude des réactions de fission et de spallation, la mesure des temps de vie des particules instables), en biologie (pour mesurer par exemple la distribution spatiale du plomb dans les dents...), en astrophysique (pour mesurer la composition et le spectre en énergie des rayonnements cosmiques) [Fleischer 1975], en géophysique (datation des roches ou des inclusions vitreuses contenues dans le quartz volcanique) [Vincent 1984] ou encore dans le domaine de la microfiltration [Shi-Jün 1988].

La révélation du nombre d'atomes d'uranium pulvérisés sur les collecteurs se décompose en trois étapes. La première étape consiste à irradier aux neutrons thermiques les micas collecteurs afin de faire fissionner une partie des atomes d'uranium 235 pulvérisés à partir de la cible de  $\text{UO}_2$ . La seconde étape consiste donc à révéler chimiquement les traces de fission. Après l'irradiation aux neutrons thermiques, les micas sont en effet attaqués par de l'acide fluorhydrique. L'attaque chimique est la méthode la plus utilisée pour fixer et élargir les dommages créés dans un matériau. La dernière étape est l'observation des traces de fission par microscopie.

### III.1 - L'irradiation aux neutrons thermiques

Les noyaux lourds ont une probabilité importante de fissionner lorsqu'ils sont excités. Aussi, l'uranium 238 peut fissionner par interaction avec un neutron rapide, tandis que l'uranium 235 a une grande probabilité de fission par capture d'un neutron thermique. Les sections efficaces de fission sont donc très différentes pour l'uranium 235 et 238.

La réaction la plus probable pour la fission d'un noyau d'uranium 235 est la suivante :  ${}^1_0\text{n} + {}^{235}_{92}\text{U} \rightarrow {}^{A_1}_{Z_1}\text{X}_1 + {}^{A_2}_{Z_2}\text{X}_2 + \nu {}^1_0\text{n} + E$ . En moyenne, chaque fission produit  $\nu=2,5$  à 3 neutrons rapides et l'énergie totale  $E$  dissipée lors de chaque fission est de l'ordre de 200 MeV. La fission d'un atome d'uranium 235 crée deux fragments de fission  ${}^{A_1}_{Z_1}\text{X}_1$  et  ${}^{A_2}_{Z_2}\text{X}_2$ . Bien qu'on ait déjà observé une fission « ternaire » pour  ${}^{235}\text{U}^{92}$ , la probabilité d'obtenir un troisième fragment est très faible (1 fission « ternaire » pour 10000 fissions « binaires »).

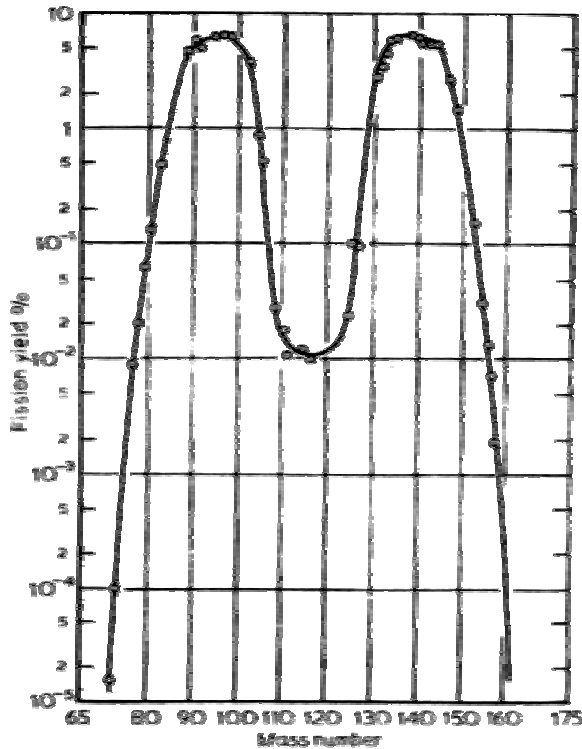


figure 9 : courbe de rendement de la fission provoquée de l'uranium 235

Pour des neutrons thermiques, la distribution en masse des fragments de fission produits est asymétrique (courbe en « dos de chameau »).

La figure 9 donne en pourcentage du nombre total de fissions, la fréquence de production des fragments pour <sup>235</sup>U. Les fragments de fission ont des masses allant de A=72 à A=162. Généralement la division du noyau fissile est asymétrique : la grande majorité des fragments de fission (≈ 97%) est formée d'un fragment léger et d'un fragment lourd présentant deux pics autour de A=96 et A=137.

Le tableau 1 indique les principales caractéristiques des deux fragments de fission.

	Fragment de fission	
	Léger	Lourd
Nombre de masse, A	≈100	≈140
Numéro atomique, Z	≈40	≈60
Energie primaire (en MeV)	≈100	≈70
Vitesse (en cm/s)	1,4×10 <sup>9</sup>	1×10 <sup>9</sup>

tableau 1 : caractéristiques essentielles des fragments de fission

Ces deux fragments de fission sont émis quasiment à 180°, quelle que soit la direction d'émission des particules pulvérisées. Il y en a donc au moins un qui pénètre dans le mica et crée une trace de fission. De nombreuses expériences ont permis d'étudier la révélation ainsi que l'observation de ces traces.

La figure 10 représente l'évolution des diamètres de traces induites par des ions lourds rapides dans du mica [Leroy 1996]. Compte tenu du pouvoir d'arrêt du fragment léger et du

fragment lourd, le diamètre des traces de fission est d'environ 7 nanomètres au début de leur parcours.

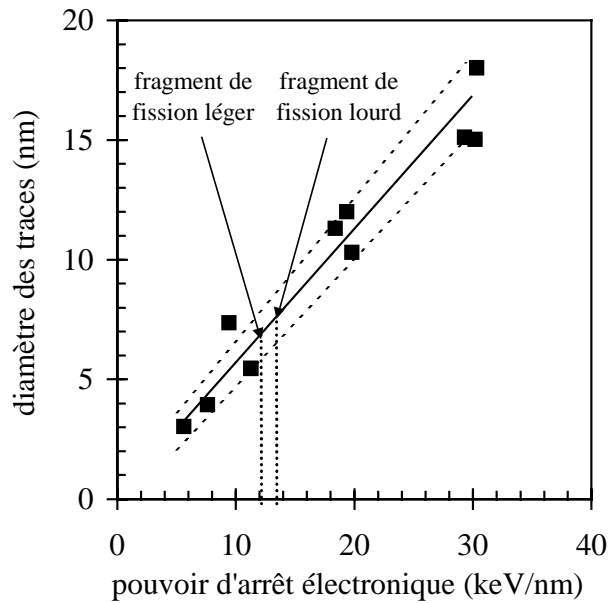


figure 10 : diamètre des traces dans le mica pour chaque fragment de fission  
Résultats AFM mode contact obtenus au CIRIL [Leroy 1996]. Les deux droites en pointillés  
représentent les limites de la zone « ions lourds rapides ».

Le parcours de chaque fragment de fission dans le mica est présenté dans la figure 11. Un seuil apparaît concernant la révélation par attaque chimique des traces induites dans le mica. Les traces ne sont en effet révélables [Fleischer 1964b] que pour des ions ayant un pouvoir d'arrêt électronique supérieur à 3,4 keV/nm. Récemment, une valeur de 4,4 keV/nm a été obtenue pour des ions argons [Dwivedi 1993] et tracée dans la figure 11.

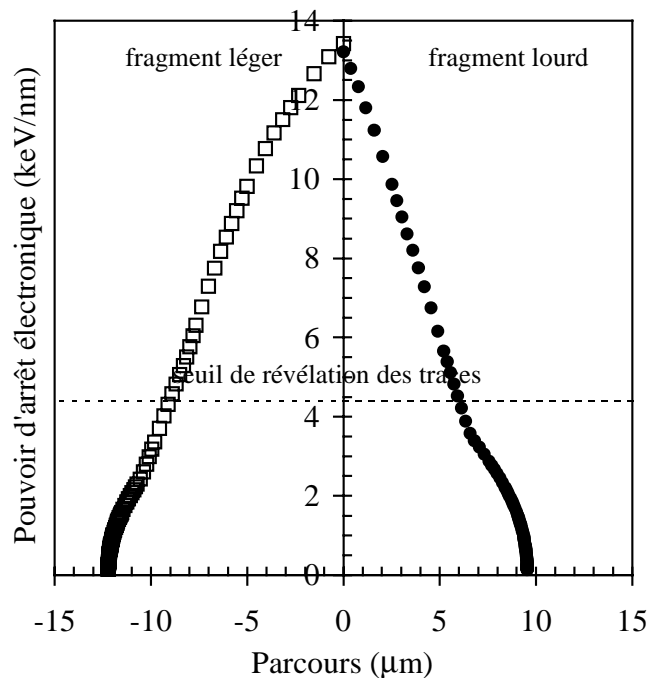


figure 11 : évolution de la perte d'énergie des fragments de fission le long de leurs parcours dans le mica

Nous allons maintenant décrire la méthode nous permettant de déterminer le nombre d'atomes d'uranium 235 pulvérisés de la pastille de  $UO_2$  par les ions lourds et adsorbés sur la surface d'un mica « collecteur ». Cette méthode, déjà utilisée par Gregg &

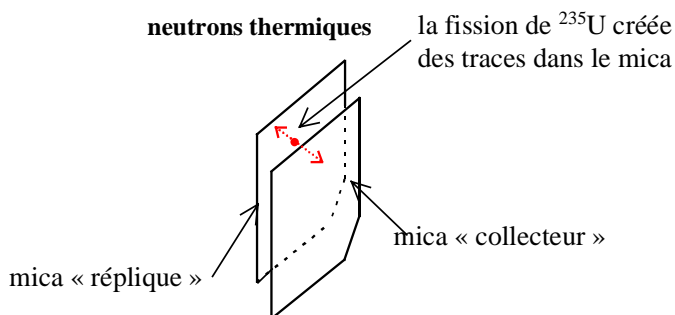


figure 12 : schéma du système mica « collecteur » - mica « réplique »

Tombrello [Gregg 1978], consiste à placer un autre mica vierge, ou mica « réplique », sur la face « collectrice » du mica « collecteur », c'est-à-dire celle contenant les atomes d'uranium 235 pulvérisés. En effet, les deux fragments de fission de l'uranium 235 ont des quantités de mouvement de valeur à peu près égale

et de direction opposée. Ainsi, lors de la fission des atomes d'uranium 235 adsorbés sur le mica « collecteur », l'un des fragments de fission induit une trace dans le mica « collecteur » tandis que l'autre fragment induit une trace dans le mica « réplique » (figure 12). La présence de ce mica « réplique » permet d'obtenir une copie du mica « collecteur » et donne une vérification du nombre d'atomes d'uranium 235 pulvérisés. Nous verrons, à la fin de ce chapitre, que ce mica « réplique » va se révéler d'un grand secours pour connaître l'évolution de la distribution angulaire des atomes d'uranium 235, lorsque la pastille de  $UO_2$  est inclinée par rapport au faisceau d'ions lourds incidents.

Pour l'irradiation aux neutrons, chaque mica « collecteur » est placé dans un emballage d'aluminium. Dans cet emballage, se trouve le mica « collecteur », en face duquel est placé le mica « réplique » fraîchement clivé. De part et d'autre de ces deux micas, nous en plaçons deux autres qui sont eux aussi clivés (figure 13). Leur rôle est de protéger les micas « collecteur » et « réplique » de l'emballage d'aluminium. En effet, l'aluminium contient naturellement de

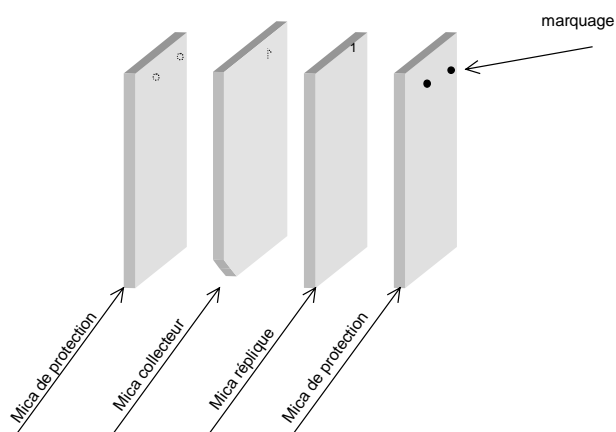


figure 13 : vue éclatée des empilements de mica pour l'irradiation aux neutrons<sup>2</sup>

<sup>2</sup> Le repérage relatif des micas « collecteur » et « réplique » conditionne la précision de la mesure lorsque cette dernière est réalisée avec le mica « réplique ».

l'uranium 235 qui, sans ces deux micas protecteurs, contaminerait les micas « collecteur » et « réplique ».

Les emballages sont ensuite placés dans des navettes pour l'irradiation aux neutrons dans le réacteur ORPHEE, qui produit un flux intense de neutrons thermiques. Les navettes, contenant les emballages devant être soumis au flux neutronique, sont expédiées du Laboratoire Pierre Süe dans un des canaux d'irradiation par une liaison pneumatique.

### III.2 - Détermination de la fluence de neutrons thermiques par activation neutronique

Dans le réacteur ORPHEE, le flux de neutrons peut varier au niveau des canaux d'irradiation. Aussi, la seule mesure du temps d'irradiation n'est pas suffisante pour déterminer la fluence reçue par l'échantillon. Pour mesurer le flux moyen de neutrons, l'analyse par activation neutronique (AAN) est utilisée. L'AAN consiste à mesurer la radioactivité émise par un matériau après l'avoir soumis à une irradiation dans un flux de neutrons (figure 14). Pour cela un élément étalon est bombardé pendant un temps déterminé (court par rapport à la durée de vie du radionucléide formé) avec des neutrons dont on souhaite déterminer le flux moyen. En laboratoire, une expérience de spectroscopie ( $\beta$  ou  $\gamma$ ) permet de calculer le nombre de radionucléides formés. La concentration en élément « étalon », la section efficace d'activation et la durée de vie sont les paramètres nécessaires pour calculer la fluence reçue par cet échantillon « étalon ».

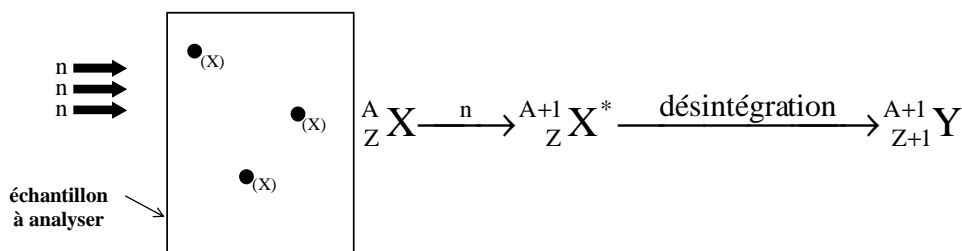


figure 14 : analyse par activation neutronique

L'AAN consiste, dans un premier temps, à bombarder avec des neutrons un élément « étalon », de masse connue, dont on veut déterminer la proportion dans l'échantillon considéré et, dans un deuxième temps, à identifier puis à mesurer les rayonnements (bêta ou gamma) issus des réactions nucléaires provoquées par les neutrons incidents sur les noyaux des atomes cibles pour caractériser les radionucléides formés. Ainsi, l'activation de  $X^*$  conduit à un spectre dont l'étude permet l'identification de  $X$ .

Dans notre cas, les éléments « étalons », appelés **moniteurs de flux**, sont soit de l'or pour les irradiations aux neutrons de courte durée (moins de 10 heures), soit du fer<sup>3</sup> pour les irradiations de plus longue durée. Pour mesurer la fluence de neutrons, un moniteur de flux est placé dans chaque navette contenant un ou plusieurs de nos emballages d'aluminium. Ainsi, après l'irradiation aux neutrons, la radioactivité du moniteur de flux est mesurée ; elle dépend de la formation des radionucléides (l'activation neutronique) et de leur disparition (la décroissance radioactive). Avec l'utilisation de moniteurs de flux de masse connue et la connaissance, d'une part, des paramètres nucléaires et, d'autre part, de la radioactivité induite, nous sommes en mesure de déduire les fluences de neutrons.

### III.3 - L'attaque chimique

Pour résumer ce qui précède, sous l'impact de neutrons thermiques, une fraction des atomes d'uranium 235 adsorbés sur la surface du mica « collecteur » fissionnent. Chaque fission conduit à la formation de deux fragments de fission de sens opposés, l'un dans le mica « collecteur » et l'autre dans le mica « réplique ». Les fragments de fission créent des traces dans le mica, appelées traces de fission. Pour les observer par microscopie optique, nous devons les révéler par attaque chimique.

Le principe de l'attaque chimique repose sur le fait que la région endommagée se dissout plus rapidement que la région où le matériau est vierge. En effet, R.L. Fleischer et collaborateurs [Fleischer 1965] ont découvert que l'attaque chimique d'un matériau exposé à des particules énergétiques permet la révélation, aux endroits endommagés dans le matériau, de traces étroites ressemblant à des trous profonds dont la taille et la forme sont déterminées par :

- la particule qui induit la trace
- le matériau dans lequel la trace est faite
- la technique utilisée pour l'attaque chimique.

L'attaque chimique présente deux avantages pour l'observation des traces. D'une part, les traces révélées chimiquement sont permanentes et ne disparaissent pas par recuit thermique ou lors de l'observation par microscopie électronique. Les observations peuvent donc être faites à tout moment. D'autre part, l'attaque chimique permet d'agrandir les traces. En effet,

---

<sup>3</sup> Nous utilisons du fer pour les longues irradiations car le fer s'active peu et a une faible section efficace, l'or, au contraire s'activant très bien est idéal pour les irradiations courtes.

Price & Walker [Price 1962] ont mis en évidence qu'une attaque de plus longue durée induisait une augmentation du diamètre des traces qui deviennent alors visibles au microscope optique.

Suivant les matériaux utilisés comme détecteurs de traces, les produits et les temps d'attaque sont différents. Une liste non exhaustive de « recettes » d'attaque chimique est donnée dans l'ouvrage de R.L. Fleischer et collaborateurs [Fleischer 1975]. Ainsi, pour révéler les traces de fragments de fission dans le mica, nous avons utilisé de l'acide fluorhydrique à 48%, à température ambiante.

La géométrie de l'attaque chimique d'une trace est présentée dans la figure 15. Les formes des traces attaquées chimiquement proviennent de l'attaque simultanée du matériau non endommagé et de celle du matériau endommagé.

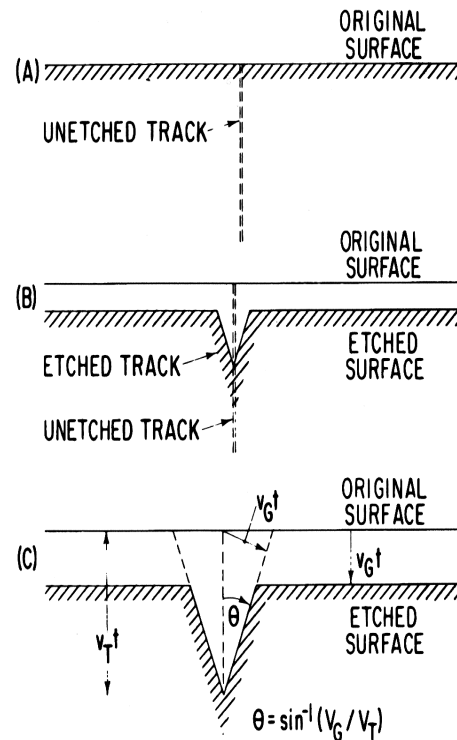


figure 15 : géométrie du processus d'attaque chimique [Fleischer 1998] pour une trace (A) (B) et (C) présentent les effets progressifs de l'attaque chimique.

$V_T$  représente la vitesse d'attaque le long de la trace et  $V_G$  la vitesse d'attaque du matériau non endommagé (figure 15 (C)). Plus la vitesse  $V_T$  est grande, plus la trace est longue et acuminée. La trace attaquée chimiquement présente une forme conique. L'ouverture du cône est déterminée par l'angle  $\theta$ , défini comme étant le rapport des deux vitesses d'attaque et

correspondant à  $\arcsin\left(\frac{V_G}{V_T}\right)$ .



Les traces, révélées par attaque chimique, dont l'angle d'incidence par rapport à la surface est inférieur à  $\theta$ , ne peuvent pas être observées par microscopie [Fleischer 1963, Fleischer 1964a]. Ce phénomène est expliqué dans la figure 16.

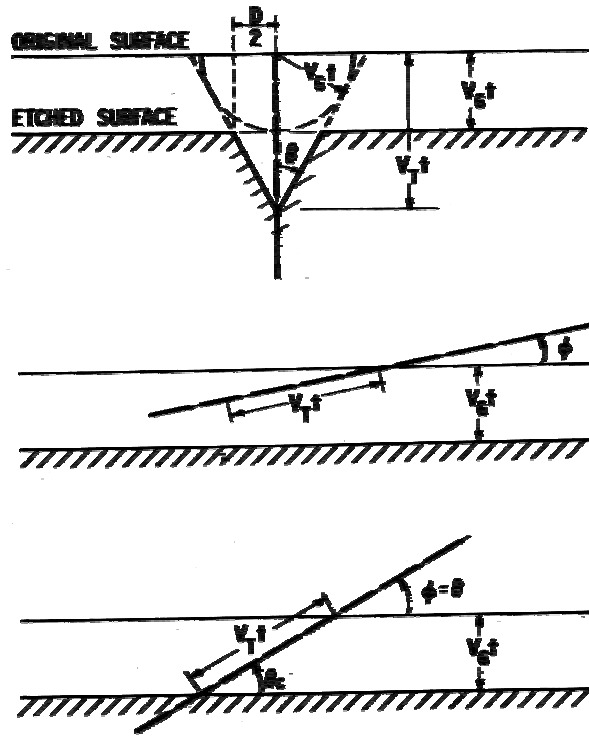


figure 16 : géométrie d'une trace attaquée chimiquement [Fleischer 1975]

a) la forme de la trace est déterminée par  $V_G$ , la vitesse d'attaque du matériau vierge et  $V_T$ , la vitesse d'attaque le long de la trace

b) pour un angle d'incidence inférieur à  $\arcsin \frac{V_G}{V_T}$ , aucune trace n'est observée

c)  $\arcsin \frac{V_G}{V_T}$  représente l'angle critique  $\theta_c$

L'angle  $\theta$  dépend de  $V_G$ , la vitesse d'attaque chimique du matériau vierge et de  $V_T$ , la vitesse d'attaque chimique le long de la trace. Pour une trace, si la composante normale de  $V_T$ , correspondant à  $V_T \times \sin \phi$ , est inférieure à  $V_G$ , alors cette trace ne peut être observée. En effet, les traces contenues dans l'épaisseur  $V_G \times t$  disparaissent lors de l'attaque chimique, comme il est illustré dans la figure 16b. Un angle critique,  $\theta_c$ , est défini (figure 16c) : lorsque  $\theta > \theta_c$ , les traces révélées chimiquement peuvent être observées, et lorsque  $\theta < \theta_c$ , les traces révélées chimiquement disparaissent lors de l'attaque chimique. R.L. Fleischer et collaborateurs [Fleischer 1975] définissent une grandeur,  $\eta$ , représentant l'efficacité d'attaque, lorsque  $\theta$  est différent de zéro.  $\eta$  correspond au rapport :

$\frac{\text{nombre de traces révélées chimiquement observables}}{\text{nombre de traces totales avant révélation chimique}}$ . L'efficacité d'attaque chimique

s'exprime également par la relation suivante :  $1 - \sin\theta$ .

Dans le cas du mica attaqué par de l'acide fluorhydrique, l'efficacité d'attaque est proche de 1, c'est-à-dire qu'aucune trace ne disparaît à la suite de l'attaque chimique. En effet, la vitesse d'attaque chimique,  $V_G$ , du mica est anisotrope, donc l'expression pour  $\theta$  s'écrit dans

ce cas là,  $\arcsin \frac{V_{GN}}{V_T}$ ,  $V_{GN}$  représentant la composante normale de  $V_G$ , c'est-à-dire

perpendiculaire à la surface. Or, dans le cas du mica attaqué par de l'acide fluorhydrique,  $V_{GN}=0$  [Fleischer 1975]. Puisque  $\theta_c \approx 0$  lorsque  $V_{GN} = 0$ , l'efficacité d'attaque chimique est proche de 1. Donc, **quasiment toutes les traces révélées par l'acide fluorhydrique sont observables dans le mica.**

Afin de distinguer les traces de fission des autres types d'endommagement, il est nécessaire de se baser sur les propriétés connues des traces de fission. Les traces de fission sont des défauts en forme d'aiguille, rectilignes, orientées aléatoirement (les dislocations présentent une orientation préférentielle), ayant des longueurs limitées et ne disparaissant pas par recuit thermique (ce qui n'est pas le cas des dislocations). Ces caractéristiques sont valables quel

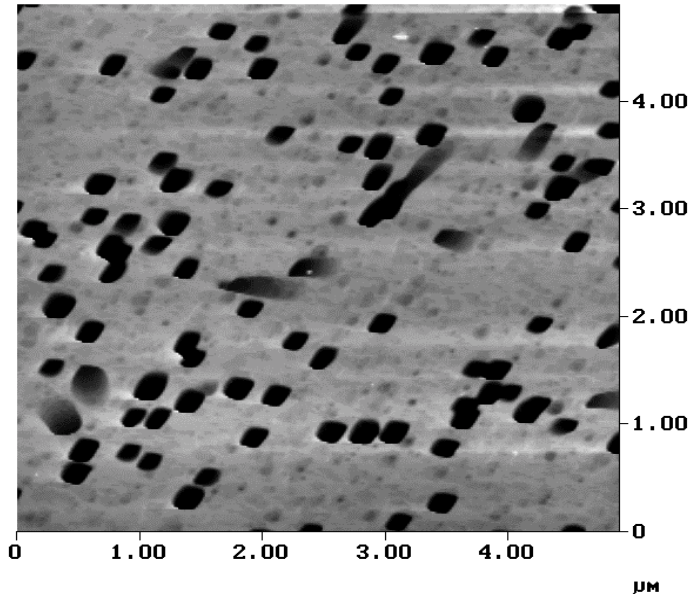


figure 17 : observation par AFM, en Tapping Mode, de traces de fission attaquées par de l'acide fluorhydrique (HF) dans le mica

que soit le matériau dans lequel les traces de fission sont observées. En outre, le mica présente une anisotropie de l'attaque chimique induite par son anisotropie cristalline. Le caractère directionnel de l'attaque chimique est mis en évidence par les trous de formes rhomboédriques observés par microscopie à force atomique (AFM) (figure 17).

Selon la technique de microscopie utilisée pour l'observation des traces de fission, les durées d'attaque chimique sont totalement différentes. Avec la microscopie à force atomique, la durée de l'attaque doit être courte : 1 minute dans de l'acide fluorhydrique à 48%, à température ambiante. Si l'on dépasse ce temps d'attaque chimique, l'observation par AFM se révèle très difficile. Pour une observation en microscopie optique, la durée de révélation chimique est de 20 à 30 minutes selon la concentration de HF. Ensuite, le mica (« collecteur » ou « réplique ») attaqué est rincé à l'eau distillée. Il est à noter que, plus le temps d'attaque chimique est long, plus le temps et la fréquence de rinçage doivent être élevés. Le rinçage est très important car l'acide fluorhydrique est un acide extrêmement corrosif ; un mauvais rinçage peut entraîner une attaque chimique de la platine du microscope lors de l'observation... D'autre part, lorsque le rinçage n'est pas fait soigneusement, les traces observées sont nettement moins bien contrastées<sup>4</sup>. En général, pour trente minutes d'attaque chimique avec HF à 48%, le rinçage dure environ deux heures.

### III.4 - Observation et comptage des traces de fission

Un comptage « facile » des traces de fission nécessite un nombre adéquat de traces révélées et une attaque chimique suffisante. La figure 18 est un exemple du résultat obtenu pour un temps d'attaque chimique trop court. Le comptage, qui est déjà en temps normal une activité laborieuse, se révèle dans ce cas être pénible...surtout lorsqu'il se fait manuellement.



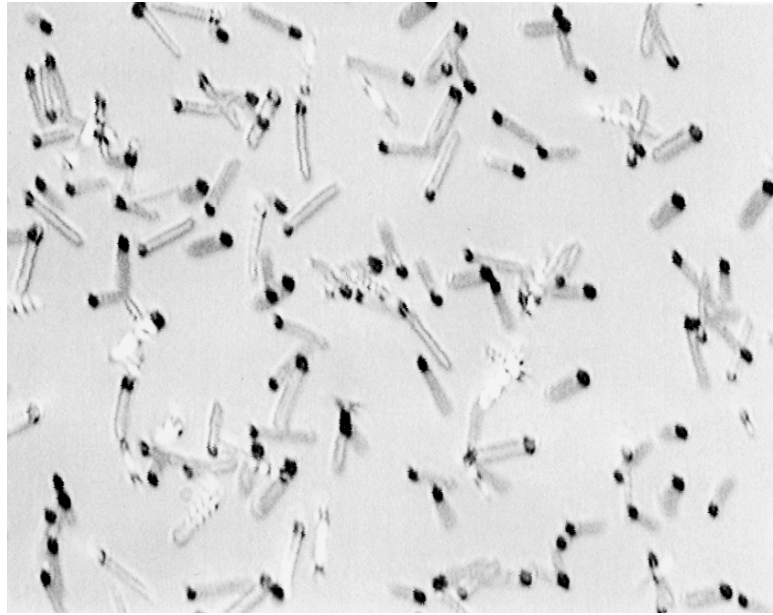
figure 18 : traces de fission mal révélées dans le mica (microscopie optique)

---

<sup>4</sup> Une astuce pour savoir s'il reste encore du HF dans le mica : vous déposez le mica rincé sur une lame de verre et pour le faire sécher vous le placez dans un four à une température d'environ 60°C pendant 2 à 3 minutes. Si, quand vous le retirez du four, vous observez une trace blanche sur la lame de verre tout autour du mica, c'est la preuve que votre mica n'est pas bien rincé, il faut donc recommencer le rinçage !

En fait, lorsque les traces ont bien été révélées, la taille et le contraste de la trace rendent le comptage plus aisé (figure 19). Ces détails expérimentaux sont particulièrement importants pour faciliter le travail de comptage.

Les traces de fission ont été observées au microscope optique en mode réflexion. Ce mode



*figure 19 : traces de fission bien révélées dans le mica, observées par microscopie optique (139  $\mu\text{m}$  $\times$ 106  $\mu\text{m}$ )*

nous permet de visualiser uniquement les traces débouchant à la surface, les points noirs sur la figure 19. En effet, nous ne tenons compte que des traces de fission induites par les atomes d'uranium 235 adsorbés à la surface du mica, car, comme nous le verrons dans le prochain paragraphe, le mica contient naturellement de l'uranium (235 et 238) induisant un « bruit de fond ».

## IV - Détermination des distributions angulaires

### IV.1 - Mesure des angles d'émission des particules pulvérisées

Grâce au dispositif présenté à la figure 4, nous avons obtenu l'évolution du nombre d'atomes d'uranium pulvérisés de la cible de  $\text{UO}_2$  en fonction de leur position sur les micas, c'est-à-dire en fonction de leur angle d'éjection par rapport à la normale à la cible. Afin de décrire l'évolution angulaire des atomes d'uranium pulvérisés, deux angles ont dû être définis :  $\theta$  et  $\varphi$ . Considérant un point M sur un des micas collecteurs, il peut être caractérisé dans un repère cartésien par son abscisse x et son ordonnée z. Dans un repère sphérique, il peut être repéré par les angles  $\theta$  et  $\varphi$ , représentés sur la figure 20.

- $\theta$  : représente l'angle entre la normale à la surface de la cible et la projection du point M (noté  $M'$ ) sur le mica collecteur dans le plan (OXY).
- $\varphi$  : représente l'angle entre la normale à la surface de la cible et la projection du point M (noté  $M''$ ) sur le mica collecteur dans le plan (OYZ).

Les expressions littérales de  $\theta$  et  $\varphi$  sont données dans l'annexe 1.

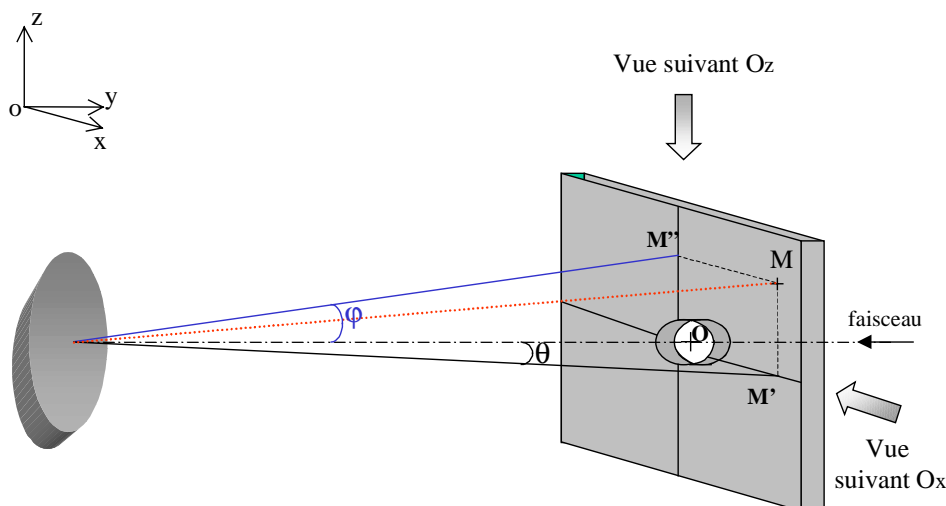


figure 20 : définition des angles  $\theta$  et  $\varphi$

Lorsque la cible de dioxyde d'uranium est perpendiculaire au faisceau d'ions lourds projectiles ( $\psi=0^\circ$ ), les courbes d'isodensité de traces correspondent à des cercles centrés en O (le centre du diaphragme de la plaque collectrice) et de rayon OM. Par conséquent, la grandeur importante est la distance au centre du faisceau d'ions projectiles, soit  $\sqrt{x^2 + z^2}$ .

Lorsque, dans le repère cartésien,  $x$  est égale à une constante  $K$  et que  $z$  varie, cette configuration correspond, dans le repère sphérique, au cas où  $\theta$  reste constant et  $\varphi$  varie. Lorsque, dans le repère cartésien,  $z = K$  et  $x$  varie, cette configuration correspond, dans le repère sphérique, au cas où  $\varphi$  reste constant et  $\theta$  varie. Si la cible de dioxyde d'uranium est inclinée par rapport au faisceau d'ions lourds projectiles ( $\psi=45^\circ$  ou  $60^\circ$ ), la symétrie de rotation n'est plus respectée. En effet, les distributions angulaires pour  $\theta$  variable et  $\varphi$  constant et celle pour  $\varphi$  variable et  $\theta$  constant ne sont pas identiques.

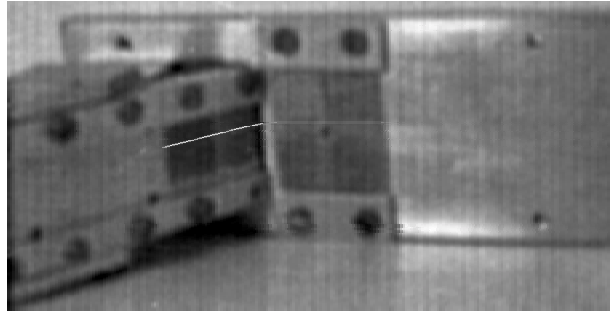


figure 21 : les micas « collecteurs », de dimensions 10 mm×8 mm, sont placés sur la plaque et le bras dans la chambre d'irradiation  
Les traits représentent le déplacement suivant  $x$  en gardant  $z$  constant afin d'obtenir une distribution angulaire en  $\theta$ .

Après révélation des traces de fission par attaque chimique avec du HF à 48%, à température ambiante, et rinçage, viennent les séances photos. Pour réaliser une courbe de distribution angulaire en  $\theta$ , nous observons le mica par microscopie optique en nous déplaçant suivant  $x$  en gardant  $z$  constant (figure 21). Ainsi, nous obtenons une distribution angulaire en fonction de l'angle  $\theta$  avec  $\varphi$  quasi-constant. Sur chaque mica, nous nous déplaçons par pas de 0,5 mm, ce qui représente pour un mica entier environ une quinzaine de photographies.

## IV.2 - Détermination du nombre d'atomes d'uranium pulvérisés

Pour chaque photographie, le nombre d'atomes d'uranium 235 pulvérisés par ion incident et par stéradian est déduit du nombre de traces de fission comptées par  $\text{cm}^2$ ,  $N_t$ , par la relation :

$$N_{U^{235}} = \frac{N_t}{N_n \times \sigma_f \times \Delta\Omega \times N_i}$$

$N_n$  représente la fluence de neutrons (en  $\text{cm}^{-2}$ ),  $\sigma_f = 5,82 \times 10^{-22} \text{ cm}^2$  correspond à la section efficace de fission des neutrons thermiques,  $\Delta\Omega$  à l'angle solide sous lequel on voit du point d'impact du faisceau sur la cible de  $\text{UO}_2$  la dimension de la photographie sur le mica et  $N_i$  est le nombre d'ions lourds projectiles induisant la pulvérisation.

Connaissant le nombre d'atomes d'uranium 235 pulvérisés, nous pouvons, grâce à l'enrichissement de la pastille de  $\text{UO}_2$ , déduire pour chaque angle, le nombre total d'atomes d'uranium pulvérisés par stéradian et par ion incident, par la relation :  $\frac{dY}{d\Omega} = \frac{N_{U^{235}}}{I}$ , où  $I$  est l'enrichissement de la pastille de  $\text{UO}_2$  en uranium 235, c'est-à-dire 3,7%.

Au cours de ce paragraphe, nous avons défini les angles utilisés pour le repérage de chaque endroit des micas collecteurs. Nous allons maintenant montrer comment, à l'aide de ces

angles et de l'observation des micas « collecteurs » ou « répliques », nous déduisons une distribution angulaire des atomes d'uranium pulvérisés.

### IV.3 - Exemple d'une distribution angulaire

La figure 22 présente une distribution angulaire des atomes d'uranium pulvérisés par un faisceau d'ions projectiles de  $^{78}\text{Kr}^{32+}$ , en incidence normale,  $\psi = 0^\circ$ . Cette figure est obtenue en appliquant pour chaque photographie les formules du paragraphe précédent, c'est-à-dire pour chaque angle  $\theta$ .

Pour réaliser cette courbe quatre micas ont été observés, chacun étant représenté par un symbole différent dans la figure 22. Les angles se trouvant dans l'intervalle  $[-40^\circ, +40^\circ]$  correspondent aux points obtenus à partir des photos prises sur les micas situés sur la plaque (Kr 1 et Kr 2). Les angles supérieurs à  $40^\circ$  sont les points obtenus à partir des photos des micas placés sur le bras (Kr 5 et Kr 6).

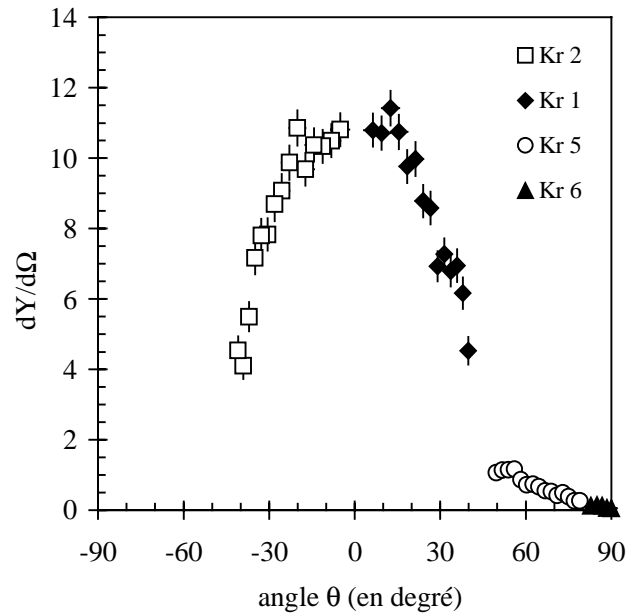


figure 22 : distribution angulaire des atomes d'uranium pulvérisés d'une cible de  $\text{UO}_2$  par des ions lourds projectiles  $^{78}\text{Kr}^{32+}$ , d'énergie 10,8 MeV/uma, en incidence normale

Les conditions d'irradiation aux ions lourds sont présentées dans le tableau 2.

$N_i$	$\psi$	distance $\text{UO}_2$ -mica d (en mm)	distance centre du diaphragme-bras b (en mm)
$1,75 \times 10^{11}$	$0^\circ$	9	10,2

tableau 2 : conditions d'irradiation aux ions lourds

La distance  $\text{UO}_2$ -mica « collecteur » permet, d'une part, le calcul de l'angle solide et, d'autre part, celui des angles  $\theta$  et  $\varphi$ . Pour réaliser ce dernier calcul, dans le cas des micas se trouvant sur le bras, la connaissance de la distance b (centre du diaphragme-bras) est nécessaire (voir annexe 1).

Les flux de neutrons et les temps d'exposition en réacteur sont reportés dans le tableau 3.

Mica	Flux de neutrons (en $\text{cm}^2/\text{s}$ )	Temps en réacteur	Fluence (en $\text{cm}^{-2}$ )
Kr 1 et Kr 2	$1,337 \times 10^{13}$	1h 29min 59s	$7,22 \times 10^{16}$
Kr 5	$1,552 \times 10^{13}$	6h 31min 30s	$3,65 \times 10^{17}$
Kr 6	$2,746 \times 10^{13}$	4h 00min 01s	$3,95 \times 10^{17}$

tableau 3 : conditions pour les flux de neutrons

Les micas se trouvant de part et d'autre de  $0^\circ$  sont soumis à une fluence de neutrons identique (ceci n'est pas vrai pour  $\psi \neq 0^\circ$ ) ; les micas Kr 5 et Kr 6 sont exposés à des fluences plus élevées. En effet, les atomes d'uranium pulvérisés collectés sur les micas du bras (Kr 5 et Kr 6) étant moins nombreux, les fluences de neutrons sont augmentées afin de conserver une bonne statistique de comptage sur ces micas. Nous adaptons donc les fluences en fonction des micas afin d'avoir pour chaque photographie au minimum 100 traces de fission. En dessous de cette limite, la statistique induit une incertitude plus importante sur le comptage. Dans le cas de la distribution présentée dans la figure 22, l'incertitude sur le nombre de traces de fission comptées varie de 3,5% à 18% (pour le mica Kr 6).

Dans le dispositif expérimental de collection de la chambre d'irradiation, il existe deux zones aveugles, comme nous pouvons l'observer sur la distribution angulaire (figure 22).

- L'une de ces zones correspond au diaphragme de la plaque collectrice laissant passer le faisceau d'ions lourds projectiles. Afin de placer les micas de part et d'autre du diaphragme, un de leurs coins est coupé. Cette zone correspond à l'intervalle  $[-5^\circ, +6^\circ]$  sur la distribution angulaire de la figure 22.
- L'autre zone correspond au passage de la plaque collectrice au bras collecteur. En effet, l'assemblage de ces deux pièces ne permet pas de couvrir tous les angles. Cette zone correspond à l'intervalle  $[40^\circ, 50^\circ]$ .

Les angles « aveugles » du dispositif de collection dépendent bien sûr de la distance séparant la cible de  $\text{UO}_2$  des micas « collecteurs », ainsi que de l'inclinaison de la cible. Notons également que l'ouverture du diaphragme (de diamètre 1 mm) induit une incertitude sur la détermination des angles  $\theta$  et  $\varphi$ .



## IV.4 - Fiabilité de la méthode des traces de fission

### IV.4.1 - Comparaison avec l'analyse RBS des collecteurs

La fiabilité de la méthode des traces de fission pour l'analyse des collecteurs a été vérifiée par des mesures faites par Rutherford Backscattering (RBS). La distribution angulaire obtenue à partir d'un collecteur d'aluminium analysé par RBS présente sensiblement la même forme que celle obtenue par la méthode des traces de fission. Le premier problème de l'analyse par RBS réside dans son manque de sensibilité :  $10^{12}$  atomes d'uranium pulvérisés/cm<sup>2</sup> sont détectés par RBS alors que cette sensibilité est 10 fois plus élevée par la méthode des traces de fission. Le second problème de la technique RBS est dû à la dimension du faisceau d'analyse, ne permettant pas une localisation précise des atomes pulvérisés sur le collecteur d'aluminium, entraînant de grandes incertitudes sur la détermination des angles.

La sensibilité de la méthode des traces de fission est limitée par le fait que les micas utilisés contiennent naturellement, en moyenne, 2,5 ppb d'uranium. Le nombre de traces dues à la contamination naturelle du mica en uranium ne dépend que du temps passé en réacteur. Afin de ne pas être gêné par ce « bruit de fond », nous avons fixé à 100 le nombre minimum de traces de fission comptées sur chaque photographie. Si ce nombre est inférieur à 100, et si la probabilité de fission est élevée, le bruit de fond dépasse 1% ; il peut atteindre 30% pour des angles  $\theta$  compris dans l'intervalle  $[80^\circ, 90^\circ]$ . Cette observation souligne l'importance du choix des fluences de neutrons.

### IV.4.2 - Comparaison des micas réplique et collecteur

Afin de s'assurer de la fiabilité de la technique des traces de fission, nous avons également comparé les distributions angulaires obtenues avec les micas « collecteurs » et celles obtenues avec les micas « répliques ».

#### a) En incidence normale ( $\psi=0^\circ$ )

Lorsque  $\psi=0^\circ$ , les distributions angulaires obtenues avec les micas « collecteurs » et « répliques » sont identiques, comme illustré dans la figure 23.

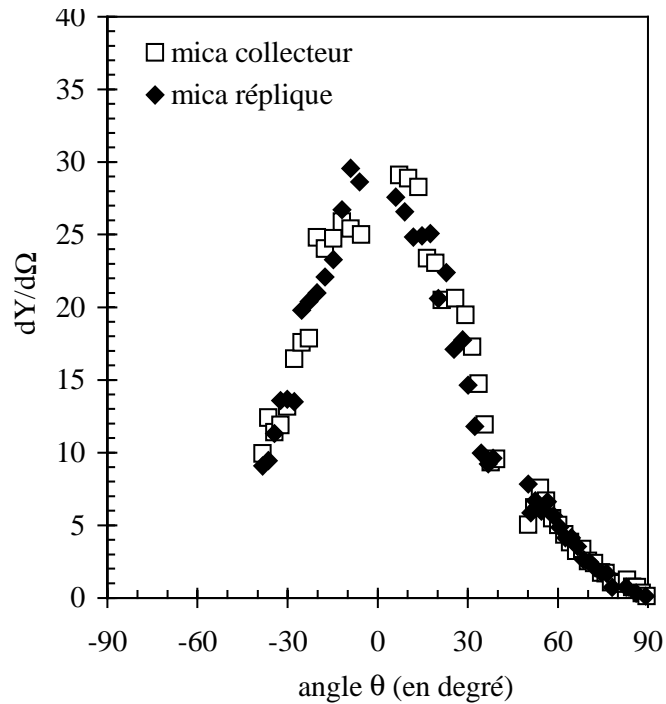


figure 23 : distributions angulaires des atomes d'uranium pulvérisés, d'une cible de  $UO_2$  en incidence normale ( $\psi = 0^\circ$ ) par des ions  $^{129}Xe^{44+}$  d'énergie 7,6 MeV/uma, obtenues avec les micas « répliques » (◆) et les micas « collecteurs » (□)

**b) En incidence oblique ( $\psi \neq 0^\circ$ )**

Lorsque les ions projectiles ont une incidence oblique par rapport à la surface de la cible, à partir d'un certain angle  $\theta$ , après passage en réacteur et révélation chimique, les micas « collecteurs » présentent deux types de traces : des traces de fission (figure 24) dont les directions sont aléatoires et des traces « suspectes » unidirectionnelles (figure 25).

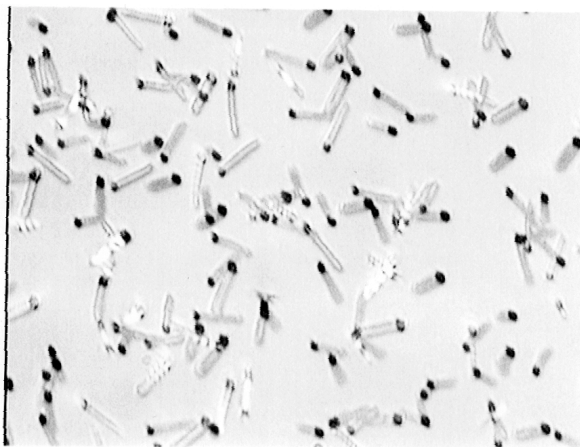


figure 24 : traces de fission révélées chimiquement dans le mica « réplique »

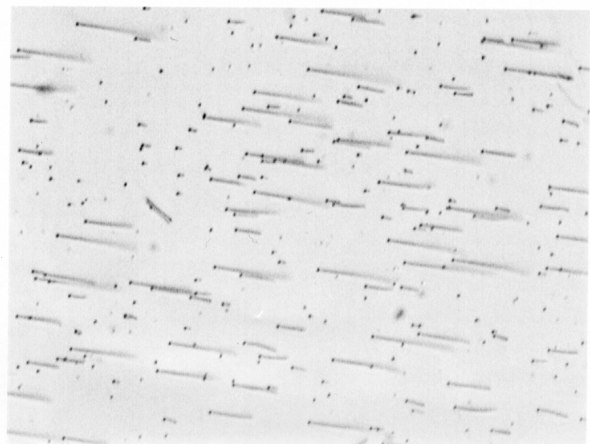


figure 25 : traces « suspectes » révélées chimiquement dans le mica « collecteur »

Les traces parallèles sont observées uniquement en incidence oblique ( $\psi=45^\circ$  ou  $60^\circ$ ) quel que soit l'ion projectile (du  $^{70}\text{Zn}^{27+}$  au  $^{208}\text{Pb}^{53+}$ ). Ainsi, en incidence oblique, à partir d'un certain angle, le mica « réplique » et le mica « collecteur » ne présentent plus les mêmes distributions angulaires des traces (figure 26). Notons la géométrie différente de repérage de l'angle  $\theta$  dans le cas de ce problème.

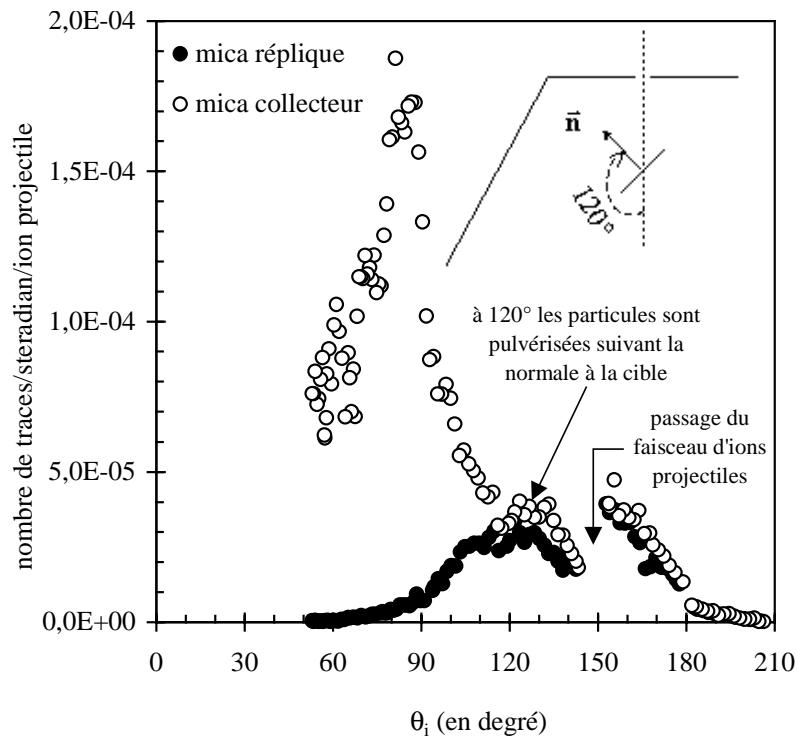


figure 26 : comparaison entre la distribution angulaire obtenue avec les micas « répliques » et celle obtenue avec les micas « collecteurs » lors de l'impact d'ions  $^{129}\text{Xe}^{44+}$  de 7,6 MeV/uma pour  $\psi=60^\circ$

Les traces suspectes révélées chimiquement dans les micas « collecteurs » étant toutes parallèles les unes par rapport aux autres, ne sont pas des traces de fission. La figure 26 montre qu'à partir de  $\theta_i=120^\circ$ , c'est-à-dire à partir de la normale à la cible, les micas « collecteurs » et « répliques » présentent des évolutions différentes du nombre de traces par steradian et par ion projectile en fonction de l'angle  $\theta_i$ . Deux hypothèses peuvent alors être émises sur la provenance de ces traces supplémentaires, celles-ci sont induites soit par :

- la rétrodiffusion des ions lourds projectiles sur la cible d' $\text{UO}_2$
- des atomes de recul d'uranium, provenant de la cible d' $\text{UO}_2$ , suite à des collisions binaires violentes entre ions projectiles et atomes d'uranium (235 ou 238). Ces atomes de recul d'uranium, étant plus énergétiques que les atomes d'uranium pulvérisés électroniquement de la cible de dioxyde d'uranium, pénètrent dans le mica et créent des traces latentes.

A  $\theta_i \approx 80^\circ$ , les traces observées dans le mica « collecteur » sont constituées d'environ 97% de traces parallèles et d'environ 3% de traces de fission (figure 26).

Les traces parallèles sont caractérisées par **l'angle** à partir duquel ces dernières apparaissent, d'une part, et **leurs longueurs**, d'autre part. Ainsi, en utilisant ces deux indices, nous pouvons déterminer le processus (rétrodiffusion des ions projectiles ou recul des atomes d'uranium) étant à l'origine de ces traces.

Dans un premier temps, grâce à un calcul de section efficace en énergie et en angle, nous pouvons déjà dévoiler une partie du mystère. Les évolutions des sections efficaces en énergie, de la rétrodiffusion des ions lourds projectiles et du recul des atomes d'uranium de la cible, sont respectivement présentées dans les figures 28 et 29, en respectant la géométrie suivante (figure 27).

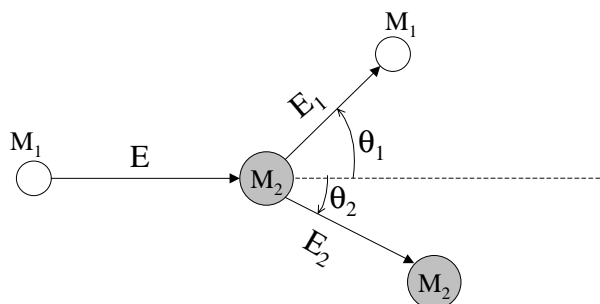


figure 27 : géométrie considérée pour résoudre le problème des traces suspectes  
L'atome projectile de Xe de masse  $M_1$  et d'énergie  $E$  peut soit se diffuser sur l'atome d'uranium de masse  $M_2$  avec une énergie  $E_1$  et un angle  $\theta_1$ , soit produire un atome de recul d'U d'énergie  $E_2$  et d'angle  $\theta_2$

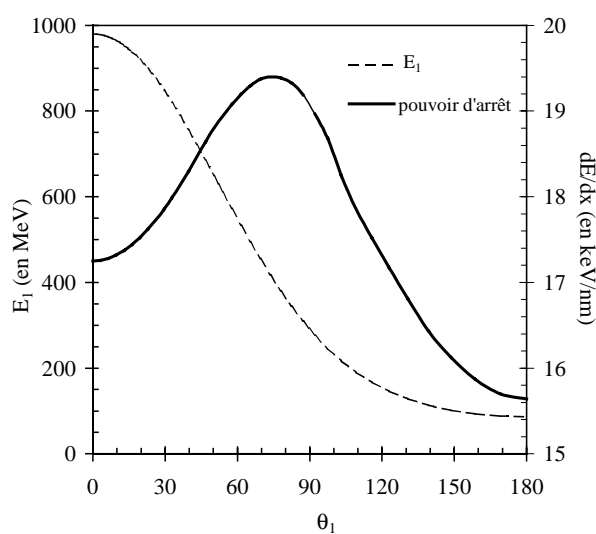


figure 28 : évolution de la section efficace en énergie en fonction de l'angle  $\theta_1$ , dans le cas de la rétrodiffusion des ions  $^{129}\text{Xe}^{44+}$  sur les atomes d'U

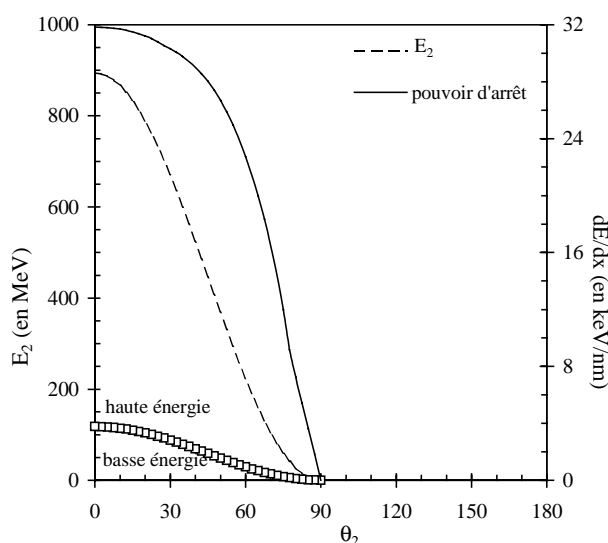


figure 29 : évolution de la section efficace en énergie en fonction de l'angle  $\theta_2$ , dans le cas du recul des atomes d'U de la cible de  $\text{UO}_2$

Les atomes de Xe sont diffusés sur un intervalle d'angle de  $[0^\circ, 180^\circ]$  par rapport au faisceau d'ions projectiles, tandis que les atomes d'uranium sont émis sur un intervalle d'angle variant de  $0^\circ$  à  $90^\circ$ . Dans l'intervalle d'angle  $[60^\circ, 90^\circ]$ , l'énergie des atomes de recul d'uranium varie entre 200 et 0 MeV et celle des atomes de Xe rétrodiffusés entre 550 et 250 MeV. Ainsi, ces évolutions ne nous permettent pas de conclure sur l'origine de ces traces parallèles. La solution du problème réside donc dans le calcul de section efficace en angle, nous donnant ainsi la probabilité qu'un atome de Xe soit diffusé sur un atome d'uranium de la cible d' $\text{UO}_2$  ou qu'un atome d'uranium de cette dernière « recule » après collision.

Dans le cas de la rétrodiffusion des ions lourds projectiles, la section efficace de la réaction est celle d'une interaction purement coulombienne (diffusion Rutherford) :

$$\frac{d\sigma(E, \theta_1)}{d\theta_1} = \left( \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E} \right)^2 \frac{4[(M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta_1)^{1/2} + M_2 \cos \theta_1]^2}{M_2 \sin^4 \theta_1 (M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta_1)^{1/2}} \quad (1)$$

où E représente l'énergie des ions projectiles,  $Z_1$  et  $Z_2$  correspondent respectivement à la charge de l'ion lourd projectile de masse  $M_1$  et de l'uranium 238 de masse  $M_2$ .

Dans le cas où les traces unidirectionnelles proviennent des atomes de recul d'uranium de la cible, l'expression de la section efficace [L'Ecuyer 1976] est :

$$\frac{d\sigma(E, \theta_2)}{d\theta_2} = \frac{[Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)]^2}{(2M_2 E)^2 \cos^3 \theta_2} \quad (2)$$

Comme nous connaissons l'évolution du nombre des traces parallèles dans le cas du faisceau d'ions  $^{129}\text{Xe}^{44+}$  lorsque  $\psi=60^\circ$  (figure 26), nous pouvons comparer cette dernière avec les évolutions des sections efficaces de rétrodiffusion des ions Xe projectiles et de recul des atomes d'uranium, obtenues par calcul grâce aux équations (1) et (2), en tenant compte du nombre d'atomes d'uranium de la cible d' $\text{UO}_2$  qui sont impliqués dans ces deux processus<sup>5</sup>.

<sup>5</sup> Les courbes présentées dans la figure 30 sont obtenues en multipliant les sections efficaces,  $\sigma_{\text{eff}}$  (U ou Xe), par le nombre d'atomes d'uranium de la cible d' $\text{UO}_2$ , correspondant à  $2,5 \times 10^{19}$ . Si nous considérons que les deux processus (rétrodiffusion des ions projectiles ou recul des atomes d'uranium) sont isotropes, ces derniers font alors intervenir des atomes d'uranium situés au maximum à 800  $\mu\text{m}$  de profondeur.

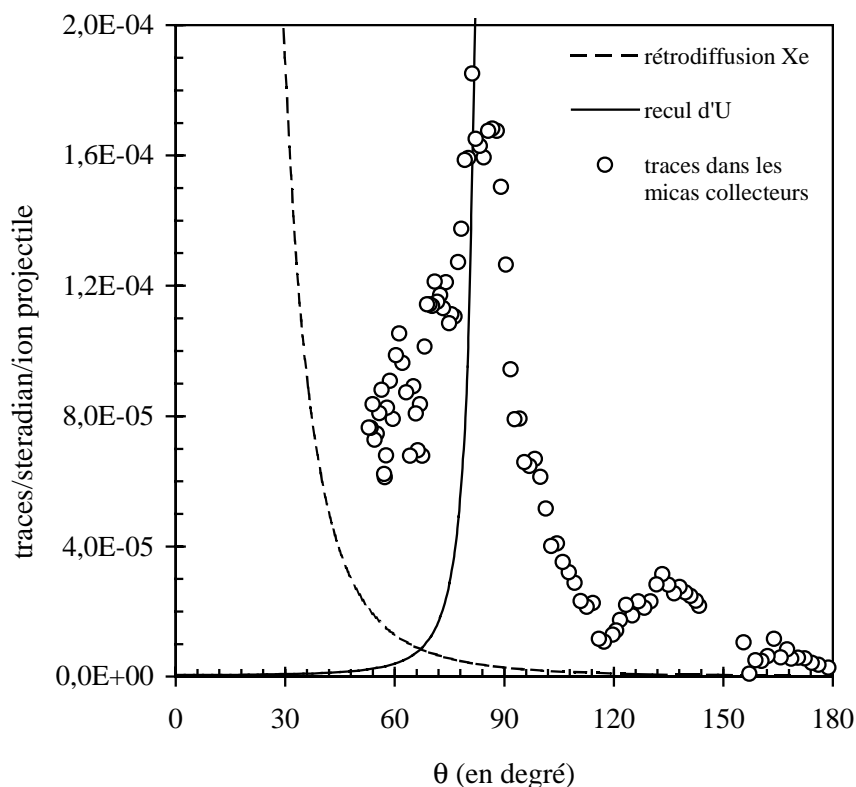


figure 30 : comparaison de la distribution en angle des traces parallèles avec les évolutions des sections efficaces de rétrodiffusion des ions projectiles  $^{129}\text{Xe}^{44+}$  et de recul des atomes d'uranium en tenant compte du nombre d'atomes d'U de la cible d' $\text{UO}_2$

D'après la figure 30, sur l'intervalle  $[60^\circ, 90^\circ]$ , il semble donc plus probable que **les traces « unidirectionnelles » proviennent d'atomes de recul d'uranium éjectés de la cible lors de collision violente avec les ions lourds projectiles** puisque le maximum de la courbe représentant le nombre de traces parallèles observées dans le mica correspond au maximum de l'évolution de la section efficace des atomes d'uranium de recul.

Dans un deuxième temps, afin de vérifier cette assertion, nous utilisons la seconde caractéristique des traces parallèles, c'est-à-dire leur longueur. La longueur moyenne des traces « parallèles » dans le mica est déduite de la longueur des queues des traces (figure 25). A chaque angle  $\theta$ , les distributions en longueur des traces parallèles présentent de grandes dispersions. Afin de tenir compte de ces dispersions, nous considérons pour chaque angle  $\theta$  (c'est-à-dire pour chaque photographie), deux types de longueur de traces : la valeur moyenne des longueurs de traces et la valeur maximale des longueurs de traces

La profondeur de la trace dans le mica, c'est-à-dire le parcours de la particule dans le mica, est déduite à partir des longueurs de « queues » des traces parallèles. Connaissant le parcours

des ions projectiles rétrodiffusés ou des atomes d'uranium de recul dans le mica, nous pouvons remonter à leur énergie. Ayant déterminé deux types de longueur nous déterminons deux énergies, l' $E_{moy}$  correspondant à la longueur moyenne des traces parallèles et l' $E_{max}$ , représentant la longueur maximale des traces parallèles. Dans les figures 31 et 32, nous comparons l'évolution angulaire des énergies  $E_{moy}$  et  $E_{max}$  avec celles de l'énergie  $E_1$  des atomes de xénon rétrodiffusés et de l'énergie  $E_2$  des atomes de recul d'uranium.

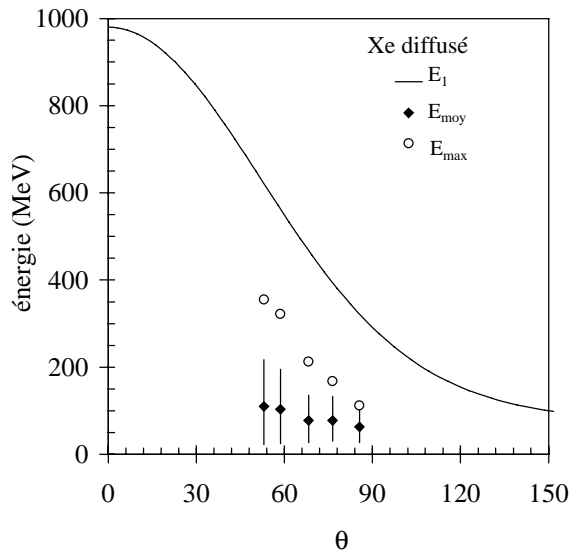


figure 31 : les évolutions des énergies  $E_{moy}$  et  $E_{max}$  déduites de la longueur des traces parallèles créées par la rétrodiffusion sont comparées avec la section efficace en énergie de rétrodiffusion des ions projectiles calculée à partir de l'équation (1)

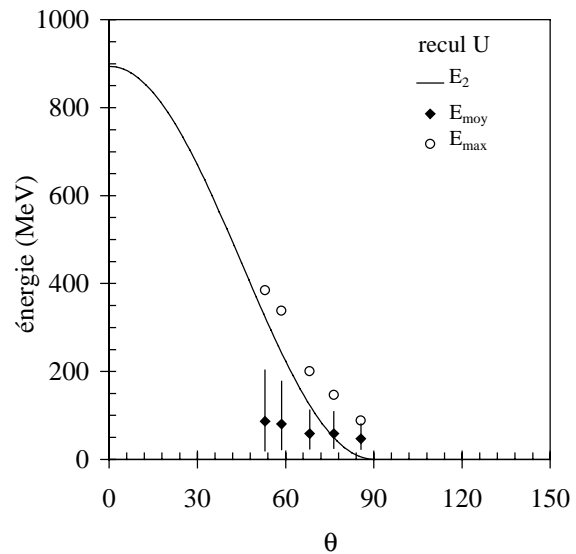


figure 32 : les évolutions des énergies  $E_{moy}$  et  $E_{max}$  déduites de la longueur des traces parallèles créées par les atomes d'U de recul sont comparées avec la section efficace en énergie de recul des atomes d'U calculée à partir de l'équation (2)

Ces figures corroborent ainsi le fait qu'entre  $60^\circ$  et  $90^\circ$ , **les traces « parallèles » sont induites par des atomes d'uranium de recul**. En revanche, nous n'expliquons pas les traces parallèles observées sur l'intervalle  $[90^\circ, 120^\circ]$ . Ainsi, en incidence oblique, l'obtention des distributions angulaires ne peut se faire qu'avec les micas « répliques ».

Dans ce chapitre, nous avons présenté le dispositif expérimental, nous avons également exposé la technique d'analyse des micas avec la méthode des traces de fission. L'atout majeur de cette technique d'analyse réside dans sa sensibilité et sa fiabilité. Nous allons découvrir dans le prochain chapitre l'ensemble des résultats obtenus grâce à ce dispositif expérimental et à cette technique d'analyse.

# Chapitre 4

---

## *Présentation et analyse des résultats*

Le but de notre travail est double. Dans un premier temps, nous avons entrepris d'étudier l'évolution des distributions angulaires et des rendements d'atomes d'uranium pulvérisés d'une cible de  $\text{UO}_2$  en fonction du pouvoir d'arrêt et de l'angle d'incidence des ions projectiles. Pour cela, nous avons choisi de détecter l'ensemble des particules pulvérisées, sans distinction de charge et de masse, en utilisant la technique dite du « collecteur ». Après irradiation, l'analyse par la méthode des traces de fission révèle la présence d'atomes d'uranium 235 sur les collecteurs, permettant ainsi de déduire les distributions angulaires des atomes d'uranium pulvérisés. Parallèlement à cette étude, nous avons mesuré, par microscopie à force atomique, les rayons des traces latentes créées lors de l'impact des ions projectiles sur la cible de dioxyde d'uranium. Comme pour les distributions angulaires, ces mesures ont été réalisées à différents pouvoirs d'arrêt, dans l'optique d'une étude comparative de l'évolution de l'endommagement et de la pulvérisation.

Ce chapitre se scinde en cinq parties. Dans la première partie, nous présenterons les distributions angulaires obtenues à différents pouvoirs d'arrêt et pour plusieurs inclinaisons de la cible de  $\text{UO}_2$ . Nous montrerons ensuite, à l'aide d'exemples, comment extraire les rendements de pulvérisation à partir de l'analyse des courbes déterminées expérimentalement. Dans la troisième partie, nous exposerons les résultats concernant les traces créées par irradiation aux ions et observées dans le dioxyde d'uranium. Nous terminerons enfin par les résultats apportés par la mesure de la distribution en masse des particules émises lors de la pulvérisation d'une cible de  $\text{UO}_2$  par des ions lourds.



# I - Les distributions angulaires

## I.1 - Présentation des distributions angulaires

Grâce au dispositif expérimental et à la technique de détection présentés dans le chapitre 3, nous obtenons les distributions angulaires des atomes d'uranium pulvérisés d'une cible de  $\text{UO}_2$  pour différents ions projectiles suivant trois incidences,  $\psi=0^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $60^\circ$  (figure 1),  $\psi$  représentant l'angle défini par la normale à la cible et le faisceau d'ions lourds projectiles.

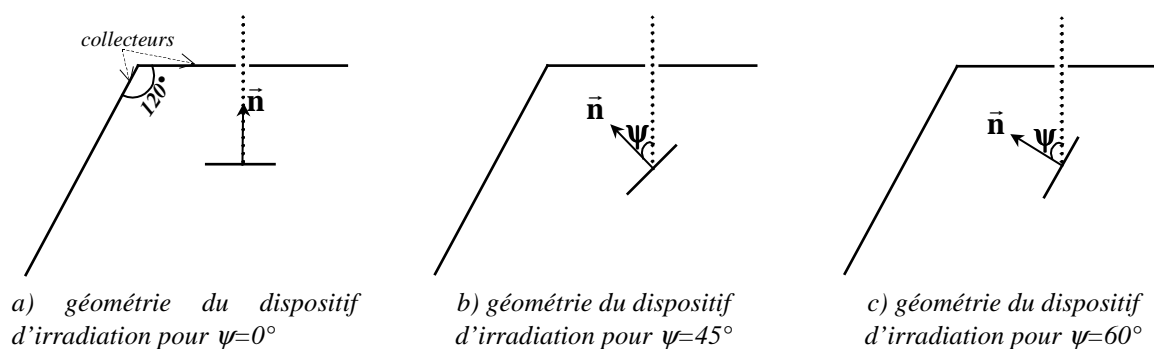


figure 1 : géométrie du dispositif pour différentes inclinaisons de la cible  
 $\vec{n}$  représente la normale à la cible d' $\text{UO}_2$ .

Dans le tableau 1, nous résumons les principaux paramètres caractérisant l'irradiation aux ions lourds : le type d'ions projectiles, leur énergie, leur pouvoir d'arrêt électronique dans l' $\text{UO}_2$ , leur nombre, l'angle d'incidence  $\psi$  et le numéro de la figure présentant la distribution angulaire obtenue expérimentalement.

Ions projectiles	Energie (MeV/uma)	Pouvoir d'arrêt électronique (keV/nm)	Angle d'incidence $\psi$	Nombre d'ions projectiles	Numéro de la figure
$^{238}\text{U}^{55+}$	3,4	55,4	0°	$7,85 \times 10^9$	figure 2
$^{208}\text{Pb}^{53+}$	4,5	54,1	0°	$1,75 \times 10^{11}$	figure 3
$^{129}\text{Xe}^{44+}$	7,6	33,8	0°	$2,29 \times 10^{11}$	figure 4
$^{116}\text{Sn}^{36+}$	4,6	32,8	0°	$5,35 \times 10^{12}$	figure 5
$^{78}\text{Kr}^{32+}$	10,8	18,0	0°	$1,75 \times 10^{11}$	figure 6
$^{40}\text{Ar}^{17+}$	11,3	5,7	0°	$5,18 \times 10^{11}$	figure 7
$^{78}\text{Kr}^{32+}$	10,8	18,0	45°	$1,75 \times 10^{11}$	figure 10
$^{208}\text{Pb}^{53+}$	4,5	54,1	60°	$1,57 \times 10^{11}$	figure 11
$^{129}\text{Xe}^{44+}$	7,6	33,8	60°	$2,00 \times 10^{11}$	figure 12
$^{70}\text{Zn}^{27+}$	9,9	18,2 <sup>1</sup>	60°	$2,00 \times 10^{11}$	figure 13

tableau 1 : caractéristiques des ions projectiles utilisés pour chaque distribution angulaire

Les figures du 2 à 13 représentent l'évolution des rendements différentiels de pulvérisation,  $\frac{dY}{d\Omega}$ , en fonction de l'angle d'émission  $\theta$ , pour différents pouvoirs d'arrêt électronique et différents angles d'incidence. Chaque point des distributions angulaires correspond à une zone du mica « collecteur » observée au microscope afin de dénombrer les traces induites par la fission des atomes d'uranium 235 pulvérisés et d'en déduire le nombre d'atomes d'uranium collectés dans cette zone. Rappelons, l'expression à partir de laquelle  $\frac{dY}{d\Omega}$  est déterminé :  $\frac{dY}{d\Omega}(\theta) = \frac{N_t}{N_n \times N_i \times \sigma_f \times \Delta\Omega \times 0,037}$ .

$N_t$  représente le nombre de traces comptées sur une photographie de surface  $S$ ,  $N_n$  la fluence de neutrons (en  $\text{cm}^{-2}$ ),  $N_i$  le nombre d'ions lourds projectiles induisant la pulvérisation,  $\sigma_f = 5,82 \times 10^{-22} \text{ cm}^2$  est la section efficace de fission pour les neutrons thermiques et  $\Delta\Omega = \frac{S \times \cos\theta}{d^2}$ ,  $d$  étant la distance de la cible de  $\text{UO}_2$  à la zone observée sur le mica se trouvant sur la plaque collectrice<sup>2</sup> (c'est-à-dire perpendiculaire au faisceau d'ions projectiles) et  $\theta$  l'angle d'émission défini par rapport à la normale à la cible.

<sup>1</sup> Pour le faisceau d'ions  $^{70}\text{Zn}^{27+}$ , une feuille d'aluminium a été placée sur le trajet du faisceau, en amont de la cible de  $\text{UO}_2$ , jouant ainsi le rôle de dégradeur en énergie. Son épaisseur a été choisie de façon à obtenir un pouvoir d'arrêt électronique d'environ 18 keV/nm.

<sup>2</sup> Pour les micas se trouvant sur le bras du dispositif collecteur,  $\Delta\Omega = \frac{S \times \cos(60 - \theta)}{d^2}$ .

## I.2 - Description des distributions angulaires

### I.2.1 - En incidence normale ( $\psi=0^\circ$ )

Les irradiations en incidence normale ont été réalisées avec plusieurs ions projectiles, allant de  $^{40}\text{Ar}^{17+}$ , de pouvoir d'arrêt électronique 6 keV/nm, jusqu'à  $^{238}\text{U}^{55+}$  de pouvoir d'arrêt électronique 55 keV/nm. Les distributions des figures 2 et 3 sont mesurées sur un intervalle d'angle  $[0^\circ, 90^\circ]^3$ , et celles des figures 4 à 7 sur une échelle en  $\theta$  variant de  $-40^\circ$  à  $+90^\circ$ . Dans ce dernier intervalle d'angle, deux zones « aveugles » apparaissent :

- la première couvre quelques degrés de part et d'autre de  $0^\circ$  ; elle est due au diaphragme de diamètre 1 mm, laissant passer le faisceau d'ions lourds incidents
- la seconde zone est située entre  $40^\circ$  et  $50^\circ$ , voire jusqu'à  $55^\circ$  dans le cas de l'irradiation aux ions  $^{40}\text{Ar}^{17+}$  ; elle correspond au passage du mica « collecteur » de la plaque au mica « collecteur » du bras (voir figure 21 du chapitre 3).

---

<sup>3</sup> La distribution angulaire des atomes d'uranium pulvérisés lors de l'impact d'ions  $^{238}\text{U}^{55+}$  est obtenue avec un autre dispositif que celui présenté dans le chapitre 3 : la cible de  $\text{UO}_2$  est fixe, et, en regard de celle-ci, sont placés quatre micas « collecteurs » de part et d'autre d'un diaphragme de 2 mm de diamètre. Dans le cas des ions projectiles  $^{208}\text{Pb}^{53+}$ , la variation limitée en  $\theta$  est due à une mauvaise détermination de la fluence neutronique, rendant ainsi inobservables les micas des angles négatifs.

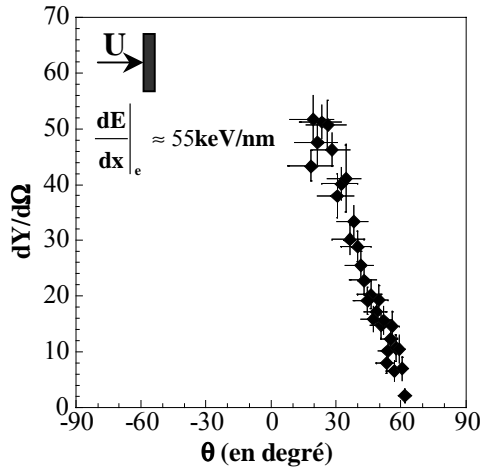


figure 2

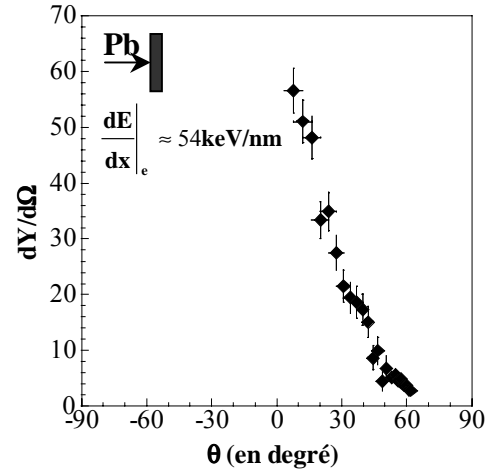


figure 3

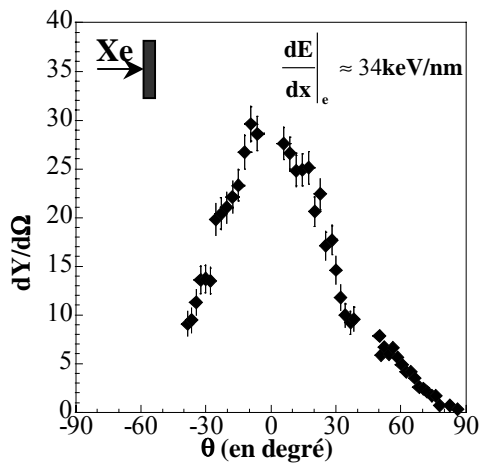


figure 4

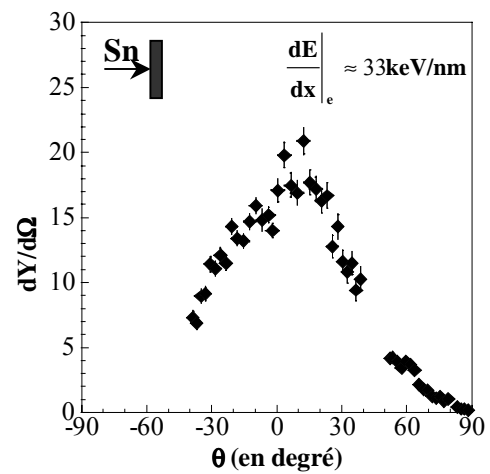


figure 5

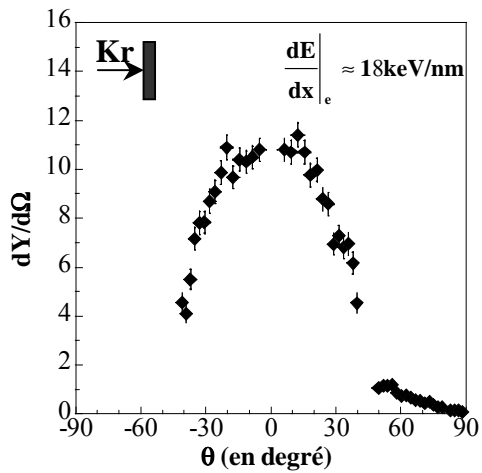


figure 6

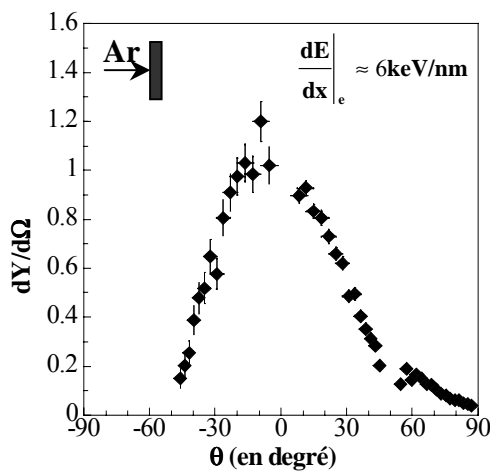


figure 7

Les figures 2 à 7 représentent les distributions angulaires des atomes d'uranium respectivement éjectés par l'impact d'ions  $^{238}\text{U}^{55+}$  de 3,4 MeV/uma,  $^{208}\text{Pb}^{53+}$  de 4,5 MeV/uma,  $^{129}\text{Xe}^{44+}$  de 7,6 MeV/uma,  $^{116}\text{Sn}^{36+}$  de 4,6 MeV/uma,  $^{78}\text{Kr}^{32+}$  de 10,8 MeV/uma et  $^{40}\text{Ar}^{17+}$  de 11,3 MeV/uma pour  $\psi=0^\circ$ .

La figure 8 permet de comparer les résultats obtenus avec les différents ions projectiles et d'en tirer les conclusions suivantes :

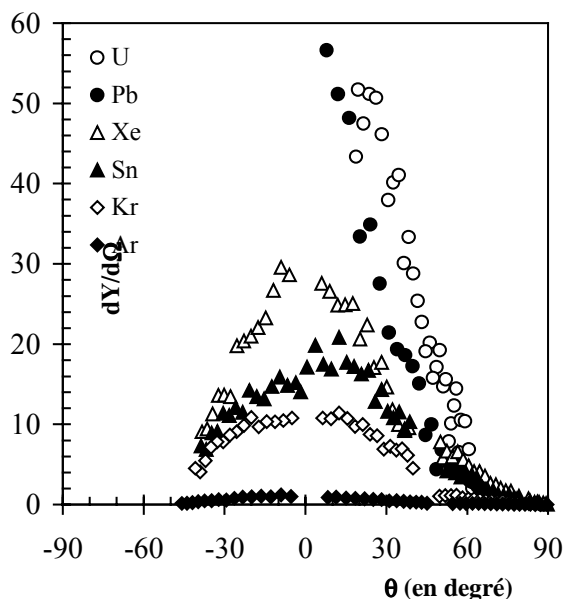


figure 8 : comparaison des distributions angulaires obtenues en incidence normale ( $\psi=0^\circ$ )

- quel que soit l'ion projectile, en incidence normale, les atomes sont pulvérisés préférentiellement suivant la normale à la cible de  $UO_2$ .
- le maximum de la distribution angulaire augmente en fonction du pouvoir d'arrêt. A  $\theta \approx 0^\circ$ , le maximum varie d'environ 1 atome d'uranium éjecté par stéradian et par ion projectile dans le cas du faisceau d'ions  $^{40}Ar^{17+}$  à 60 atomes d'uranium pour les ions  $^{208}Pb^{53+}$ .

### I.2.2 - En incidence oblique ( $\psi \neq 0^\circ$ )

Lorsque les ions projectiles ont une incidence oblique par rapport à la surface de la

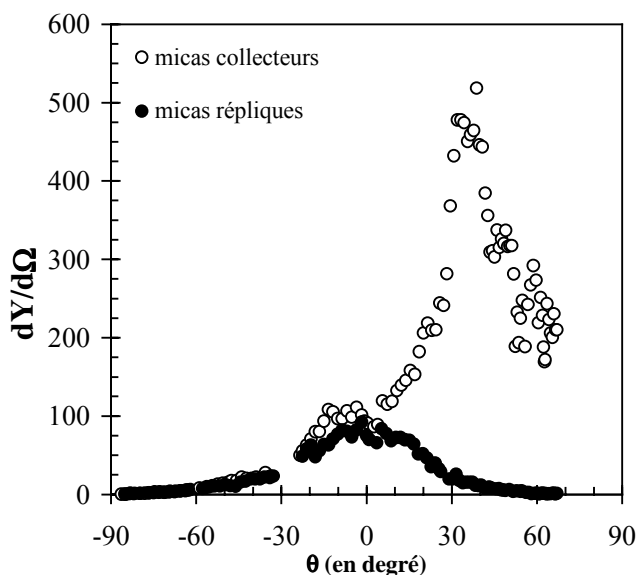


figure 9 : comparaison entre la distribution angulaire obtenue avec les micas « répliques » et celle obtenue avec les micas « collecteurs » lors de l'impact d'ions  $^{129}Xe^{44+}$  de 7,6 MeV/uma pour  $\psi=60^\circ$

cible, les distributions angulaires sont mesurées à partir des micas « répliques » puisque l'apparition de traces « suspectes » (figure 9) empêche l'observation des traces de fission sur les micas « collecteurs ». Ces traces supplémentaires proviennent d'atomes d'uranium de recul, éjectés de la cible de  $UO_2$  lors de collisions violentes avec les ions projectiles (Chapitre 3, § IV.4.2).

#### a) Pour $\psi=45^\circ$

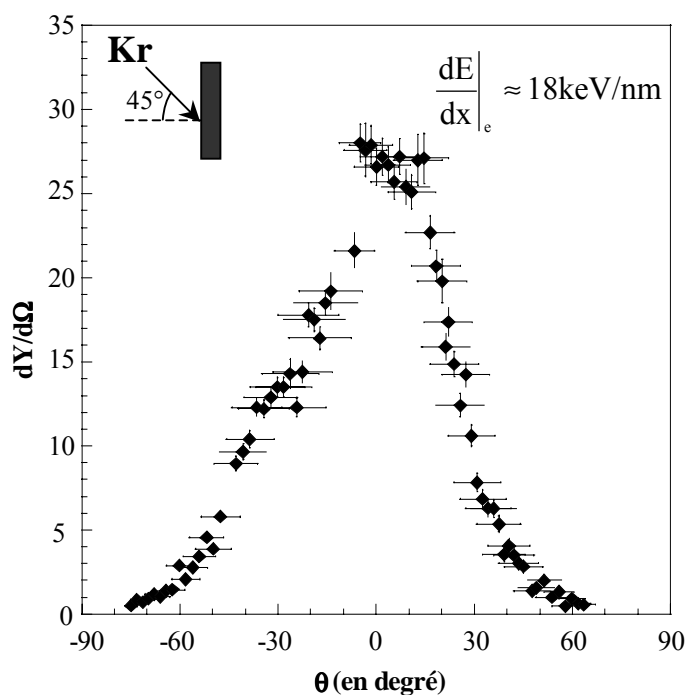


figure 10 : distribution angulaire des atomes d'uranium éjectés par l'impact d'ions  $^{78}\text{Kr}^{32+}$  de 10,8 MeV/uma à  $\psi=45^\circ$

Dans le cas de la distribution angulaire obtenue pour des ions projectiles  $^{78}\text{Kr}^{32+}$  avec une incidence de  $45^\circ$  (figure 10), l'éjection se fait toujours **préférentiellement à  $0^\circ$** , donc suivant la normale à la surface de la cible de  $\text{UO}_2$ .

Cette distribution, mesurée sur un intervalle d'angle variant d'environ  $-75^\circ$  à  $+60^\circ$ , présente deux zones « aveugles » :

- la première couvre quelques degrés de part et d'autre de  $45^\circ$  ; elle correspond au diaphragme d'1 mm laissant passer le faisceau d'ions projectiles
- la seconde est située entre  $-7^\circ$  et  $-15^\circ$  ; elle est due au passage du mica « réplique » de la plaque au mica « réplique » se trouvant sur le bras du dispositif collecteur.

#### b) Pour $\psi=60^\circ$

Pour un angle d'incidence plus grand (c'est-à-dire  $60^\circ$  par rapport à la normale à la cible), les trois distributions angulaires présentées dans les figures 11, 12 et 13 ont été obtenues pour des ions projectiles  $^{208}\text{Pb}^{53+}$ ,  $^{129}\text{Xe}^{44+}$  et  $^{70}\text{Zn}^{27+}$ . A cet angle, les atomes d'uranium sont toujours émis perpendiculairement à la cible.

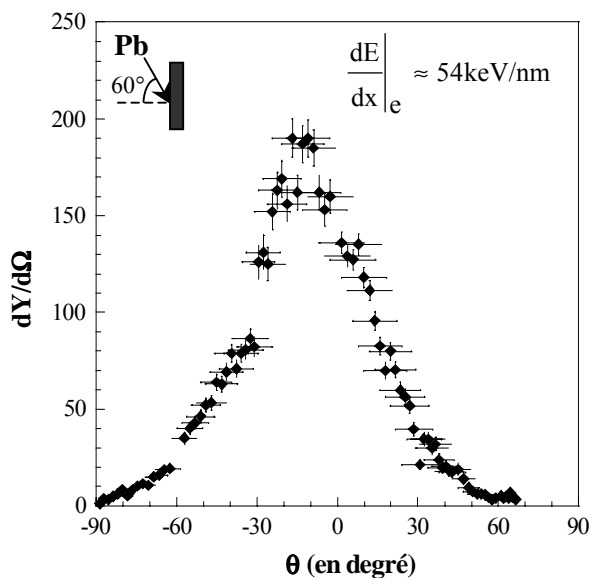


figure 11 : distribution angulaire des atomes d'uranium éjectés par l'impact d'ions  $^{208}\text{Pb}^{53+}$  de 4,49 MeV/uma à  $\psi=60^\circ$

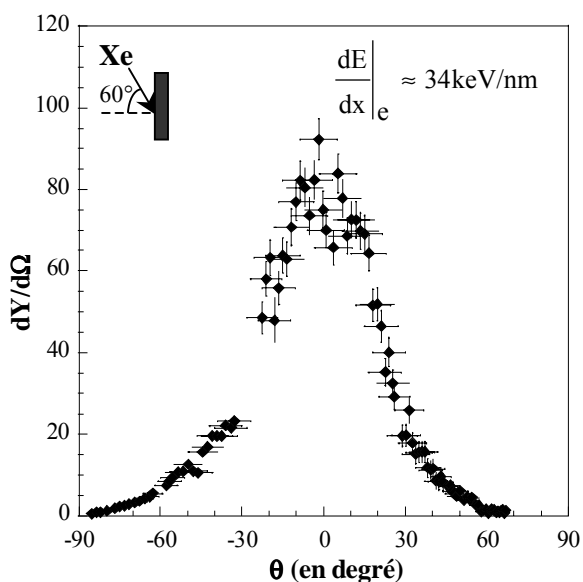


figure 12 : distribution angulaire des atomes d'uranium éjectés par l'impact d'ions  $^{129}\text{Xe}^{44+}$  de 7,6 MeV/uma à  $\psi=60^\circ$

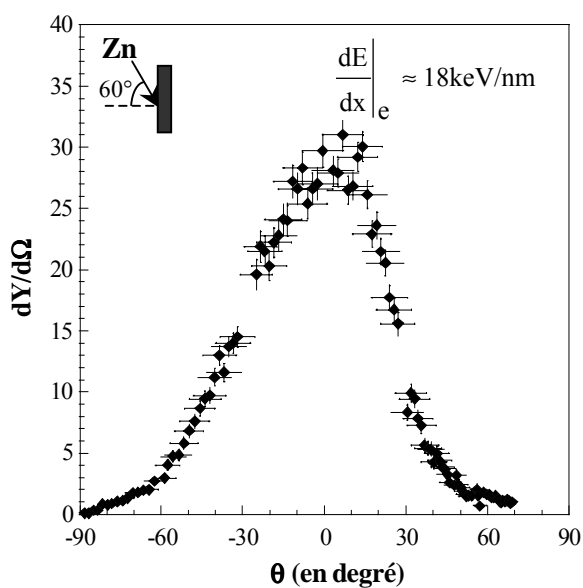


figure 13 : distribution angulaire des atomes d'uranium éjectés par l'impact d'ions  $^{70}\text{Zn}^{27+}$  de 9,9 MeV/uma à  $\psi=60^\circ$

### I.3 - Bilan

A partir de la mesure de l'ensemble des distributions angulaires, nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

- quel que soit l'ion projectile, ces distributions présentent une symétrie par rapport à la normale à la surface, soulignant le fait que **l'éjection des particules d'uranium se fait de façon préférentielle perpendiculairement à la cible de dioxyde d'uranium** (figure 14).  
Puisque ni l'incidence des ions projectiles, ni leur pouvoir d'arrêt n'influent sur la direction d'éjection, il semble donc que ce soit la surface de la cible de  $UO_2$  qui impose la direction d'éjection des atomes d'uranium.
- le nombre d'atomes d'uranium éjectés augmente en fonction du pouvoir d'arrêt.

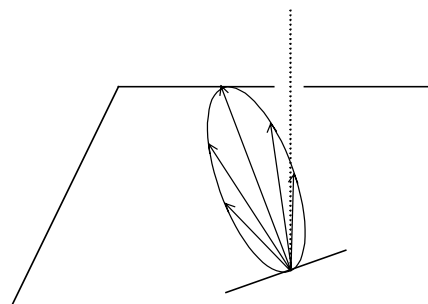


figure 14 : « plume » de pulvérisation indiquant la direction préférentielle d'émission de particules d'uranium émises de la cible de  $UO_2$

Il existe néanmoins des différences entre les distributions angulaires obtenues en incidence normale et oblique (figure 15) :

- les courbes sont plus « piquées » en incidence oblique qu'en incidence normale,
- l'amplitude maximale des distributions angulaires augmente en fonction de l'angle d'incidence  $\psi$ .

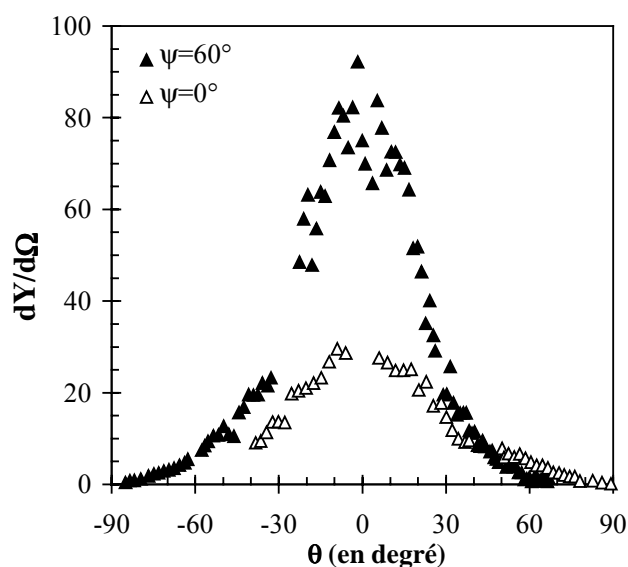


figure 15 : comparaison entre la distribution angulaire obtenue en incidence normale ( $\psi=0^\circ$ ) et celle obtenue pour  $\psi=60^\circ$ , lors de l'impact d'ions  $^{129}Xe^{44+}$  de 7,6 MeV/uma



Globalement, ces résultats sont en accords avec ceux obtenus pour d'autres cibles. En effet, H.D. Mieskes [Mieskes 1999] observe également une éjection préférentielle suivant la normale à la cible dans le cadre de l'étude de la pulvérisation de l'or, du titane, de la zircone, du grenat d'yttrium ( $Y_3Fe_5O_{12}$ ) et de l'iodure de césium (CsI), pour des ions projectiles d'énergie supérieure à 100 MeV, avec un angle d'incidence,  $\psi$ , de  $72^\circ$ . En revanche, nos résultats ainsi que ceux de H.D. Mieskes sont en contradiction avec les évolutions proposées par les modèles d'onde de choc et d'impulsion de pression, comme le résume le tableau 2.

Conclusions obtenues par nos distributions	Prédictions du modèle d'onde de choc [Bitensky 1990]	Prédictions du modèle d'impulsion de pression [Johnson 1989]
<ul style="list-style-type: none"> <li>• Distributions angulaires <b><u>symétriques</u></b> par rapport à <math>0^\circ</math></li>   <li>• Distributions angulaires <b><u>indépendantes</u></b> de l'angle d'incidence</li>   <li>• Des <b><u>particules sont émises</u></b> dans la direction d'incidence des ions projectiles</li>   <li>• Incidence normale : les distributions angulaires sont <b><u>« piquées » à <math>0^\circ</math></u></b></li>   <li>• Incidence oblique : les distributions angulaires sont <b><u>« piquées » suivant la normale à la cible</u></b></li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Distributions angulaires <b><u>asymétriques</u></b></li>   <li>• Distributions angulaires <b><u>fortement dépendantes</u></b> de l'angle d'incidence</li>   <li>• <b><u>Aucune particule n'est émise</u></b> dans la direction d'incidence des ions projectiles</li>   <li>• Incidence normale : distribution angulaire <b><u>« piquée » à <math>45^\circ</math></u></b> par rapport à la normale à la cible</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Incidence normale : distribution angulaire <b><u>« piquée » à <math>45^\circ</math></u></b> par rapport à la normale à la cible</li>   <li>• Incidence oblique : distribution angulaire <b><u>« piquée » plus vers <math>0^\circ</math></u></b> que vers <math>45^\circ</math></li>   <li>• Incidence rasante : distribution angulaire <b><u>« piquée » suivant la normale</u></b> à la cible</li> </ul>

tableau 2 : comparaison entre les résultats obtenus expérimentalement et les prédictions proposées par les modèles de pulvérisation par choc [Bitensky 1990, Johnson 1989]

En incidence oblique, la direction d'éjection des particules observée expérimentalement est en accord avec le modèle d'impulsion de pression [Johnson 1989]. Cependant, alors que nos données décrivent toujours une direction perpendiculaire à la cible et ce, quels que soient l'ion

projectile et son angle d'incidence par rapport à la normale à la cible, le modèle proposé par R.E. Johnson et collaborateurs [Johnson 1989] est moins explicite quant à la description de cette direction. En effet, ces auteurs indiquent un angle préférentiel d'éjection, par rapport à la normale à la cible, plus proche de  $0^\circ$  que de  $45^\circ$ , laissant ainsi un grand facteur d'acceptabilité.

Nous allons maintenant décrire les ajustements obtenus à partir des distributions angulaires expérimentales, nous permettant ainsi de déterminer le rendement de pulvérisation,  $Y$ .

## **II - Courbes de tendance et détermination des rendements de pulvérisation**

### **II.1 - Courbes de tendance**

Nous avons ajusté l'ensemble des distributions angulaires par deux courbes de tendance : une fonction en  $(\cos\theta)^n$  et une fonction issue d'un modèle d'écoulement gazeux supersonique utilisé par R. Moshhammer [Moshhammer 1991] dans le cas de la désorption de molécules organiques. Nous présentons dans les figures 16 et 17 ces deux ajustements dans le cas de la distribution angulaire des atomes d'uranium éjectés par l'impact d'ions projectiles  $^{208}\text{Pb}^{53+}$  pour une incidence  $\psi$  de  $60^\circ$ .

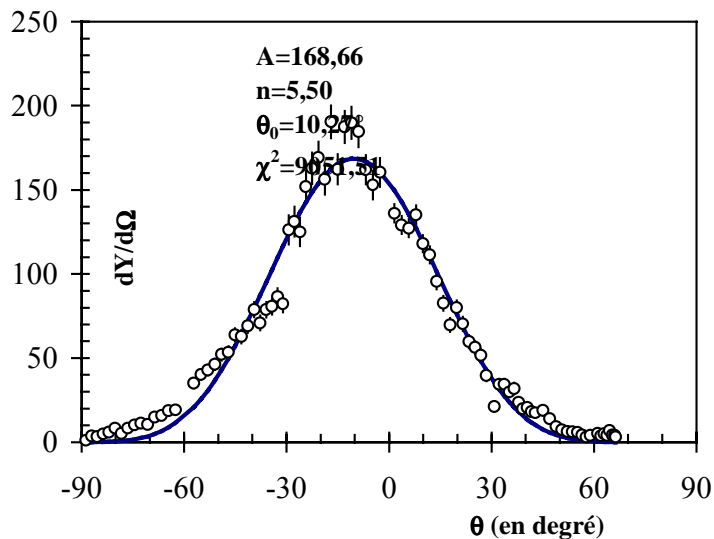


figure 16: ajustement par  $A \times \cos^n(\theta + \theta_0)$  de la distribution angulaire des atomes d'uranium éjectés par l'impact d'ions  $^{208}\text{Pb}^{53+}$  de 4,49 MeV/uma à  $\psi=60^\circ$

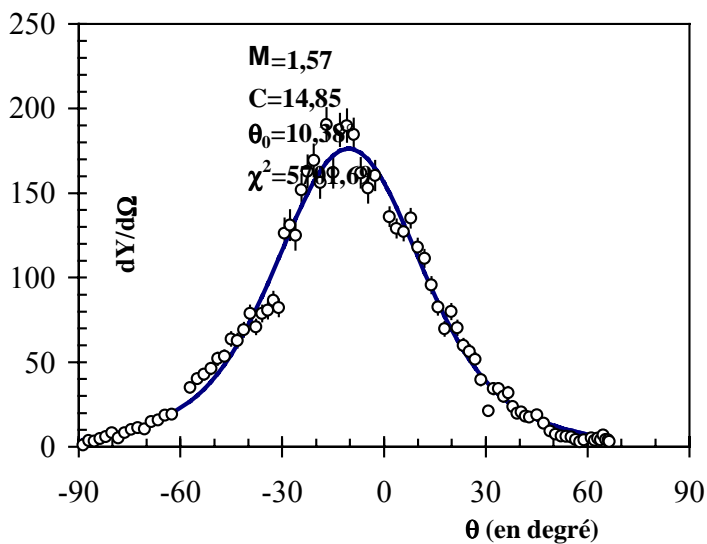


figure 17 : ajustement par une fonction<sup>4</sup> issue d'un modèle de flux gazeux de la distribution angulaire des atomes d'uranium éjectés par l'impact d'ions  $^{208}\text{Pb}^{53+}$  de 4,49 MeV/uma à  $\psi=60^\circ$

<sup>4</sup>  $C \times [(1 + 2M^2 \times \cos^2(\theta + \theta_0))(\text{erf}(M \times \cos(\theta + \theta_0)) + 1)] \times e^{-M^2 \sin^2(\theta + \theta_0)}$

## II.1.1 - Fonction en cosinus

Comme nous l'avons vu au cours du chapitre 2, le modèle de la pointe thermique propose une dépendance en  $(\cos\theta)^n$  avec  $1 < n < 2$  dans le domaine d'énergie du keV [Andersen 1985, Matsuda 1986]. En revanche, dans le domaine de la pulvérisation électronique, l'exposant  $n$  obtenu expérimentalement peut varier de 0,5 à 6 suivant le matériau considéré (Chapitre 2, § III.3.1). Nous avons ajusté les distributions angulaires des atomes d'uranium pulvérisés avec une fonction de la forme :  $A \times \cos^n(\theta + \theta_0)$ , où  $\theta_0$  représente le décalage par rapport à  $0^\circ$  de l'amplitude maximale de la distribution angulaire,  $A$  correspond au nombre d'atomes d'uranium pulvérisés par ion projectile et par stéradian suivant la direction  $\theta_0$ , c'est-à-dire  $\frac{dY}{d\Omega}(\theta_0)$ , et  $n$  est la puissance de la fonction cosinus. Les paramètres d'ajustement  $A$ ,  $\theta_0$  et  $n$  obtenus pour chaque ion projectile sont récapitulés dans le tableau 3.

Ions projectiles	Angle d'incidence $\psi$	$\left. \frac{dE}{dx} \right _e$ (en keV/nm)	$A \times \cos^n(\theta + \theta_0)$		
			<b>A</b>	<b><math>\theta_0</math></b>	<b>n</b>
$^{238}\text{U}^{55+}$	$0^\circ$	55,4	62,53	$0,00^\circ$ <sup>5</sup>	$3,03 \pm 0,21$
$^{208}\text{Pb}^{53+}$	$0^\circ$	54,1	58,50	$0,00^\circ$	$2,88 \pm 0,39$
$^{129}\text{Xe}^{44+}$	$0^\circ$	33,8	29,12	$-3,65^\circ$	$4,37 \pm 0,24$
$^{116}\text{Sn}^{36+}$	$0^\circ$	32,8	17,50	$-4,61^\circ$	$2,92 \pm 0,06$
$^{78}\text{Kr}^{32+}$	$0^\circ$	18,0	11,79	$0,89^\circ$	$3,24 \pm 0,08$
$^{40}\text{Ar}^{17+}$	$0^\circ$	5,7	1,09	$1,91^\circ$	$4,15 \pm 0,16$
$^{78}\text{Kr}^{32+}$	$45^\circ$	32,8	26,54	$0,85^\circ$	$5,57 \pm 0,10$
$^{208}\text{Pb}^{53+}$	$60^\circ$	54,1	168,66	$10,27^\circ$	$5,50 \pm 0,13$
$^{129}\text{Xe}^{44+}$	$60^\circ$	33,8	79,73	$1,73^\circ$	$6,68 \pm 0,26$
$^{70}\text{Zn}^{27+}$	$60^\circ$	18,2	28,95	$2,69^\circ$	$4,65 \pm 0,16$

tableau 3 : récapitulatif des valeurs des paramètres d'ajustement de la fonction en cosinus obtenues pour chaque distribution angulaire

<sup>5</sup> Notons que dans le cas des distributions angulaires obtenues pour des ions projectiles  $^{238}\text{U}^{55+}$  et  $^{208}\text{Pb}^{53+}$ , en incidence normale, l'ajustement de ces distributions avec les trois courbes de tendance est réalisé sur un intervalle d'angle très limité  $[0^\circ, 90^\circ]$ . Cette limitation en angle peut induire des erreurs importantes sur la détermination des paramètres d'ajustement.

Nous trouvons que la puissance de la fonction en cosinus,  $n$ , est comprise entre 2,9 et 6,7. La courbe en trait plein de la figure 16 est le résultat d'un ajustement avec la fonction  $A \times \cos^n(\theta + \theta_0)$  où  $n$  est égal à 5,50. Cette valeur de  $n$  indique une éjection très « piquée » selon la perpendiculaire à la cible. L'évolution du coefficient  $n$ , issu des ajustements des distributions angulaires, est reportée sur la figure 18 en fonction du pouvoir d'arrêt électronique des ions projectiles.

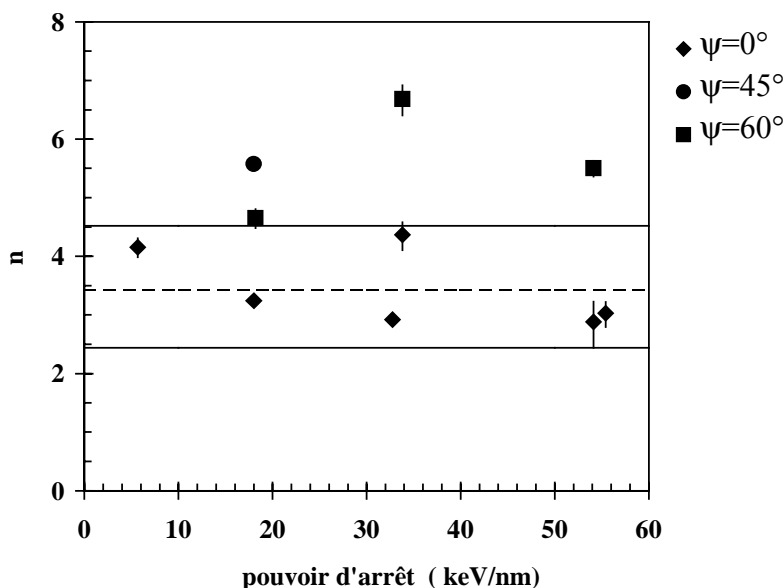


figure 18 : évolution de la puissance de la fonction  $A \times \cos^n(\theta + \theta_0)$  en fonction du pouvoir d'arrêt électronique

La figure 18 laisse apparaître deux types d'évolution suivant la valeur de l'angle  $\psi$ . Les résultats obtenus pour  $\psi=0^\circ$  peuvent, compte tenu de la dispersion des points, être considérés comme indépendants du pouvoir d'arrêt électronique. Ainsi,  $n$  est approximativement constant avec une valeur moyenne de  $3,4 \pm 0,8$ . Pour  $\psi \neq 0^\circ$ , bien que la barre d'incertitude sur le paramètre  $n$  soit importante, ce dernier reste grossièrement constant à une valeur de 5,6. L'augmentation de la valeur de la puissance du cosinus en incidence oblique indique que l'éjection des particules d'uranium est plus « piquée » en incidence oblique qu'en incidence normale.

Nous allons maintenant comparer nos observations concernant les distributions angulaires avec l'ensemble des résultats de la littérature présentés au cours du chapitre 2.

Dans le cas d'une incidence normale ( $\psi=0^\circ$ ), I.A. Baranov et collaborateurs [Baranov 1988] obtiennent une distribution angulaire de la forme  $(\cos\theta)^2$  lors de l'impact de fragments de fission de  $^{252}\text{Cf}$  sur une cible de  $\text{UO}_2$ , c'est-à-dire pour un pouvoir d'arrêt électronique d'environ 6 keV/nm. Cette valeur de la puissance du cosinus est deux fois moins grande que celle que nous obtenons au même pouvoir d'arrêt avec le faisceau d'ions projectiles  $^{40}\text{Ar}^{17+}$ . Si nous considérons encore une cible composée d'uranium, telle que  $\text{UF}_4$ , pulvérisée par des ions  $^{19}\text{F}^{3+}$  de 4,74 MeV, c'est-à-dire pour  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = 2,6 \text{ keV/nm}$ ,

J.E. Griffith et collaborateurs [Griffith 1980] obtiennent une distribution angulaire des atomes d'uranium émis de la forme  $(\cos\theta)^{0,81}$ . La puissance du cosinus semble donc dépendre des matériaux cibles utilisés. Cette supposition est d'ailleurs confirmée par la forme en  $(\cos\theta)^{3,25}$  observée pour la distribution angulaire des atomes d'aluminium pulvérisés d'une cible d'alumine par des ions  $^{35}\text{Cl}$  de 20 MeV, correspondant à un pouvoir d'arrêt électronique de 7,6 keV/nm [Qiu 1982]. Cette valeur de la puissance du cosinus se rapproche, d'une part, de celle que nous obtenons dans le cas d'ions projectiles  $^{40}\text{Ar}^{17+}$  et, d'autre part, de la valeur « moyenne » de  $n$  (3,4) déduite à partir de l'ajustement de nos distributions angulaires par la courbe de tendance en  $A \times \cos^n(\theta + \theta_0)$ .

Dans le cas d'une incidence oblique ( $\psi \neq 0^\circ$ ), H.D. Mieskes [Mieskes 1999] obtient respectivement des valeurs de  $n \approx 3,2$  et  $3,6$  pour les atomes de Cs pulvérisés d'une cible de CsI par des ions projectiles  $\text{I}^{5+}$  de 210 MeV, correspondant à  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = 14,6 \text{ keV/nm}$ , et pour les atomes d'au pulvérisés d'une cible d'au par des ions projectiles  $\text{Au}^{16+}$  de 230 MeV, correspondant à  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = 55,4 \text{ keV/nm}$ . Les distributions angulaires des atomes de Cs et d'au pulvérisés, pour une incidence des ions projectiles de  $71^\circ$ , sont donc moins « piquées » que celles obtenues dans notre étude à  $\psi \neq 0^\circ$ .

Que ce soit en incidence normale ( $\psi=0^\circ$ ) ou en incidence oblique ( $\psi \neq 0^\circ$ ), les valeurs de la puissance de la fonction  $A \times \cos^n(\theta + \theta_0)$  obtenues expérimentalement ne présentent pas d'augmentation claire en fonction du pouvoir d'arrêt. Bien qu'actuellement, nous ne nous expliquons pas l'indépendance de  $n$  en fonction du pouvoir d'arrêt, cette fonction nous permet cependant de montrer que quels que soient l'ion projectile et son angle d'incidence,

l'émission des atomes dans le domaine de la pulvérisation électronique se fait de manière très anisotrope<sup>6</sup>, avec une direction préférentielle d'éjection suivant la normale à la cible.

L'ajustement avec une fonction en cosinus n'est pas parfait sur les « ailes » des distributions angulaires. De plus, la courbe de tendance en  $\cos^n \theta$  avec  $n > 3$  ne fait référence à aucun modèle de pulvérisation électronique, ne permettant pas une interprétation physique plus approfondie. En effet, seul le modèle de pulvérisation par flux gazeux suggère que la distribution peut présenter une forme plus « piquée » qu'un cosinus si la vitesse du flux gazeux est élevée.

Dans le prochain paragraphe, nous allons utiliser une fonction issue d'un modèle développé par R. Moshhammer [Moshhammer 1991]. Ainsi, nous pourrions avoir des informations autres que celles concernant la forme de la distribution angulaire, comme par exemple une estimation de la vitesse à laquelle les atomes d'uranium sont éjectés de la cible de  $\text{UO}_2$ .

### II.1.2 - Fonction issue d'un modèle gazeux supersonique

Suite au dépôt d'énergie dans la trace, R. Moshhammer [Moshhammer 1991] considère qu'au lieu d'une simple évaporation limitée à la surface de la cible, une transition de phase brutale de l'état solide à l'état gazeux peut avoir lieu dans les zones les plus chaudes du volume de la trace. Un flux gazeux de particules est ainsi éjecté de la trace. Ce modèle s'appuie sur la cinétique des gaz comme dans le modèle de flux gazeux. L'auteur ajoute simplement, à l'expansion d'un gaz à l'équilibre thermique se propageant à l'extérieur de la trace, une vitesse constante,  $u$ , représentant la vitesse du flux gazeux de particules dans la direction  $x$  dirigée vers l'extérieur [Bird 1976]. R. Moshhammer utilise ce modèle afin d'expliquer l'évolution des distributions en angle et en énergie des fragments légers pulvérisés de cibles organiques de valine [Moshhammer 1991]. Ces fragments semblent se former dans les zones les plus chaudes du dépôt d'énergie, où a lieu une destruction des molécules organiques.

---

<sup>6</sup> L'émission est anisotrope lorsque la puissance de la fonction cosinus est supérieure à 1.

Suite au calcul développé dans l'annexe 2, l'expression du rendement différentiel en angle,  $\frac{dY}{d\Omega}$ , est la suivante :

$$\frac{dY}{d\Omega} = C \times [(1 + 2M^2 \times \cos^2(\theta + \theta_0))(\text{erf}(M \times \cos(\theta + \theta_0)) + 1)] \times e^{-M^2 \sin^2(\theta + \theta_0)} \quad (1)$$

$C = \frac{NLR^2}{4}$ , N est le nombre de molécules par unité de volume de gaz contenues dans la trace de géométrie cylindrique de longueur L et de rayon R. M représente le nombre de Mach de la vitesse d'écoulement, défini comme étant le rapport entre la vitesse du flux gazeux de particules émises et la vitesse du son  $a_0$  dans le gaz, soit  $M = \frac{u}{a_0}$ ,  $a_0^2$  correspondant à

$\frac{5}{3} \times \frac{k_B T_0}{M}$ ,  $k_B$  étant la constante de Boltzmann,  $T_0$  la température du gaz et M la masse moléculaire. La fonction erf correspond à la fonction erreur, dont l'expression est :

$$\text{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n x^{2n+1}}{n!(2n+1)}$$

La largeur de la distribution angulaire est reliée, par l'équation (1), à la vitesse d'éjection des particules, M. La figure 19 présente l'évolution de la distribution angulaire pour différentes valeurs de M. Lorsque M augmente, la largeur de la distribution angulaire diminue. Ainsi, avec ce formalisme, la mesure de la largeur de la distribution nous donne indirectement accès à la vitesse d'éjection des atomes d'uranium.

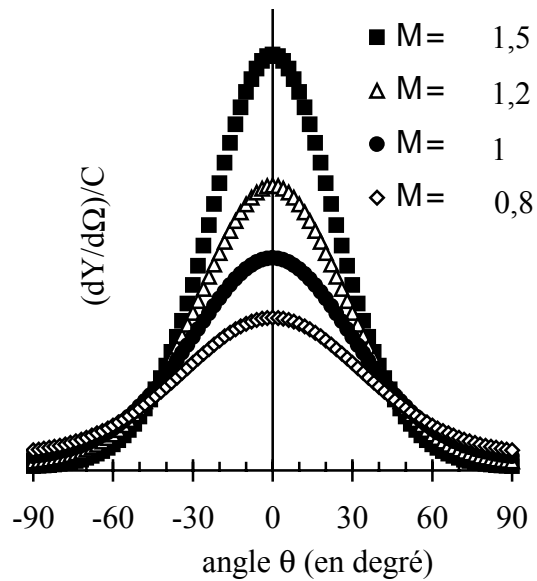


figure 19 : évolution de  $\left(\frac{dY}{d\Omega}\right)/C$ , issue de l'équation (1), en fonction de l'angle d'émission  $\theta$ , pour différentes valeurs de M



Pour chaque faisceau d'ions projectiles les distributions angulaires sont ajustées par l'expression (1) ; les paramètres d'ajustement sont : C, M et  $\theta_0$  (représentant le décalage par rapport à  $0^\circ$  de l'amplitude maximale de la distribution angulaire). Le tableau 4 résume, pour chaque ion projectile, les valeurs de ces trois paramètres.

Ions projectiles	Angle d'incidence $\Psi$	$\left. \frac{dE}{dx} \right _e$ (keV/nm)	$C \times [(1 + 2M^2 \times \cos^2(\theta + \theta_0))(\operatorname{erf}(M \times \cos(\theta + \theta_0)) + 1)] \times e^{-M^2 \sin^2(\theta + \theta_0)}$		
			C	$\theta_0$	M
$^{238}\text{U}^{55+}$	$0^\circ$	55,4	10,04	$0,00^\circ$	$1,14 \pm 0,05$
$^{208}\text{Pb}^{53+}$	$0^\circ$	54,1	10,29	$0,00^\circ$	$1,04 \pm 0,10$
$^{129}\text{Xe}^{44+}$	$0^\circ$	33,8	3,35	$-3,63^\circ$	$1,34 \pm 0,04$
$^{116}\text{Sn}^{36+}$	$0^\circ$	32,8	2,89	$-4,30^\circ$	$1,08 \pm 0,01$
$^{78}\text{Kr}^{32+}$	$0^\circ$	18,0	1,78	$1,10^\circ$	$1,15 \pm 0,01$
$^{40}\text{Ar}^{17+}$	$0^\circ$	5,7	0,13	$2,30^\circ$	$1,27 \pm 0,03$
$^{78}\text{Kr}^{32+}$	$45^\circ$	32,8	2,30	$0,46^\circ$	$1,58 \pm 0,08$
$^{208}\text{Pb}^{53+}$	$60^\circ$	54,1	14,85	$10,38^\circ$	$1,57 \pm 0,02$
$^{129}\text{Xe}^{44+}$	$60^\circ$	33,8	5,70	$1,54^\circ$	$1,76 \pm 0,03$
$^{70}\text{Kr}^{27+}$	$60^\circ$	18,2	2,95	$2,24^\circ$	$1,44 \pm 0,03$

tableau 4: récapitulatif des valeurs des paramètres d'ajustement de la fonction d'écoulement gazeux supersonique obtenues pour chaque distribution

Quel que soit l'ion projectile et quelle que soit son incidence, le paramètre M est toujours supérieur à 1 : il varie de 1,04 à 1,76. Le nombre de Mach M étant défini comme le rapport entre la vitesse du flux gazeux de particules émises et la vitesse du son  $a_0$  dans le gaz, les particules d'uranium sont pulvérisées avec une vitesse supérieure à celle du son dans le matériau. Ainsi, à partir du modèle d'écoulement gazeux supersonique nous obtenons une estimation de la vitesse d'éjection des particules pulvérisées, cette information nous était totalement inconnue jusqu'à présent.

La courbe en trait plein de la figure 17 présente le résultat de l'ajustement, avec la fonction d'écoulement gazeux supersonique, de la distribution angulaire des particules d'uranium éjectées, à une vitesse  $u$  d'environ  $1,6 \times a_0$ , lors de l'impact d'ions  $^{208}\text{Pb}^{53+}$  pour une incidence  $\psi=60^\circ$ . Les « ailes » de cette distribution, comme pour la plupart des autres distributions angulaires, sont nettement mieux ajustées avec cette courbe de tendance qu'avec celle en  $(\cos\theta)^n$ . La valeur de M obtenue par cet ajustement est reportée dans la figure 20 présentant

l'évolution du nombre de Mach de la fonction d'écoulement gazeux supersonique en fonction du pouvoir d'arrêt électronique.

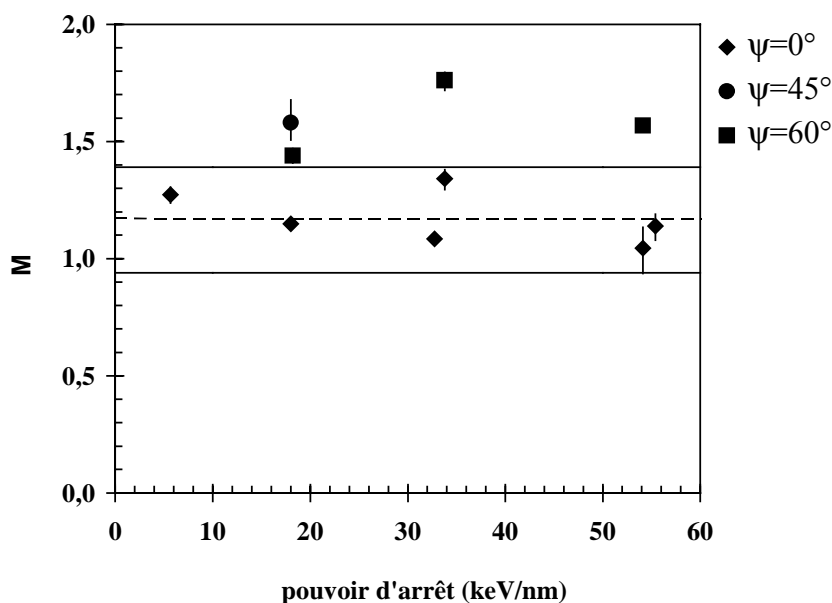


figure 20 : évolution des valeurs de  $M$  en fonction du pouvoir d'arrêt électronique

Les résultats de la figure 20 nous conduisent aux mêmes observations que celles faites avec la loi en cosinus : il n'y a pas de dépendance de la largeur de la distribution angulaire avec le pouvoir d'arrêt électronique. Ainsi,  $M$  est approximativement constant avec une valeur moyenne de  $1,17 \pm 0,22$  pour  $\psi=0^\circ$ . Les valeurs de  $M$  obtenues à  $\psi \neq 0^\circ$  sont comprises entre 1,44 et 1,76 ; elles sont donc supérieures aux valeurs obtenues à  $\psi=0^\circ$ , ce qui indique que les particules sont pulvérisées à plus grande vitesse en incidence oblique.

Dans ce paragraphe, nous avons exposé les différents ajustements des données expérimentales avec les deux courbes de tendance présentées ci-dessus et, nous en concluons qu'aucune des deux fonctions n'est plus à même de décrire les distributions angulaires. Cependant, la fonction proposée par R. Moshhammer, issu d'un modèle d'écoulement gazeux supersonique s'accorde mieux avec nos distributions angulaires, en particulier dans la région des « ailes ». Dans le cadre de ce modèle, cela confirmerait l'aspect très directionnel de l'éjection, semblant correspondre à une détente brutale d'un gaz à la surface de la cible de  $\text{UO}_2$ . Malgré la bonne concordance entre nos données et les courbes de tendance, aucune corrélation évidente entre les paramètres d'ajustement,  $n$  et  $M$ , et le pouvoir d'arrêt électronique n'apparaît. Nous allons maintenant découvrir comment, à l'aide de ces courbes

de tendance, nous déterminons les rendements totaux d'atomes d'uranium pulvérisés de la cible de dioxyde d'uranium par les ions lourds projectiles.

## II.2 - Détermination des rendements de pulvérisation

Le rendement total de pulvérisation d'atomes d'uranium,  $Y$ , est obtenu par intégration du rendement différentiel de pulvérisation,  $\frac{dY}{d\Omega}$ , sur tous les angles solides

d'émission, conduisant à l'expression :  $Y = \int_0^{\frac{\pi}{2}} 2\pi \times \sin\theta \times \frac{dY}{d\Omega}(\theta) d\theta$ .

Nous allons maintenant présenter, pour chaque courbe de tendance, les valeurs des rendements totaux,  $Y$ , d'atomes d'uranium pulvérisés.

### II.2.1 - Fonction en cosinus

Dans le cas de la fonction cosinus, le rendement total d'atomes d'uranium pulvérisés,

$Y$ , est obtenu analytiquement par l'intégrale :  $Y = A \times 2\pi \times \int_0^{\frac{\pi}{2}} (\cos\theta)^n \times \sin\theta d\theta$ . Par simple

intégration,  $Y$  est alors équivalent à :  $Y \approx A \times 2\pi \times \frac{1}{n+1}$ . Les rendements totaux d'atomes

d'uranium pulvérisés obtenus pour chaque ion projectile sont résumés dans le tableau 5.

Ions projectiles	Angle d'incidence $\psi$	$\frac{dE}{dx} _e$ (keV/nm)	Y	$Y_{\min}^7$	$Y_{\max}^8$
$^{238}\text{U}^{55+}$	0°	55,4	<b>97,5</b>	86,9	108,3
$^{208}\text{Pb}^{53+}$	0°	54,1	<b>94,7</b>	81,3	108,6
$^{129}\text{Xe}^{44+}$	0°	33,8	<b>34,1</b>	30,7	37,5
$^{116}\text{Sn}^{36+}$	0°	32,8	<b>28,1</b>	26,2	29,9
$^{78}\text{Kr}^{32+}$	0°	18,0	<b>17,5</b>	16,3	18,6
$^{40}\text{Ar}^{17+}$	0°	5,7	<b>1,3</b>	1,2	1,4
$^{78}\text{Kr}^{32+}$	45°	18,0	<b>25,4</b>	23,9	26,8
$^{208}\text{Pb}^{53+}$	60°	54,1	<b>163,0</b>	151,8	174,3
$^{129}\text{Xe}^{44+}$	60°	33,8	<b>65,2</b>	59,3	71,2
$^{70}\text{Zn}^{27+}$	60°	18,2	<b>32,2</b>	29,9	34,5

tableau 5 : récapitulatif des rendements totaux d'atomes d'uranium pulvérisés obtenus par intégration de la courbe de tendance en cosinus

## II.2.2 - Fonction issue d'un modèle gazeux supersonique

Les distributions angulaires, représentant l'évolution des rendements différentiels,  $\frac{dY}{d\Omega}$ , en fonction de l'angle d'émission  $\theta$ , peuvent être ajustées par une fonction de la forme

$$\frac{dY}{d\Omega} = C \times [(1 + 2M^2 \times \cos^2(\theta + \theta_0))(\text{erf}(M \times \cos(\theta + \theta_0)) + 1)] \times e^{-M^2 \sin^2(\theta + \theta_0)}. \quad \text{Ainsi, le}$$

rendement total de pulvérisation d'atomes d'uranium est obtenu en intégrant le rendement différentiel total,  $\frac{dY}{d\Omega}(\theta)$ , sur tous les angles solides d'émission, ce qui mène à l'expression :

$$Y = C \times 2\pi \times \int_0^{\frac{\pi}{2}} [(1 + 2M^2 \times \cos^2(\theta + \theta_0))(\text{erf}(M \times \cos(\theta + \theta_0)) + 1)] \times e^{-M^2 \sin^2(\theta + \theta_0)} \times \sin\theta d\theta.$$

Les rendements totaux d'atomes d'uranium pulvérisés, calculés numériquement pour chaque faisceau d'ions projectiles, sont présentés dans le tableau 6.

<sup>7</sup> Les rendements minimum sont obtenus par intégration des courbes de tendance ajustant les évolutions angulaires  $(dY/d\Omega)_{\min}$  en fonction de  $\theta$ .

<sup>8</sup> Les rendements maximum sont obtenus par intégration des courbes de tendance ajustant les évolutions angulaires  $(dY/d\Omega)_{\max}$ , en fonction de  $\theta$ .

Ions projectiles	Angle d'incidence $\psi$	$\left. \frac{dE}{dx} \right _e$ (keV/nm)	Y	Y <sub>min</sub>	Y <sub>max</sub>
$^{238}\text{U}^{55+}$	0°	55,4	<b>108,3</b>	95,9	121,0
$^{208}\text{Pb}^{53+}$	0°	54,1	<b>103,3</b>	88,3	118,8
$^{129}\text{Xe}^{44+}$	0°	33,8	<b>45,2</b>	40,9	49,5
$^{116}\text{Sn}^{36+}$	0°	32,8	<b>36,6</b>	33,9	39,3
$^{78}\text{Kr}^{32+}$	0°	18,0	<b>19,1</b>	17,9	20,3
$^{40}\text{Ar}^{17+}$	0°	5,7	<b>1,4</b>	1,3	1,5
$^{78}\text{Kr}^{32+}$	45°	18,0	<b>26,9</b>	25,5	28,8
$^{208}\text{Pb}^{53+}$	60°	54,1	<b>119,2</b>	115,9	127,5
$^{129}\text{Xe}^{44+}$	60°	33,8	<b>64,0</b>	57,6	70,1
$^{70}\text{Zn}^{27+}$	60°	18,2	<b>31,3</b>	29,1	33,4

tableau 6 : récapitulatif des rendements totaux d'atomes d'uranium pulvérisés obtenus par intégration de la courbe de tendance modélisant un écoulement gazeux supersonique

### II.2.3 - Analyse des rendements de pulvérisation

Les rendements d'atomes d'uranium pulvérisés, déduits de l'intégration des courbes de tendance en cosinus et décrivant un écoulement gazeux supersonique, sont présentés dans les figures 22 et 23.

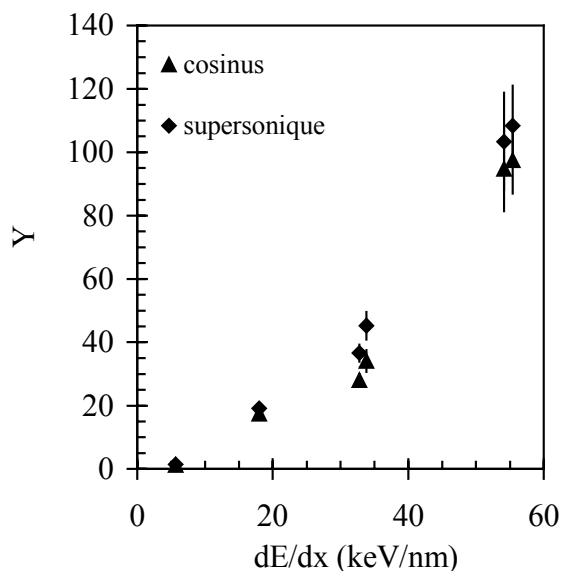


figure 21 : évolution des rendements d'atomes d'uranium pulvérisés, Y, en fonction du pouvoir d'arrêt électronique, en incidence normale ( $\psi=0^\circ$ ) Les rendements sont déduits à partir des courbes de tendance en cosinus et issue du modèle d'écoulement gazeux.

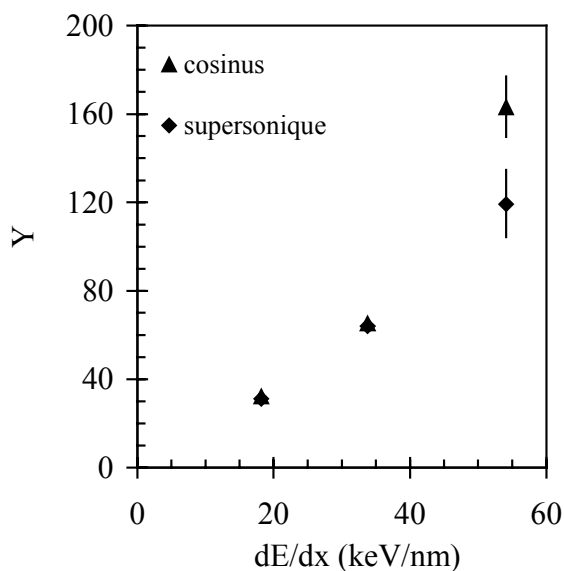


figure 22 : évolution des rendements d'atomes d'uranium pulvérisés, Y, en fonction du pouvoir d'arrêt électronique, en incidence oblique ( $\psi=60^\circ$ ) Les rendements sont déduits à partir des courbes de tendance en cosinus et issue du modèle d'écoulement gazeux.

Dans le cas d'ions projectiles en incidence normale, la figure 21 montre que les rendements de pulvérisation d'atomes d'uranium,  $Y$ , dépendent peu de la fonction d'ajustement utilisée pour décrire les distributions angulaires. A  $\psi=45^\circ$  et à  $\psi=60^\circ$ , les rendements obtenus par intégration des deux courbes d'ajustement donnent également à peu près les mêmes valeurs (tableaux 6 et 7). Cependant, à  $\psi=60^\circ$  (figure 22) pour les ions projectiles  $^{208}\text{Pb}^{53+}$ , le rendement  $Y$  déduit de l'intégration de la fonction en cosinus est plus élevé qu'avec le modèle d'écoulement gazeux supersonique. Ceci s'explique par le fait qu'à mi-hauteur la courbe de tendance de la fonction en cosinus est plus large que celle obtenue à partir du modèle d'écoulement gazeux supersonique (figures 16 et 17).

Comme nous l'avons vu au chapitre 2 (§ III.3.2), les rendements de pulvérisation dépendent fortement du matériau cible, variant de 0,01 pour le Si <111> à 30000 dans le cas de l'iodure de césium, CsI. Si nous nous intéressons plus particulièrement au dioxyde d'uranium, les valeurs des rendements de pulvérisation mesurées dans notre étude sont comprises entre celles trouvées par J.P. Biersack et collaborateurs [*Biersack 1974*]<sup>9</sup>,  $Y$  variant de 100 à 1000, et celle trouvée par C.K. Meins et collaborateurs [*Meins 1983*]<sup>10</sup>,  $Y=0,06$ . Cependant, le fait que les rendements soient obtenus sur une gamme d'énergie très différente rend la comparaison extrêmement délicate.

Notons également, l'effet de vitesse que nous avons observé expérimentalement sur les rendements d'atomes d'uranium pulvérisés lors de l'impact d'ions  $^{208}\text{Pb}^{53+}$  de 29 MeV/uma<sup>11</sup> : environ 50 atomes d'uranium sont éjectés de la cible de  $\text{UO}_2$ , alors que le rendement est trois fois plus élevé pour des ions projectiles  $^{208}\text{Pb}^{53+}$  de 4,5 MeV/uma.

Nous allons maintenant nous intéresser aux évolutions des rendements de pulvérisation des atomes d'uranium,  $Y$ , en fonction du pouvoir d'arrêt électronique, pour des angles d'incidence  $\psi=0^\circ$  et  $\psi=60^\circ$ . Les graphiques des figures 23 et 24 montrent, en échelle logarithmique, les évolutions des rendements de pulvérisation, déduits de l'intégration de la fonction du modèle d'écoulement gazeux supersonique, en fonction du pouvoir d'arrêt électronique.

<sup>9</sup> Pulvérisation de  $\text{UO}_2$  par des fragments de fission d'énergie environ 100 MeV, dont le pouvoir d'arrêt électronique correspond à 18 MeV/mg/cm<sup>2</sup>.

<sup>10</sup> Pulvérisation de  $\text{UO}_2$  par des ions  $^{35}\text{Cl}$  de 20 MeV, correspondant à un pouvoir d'arrêt électronique d'environ 9 keV/nm.

<sup>11</sup> Cette expérience a été réalisée avec un faisceau d'ions lourds issu de la ligne haute énergie du GANIL. Les rendements de pulvérisation d'atomes d'uranium sont obtenus par la méthode du collecteur couplée à une analyse RBS.

Le résultat obtenu lors d'expériences de pulvérisation, réalisées au Laboratoire Pierre Süe [Bonnin 1997] avec un monocristal de  $\text{UO}_2$  est inclus dans la figure 23. Ce résultat indique un rendement de  $6 \times 10^{-3}$  atomes d'uranium éjectés par impact d'ions projectiles  $^2\text{He}^+$  d'énergie 3,5 MeV, correspondant à un pouvoir d'arrêt électronique d'environ 0,4 keV/nm.

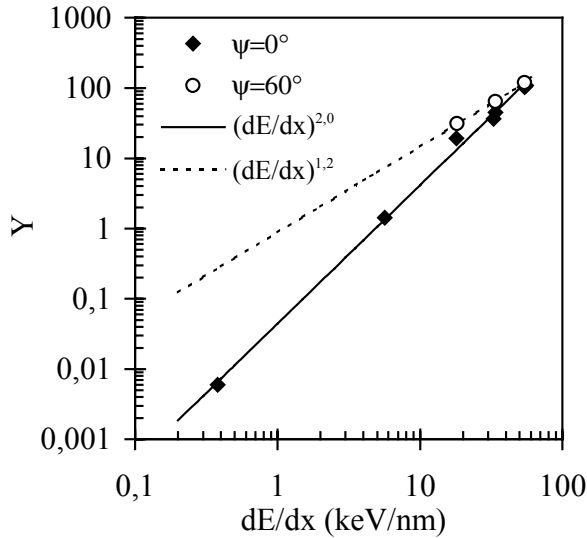


figure 23 : évolution des rendements de pulvérisation, déduits de la courbe de tendance du modèle d'écoulement gazeux supersonique, en fonction du pouvoir d'arrêt électronique

Le plus faible rendement de pulvérisation est obtenu pour des ions projectiles  $^2\text{He}^+$  de 3,5 MeV.

Les rendements varient pour  $\psi=0^\circ$  comme  $(dE/dx)^{2,0}$  et pour  $\psi=60^\circ$  comme  $(dE/dx)^{1,2}$ .

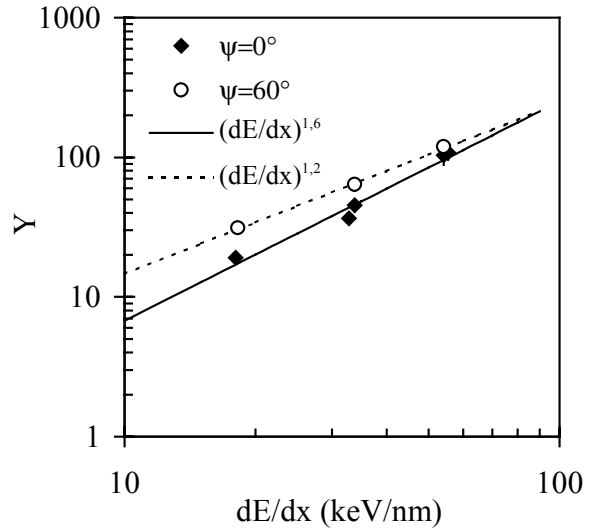


figure 24 : évolution des rendements de pulvérisation, déduits de la courbe de tendance du modèle d'écoulement gazeux supersonique, en fonction du pouvoir d'arrêt électronique

Seuls les rendements se situant au-dessus du seuil de création de traces dans  $\text{UO}_2$  sont reportés sur ce graphe. Les rendements varient pour  $\psi=0^\circ$  comme  $(dE/dx)^{1,6}$  et pour  $\psi=60^\circ$  comme  $(dE/dx)^{1,2}$ .

Les rendements de pulvérisation varient suivant une loi de la forme :  $a \times \left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^m$

(figure 25). Une variation en  $\left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)$  à la puissance 2,0 est observée en incidence normale, quelle que soit la fonction d'ajustement utilisée pour déduire les rendements de pulvérisation.

Un comportement en  $\left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^2$  des rendements de pulvérisation est prédit par le modèle de pulvérisation par évaporation thermique [Evatt 1980, Johnson 1987a, Johnson 1991], comme nous l'avons vu au chapitre 2. Dans le cadre de ce modèle, les distributions angulaires présentent une forme en  $(\cos\theta)^1$ , c'est-à-dire loin des fonctions en cosinus avec lesquelles nous avons ajusté les distributions angulaires. Nos résultats ne sont donc pas interprétables

avec un modèle simple de pulvérisation par évaporation thermique. Cependant, les rendements de pulvérisation,  $Y$ , obtenus avec les faisceaux d'ions projectiles  ${}^2\text{He}^+$  et  ${}^{40}\text{Ar}^{17+}$  se trouvent en dessous du seuil de création de traces dans  $\text{UO}_2$ . Ainsi, la pulvérisation observée avec ces ions pourrait résulter d'un autre mécanisme. Si ces deux points ne sont pas pris en compte, le rendement de pulvérisation varie comme  $\left(\frac{dE}{dx}\Big|_e\right)^{1,6}$  (figure 24).

Une variation en  $\left(\frac{dE}{dx}\Big|_e\right)^{1,5}$  est proposée par le modèle d'onde de choc. Cependant, comme nous avons vu précédemment (tableau 2), les distributions angulaires des atomes d'uranium pulvérisés sont en total contradiction avec les évolutions prédites par le modèle d'onde choc.

En conclusion, si nous considérons à la fois les résultats concernant les distributions angulaires et les évolutions suivant une loi de la forme  $a \times \left(\frac{dE}{dx}\Big|_e\right)^m$ , ceux-ci ne sont pas interprétables par l'un des modèles de pulvérisation décrit dans le chapitre 2.

Nous allons maintenant considérer une variation des rendements de pulvérisation de la forme :  $b \times \left(\frac{dE}{dx}\Big|_e\right)^p + c$ . La pertinence du paramètre  $c$  est liée à la supposition que la pulvérisation ne résulte pas d'un seul et unique mécanisme. En effet, les ions projectiles  ${}^2\text{He}^+$  et  ${}^{40}\text{Ar}^{17+}$  induisent de la pulvérisation, alors que les pouvoirs d'arrêt de ces ions sont nettement en dessous du seuil de création de traces dans  $\text{UO}_2$ . Il ne semble donc pas déraisonnable de penser que la pulvérisation puisse être induite par un mécanisme autre que la création de traces (représenté par le paramètre  $c$ ), d'une part, et par la création de traces (liée à  $b \times \left(\frac{dE}{dx}\Big|_e\right)^p$ ), d'autre part.



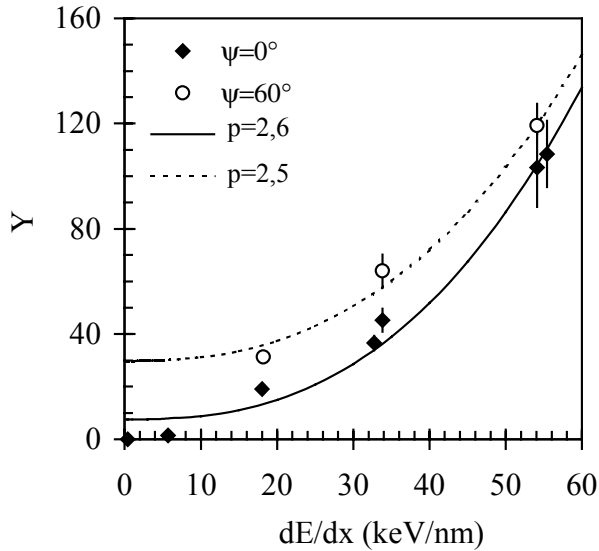


figure 25 : évolution des rendements de pulvérisation, déduits de la courbe de tendance du modèle d'écoulement gazeux supersonique, en fonction du pouvoir d'arrêt électronique  
 Le plus faible rendement de pulvérisation est obtenu pour des ions projectiles  ${}^2\text{He}^+$  de 3,5 MeV.  
 Les rendements varient comme  $(dE/dx)^{2,6}$  pour  $\psi=0^\circ$  et comme  $(dE/dx)^{2,5}$  pour  $\psi=60^\circ$ .

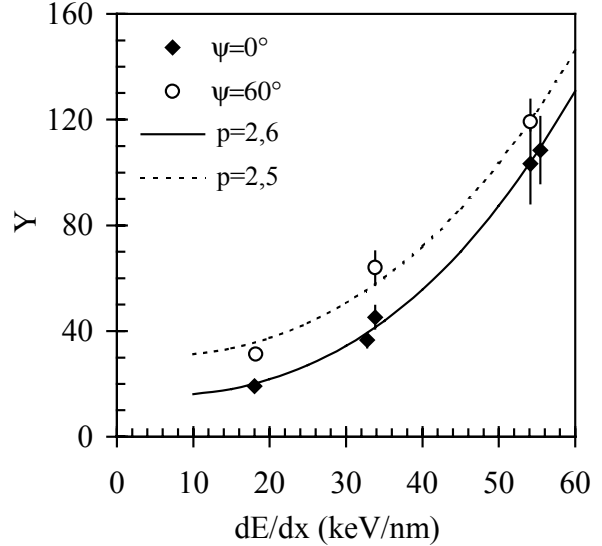


figure 26 : évolution des rendements de pulvérisation, déduits de la courbe de tendance du modèle d'écoulement gazeux supersonique, en fonction du pouvoir d'arrêt électronique  
 Seuls les rendements se situant au-dessus du seuil de création de traces dans  $\text{UO}_2$  sont reportés dans ce graphe.  
 Les rendements varient comme  $(dE/dx)^{2,6}$  pour  $\psi=0^\circ$  et comme  $(dE/dx)^{2,5}$  pour  $\psi=60^\circ$ .

Quelle que soit la fonction d'ajustement utilisée pour le calcul des rendements de pulvérisation, la puissance  $p$  de la loi en puissance  $b \times \left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^p + c$  est égale à 2,5 (figure 25). Cette valeur de l'exposant est identique si les rendements de pulvérisation situés en dessous du seuil de création de traces ne sont pas pris en compte. Notons de plus que la puissance  $p$  de la loi  $b \times \left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^p + c$ , ne semble pas être influencée par l'angle d'incidence des ions projectiles, puisque  $p=2,6$  pour  $\psi=0^\circ$  et  $p=2,5$  pour  $\psi=60^\circ$  (figure 26).

La puissance  $p$  étant comprise entre 2 et 3, nous pouvons interpréter l'évolution des rendement de pulvérisation d'atomes d'uranium soit avec les prédictions en  $\left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^2$ , comme nous l'avons fait précédemment, soit avec les prédictions en  $\left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^3$ . Dans le cadre de ces dernières prédictions aucune indication n'est mentionnée sur la loi en puissance à considérer,

cela peut donc très bien être une loi de la forme  $b \times \left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^p + c$  avec  $c \neq 0$  et non une variation

simple en  $b \times \left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^p$  avec  $c=0$ . La dépendance des rendements de pulvérisation en  $\left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^3$

est proposée par deux modèles de pulvérisation : le flux gazeux et celui l'impulsion de pression. Dans le cas du modèle de pulvérisation par flux gazeux, les distributions angulaires sont de la forme  $(\cos \theta)^n$ , avec l'hypothèse d'une distribution plus « piquée », c'est-à-dire un exposant  $n > 1$ , si la vitesse du flux gazeux est élevée [Kelly 1990] ou si des collisions ont lieu dans le flux gazeux lors de l'éjection [Urbassek 1987] ; aucune information n'est donnée sur la valeur que pourrait alors prendre l'exposant  $n$  de la fonction cosinus. Notons que les modèles d'écoulement gazeux supersonique et de flux gazeux s'appuient tous deux sur la cinétique des gaz ; la seule différence entre ces deux modèles réside dans le fait que R. Moshhammer définit une vitesse,  $u$ , d'éjection des atomes d'uranium pulvérisés pour le modèle d'écoulement gazeux supersonique. Ainsi, grâce à ce modèle, nous déterminons le

nombre de Mach, correspondant à  $M = \frac{u}{a_0}$ , par ajustement des distributions angulaires des

atomes d'uranium pulvérisés. Puisque  $M > 1$ , la vitesse d'éjection,  $u$ , des atomes d'uranium pulvérisés est supersonique. Dans ce cas, la pulvérisation doit être caractérisée par un choc, nous ramenant ainsi aux modèles de pulvérisation par choc et plus précisément au modèle d'impulsion de pression qui propose une dépendance des rendements de pulvérisation en

$\left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^3$ . Cependant, comme nous l'avons vu précédemment, les prédictions de ce modèle

concernant l'allure des distributions angulaires à  $\psi=0^\circ$  sont en total désaccord avec nos observations qui sont les suivantes : quel que soit l'ion projectile et son incidence, les particules sont pulvérisées préférentiellement dans la direction perpendiculaire à la cible. Toutefois, à  $\psi=60^\circ$ , le modèle d'impulsion de pression proposé par R.E. Johnson et collaborateurs [Johnson 1989] indique un angle préférentiel d'éjection par rapport à la normale à la cible plus proche de  $0^\circ$  que de  $45^\circ$ , laissant ainsi un grand facteur d'acceptabilité.

La comparaison de l'évolution des rendements de pulvérisation à  $\psi=0^\circ$  et  $\psi=60^\circ$  nous apporte également d'autres informations. En effet, puisque que les distributions angulaires ne semblent pas être influencées par l'angle d'incidence des ions projectiles, le fait d'irradier à

$\psi=0^\circ$  est équivalent à irradier à  $\psi=60^\circ$  en tenant compte, en incidence oblique, de la perte d'énergie plus importante dans les premiers nanomètres sous la surface. Afin de prendre en considération cette épaisseur supplémentaire traversée dans l'expression du pouvoir d'arrêt, nous utilisons un pouvoir d'arrêt effectif, noté  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_{\text{eff}} = \frac{dE/dx}{\cos \psi}$ . Les valeurs expérimentales de

$Y$  sont reportées en fonction du pouvoir d'arrêt effectif,  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_{\text{eff}}$ , dans la figure 27 pour  $\psi=0^\circ$  et pour  $\psi=60^\circ$ .

Etant donné qu'à un pouvoir d'arrêt effectif d'environ 35 keV/nm,  $Y$  est quasi-identique quel que soit l'angle d'incidence des ions projectiles, l'épaisseur sur laquelle se fait la pulvérisation est la même. **Ce sont donc les atomes d'uranium de la surface qui sont pulvérisés.**

Néanmoins, ceci n'est plus vérifié lorsque

$\left. \frac{dE}{dx} \right|_{\text{eff}} > 50 \text{ keV/nm}$  (figure 27).

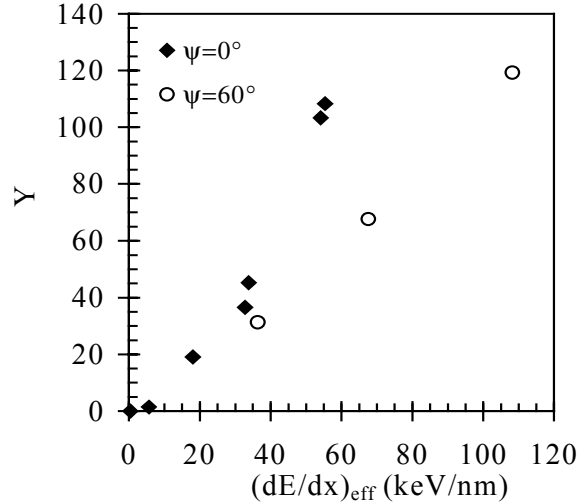


figure 27 : évolution des rendements de pulvérisation  $Y$  en fonction du pouvoir d'arrêt effectif,  $(dE/dx)_{\text{eff}}$ , pour  $\psi=0^\circ$  et  $\psi=60^\circ$

L'analyse de l'évolution des rendements de pulvérisation nous permet de conclure que les atomes d'uranium proviennent de la surface de la cible de  $\text{UO}_2$ . En revanche, le manque de données ne nous permet pas de conclure à une dépendance des rendements de pulvérisation en

$\left( \left. \frac{dE}{dx} \right|_e \right)^2$  où en  $\left( \left. \frac{dE}{dx} \right|_e \right)^3$ . Au vu des résultats, il ne semble pas non plus déraisonnable

d'imaginer l'existence de deux régimes, l'un pour les faibles pouvoirs d'arrêt électronique et l'autre pour les forts pouvoirs d'arrêt électronique. Ces deux régimes pourraient être liés à un changement du rayon ou de la morphologie des traces induites par les ions lourds projectiles dans le dioxyde d'uranium. Nous allons donc maintenant nous intéresser à l'évolution des rayons de traces en fonction du pouvoir d'arrêt électronique, afin de découvrir si, dans le dioxyde d'uranium, nous observons un changement de morphologie des traces induites par les ions lourds projectiles ou un seuil de création de traces, comme cela a été observé dans le grenat d'yttrium par A. Meftah et collaborateurs [Meftah 1993].

## III - Etude de l'endommagement induit par les ions lourds dans $\text{UO}_2$

L'objectif des expériences d'irradiation de cibles de dioxyde d'uranium par les ions lourds est double : le premier vise à quantifier les effets de l'irradiation à la surface de  $\text{UO}_2$  et le second cherche à relier l'endommagement créé dans  $\text{UO}_2$  à la matière pulvérisée.

### III.1 - Le dioxyde d'uranium

#### III.1.1 - Structure cristallographique et électronique de $\text{UO}_2$

$\text{UO}_2$  est une céramique cubique à face centrée avec un arrangement des atomes similaire à celui de la fluorine,  $\text{CaF}_2$  (figure 28), de paramètre de maille  $a_0=(5,470\pm 0,001)$  Å [Gronvold 1955] et de densité de  $10,952 \text{ g/cm}^3$  [Belle 1961].

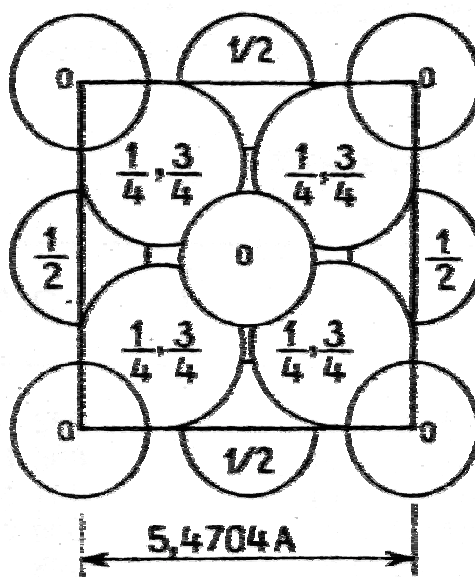


figure 28 : structure du dioxyde d'uranium  
 U cotes 0 et  $\frac{1}{2}$   
 O cotes  $\frac{1}{4}$  et  $\frac{3}{4}$

Dans le dioxyde d'uranium, la liaison entre les atomes d'uranium (réseau cationique  $U^{4+}$ ) et les atomes d'oxygène (réseau anionique  $O^{2-}$ ) est essentiellement **ionique** [Blank 1970] (figure 29). De plus, la valeur du gap, c'est-à-dire la bande d'énergie interdite séparant la bande de valence et la bande de conduction, vaut environ 5 eV, et la largeur de la bande de conduction correspond à 6 eV [Kelly 1987].

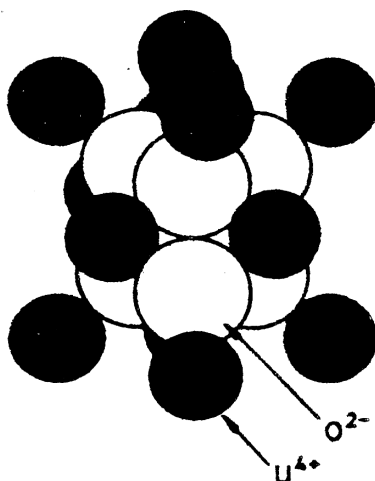


figure 29 : maille élémentaire de  $UO_2$   
Le réseau cationique,  $U^{4+}$ , est en noir et le réseau anionique,  $O^{2-}$ , est en blanc.

### III.1.2 - Nos pastilles de $UO_2$

Les pastilles de  $UO_2$ , enrichies en uranium 235 utilisées pour les expériences de pulvérisation étant peu nombreuses, il ne nous a pas été possible d'utiliser ces dernières pour les expériences d'endommagement. Les cibles de  $UO_2$  utilisées lors des expériences d'endommagement sont des pastilles frittées et non enrichies, préparées par F. Garrido au CSNSM à Orsay. Ces dernières sont polies, puis recuites à  $1400^\circ C$  sous un flux  $Ar/H_2$  dans un rapport 90/10, afin d'éliminer les

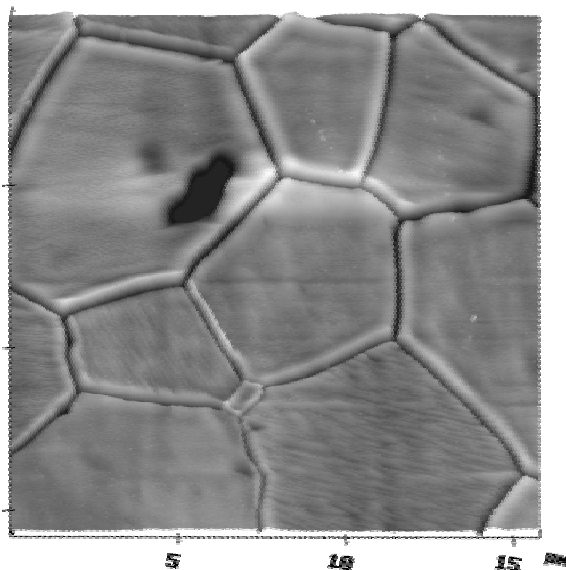


figure 30 : image obtenue par microscopie à force atomique (AFM) d'une surface de  $UO_2$

défauts produits par le traitement mécanique et d'ajuster la stœchiométrie du dioxyde d'uranium [Matzke 1983]. L'examen d'une cible non irradiée présente une structure formée de grains d'environ 6  $\mu\text{m}$  (figure 30).

### III.2 - Résultats antérieurs sur l'endommagement de $\text{UO}_2$

L'endommagement du dioxyde d'uranium a été beaucoup étudié dans le domaine du pouvoir d'arrêt nucléaire grâce à l'existence d'implanteurs d'ions à basse énergie [Matzke 1990, Matzke 1992, Tuross 1993, Tuross 1994], mais nettement moins dans le domaine du pouvoir d'arrêt électronique. Cependant, dans les années soixante, Whapham & Makin [Whapham 1962] ont étudié l'endommagement du dioxyde d'uranium par des fragments de fission. Les fragments de fission sont des ions d'énergie environ 100 MeV, de numéros atomiques variant autour de  $Z=36$  et  $Z=54$  et dont le pouvoir d'arrêt électronique est environ 10 keV/nm. Ces auteurs [Whapham 1962] observent, par microscopie électronique en transmission, des traces en forme d'aiguille, caractéristiques des traces de fission, dans des films de  $\text{UO}_2$  d'une épaisseur de 23 nm et de taille moyenne de grains d'environ 3 nm. Pour des films de  $\text{UO}_2$  dont la taille moyenne des grains est supérieure à 10 nm, aucune trace n'est observée. Ces auteurs observent également des traces mais de nature différente dans des monocristaux de  $\text{UO}_2$  irradiés. Ces traces, de forme cylindrique, correspondent à une désorientation cristallographique.

Même pour de forts taux de déplacements, à des énergies de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de keV,  **$\text{UO}_2$  ne s'amorphise pas** [Matzke 1996a], contrairement à d'autres oxydes tels que l'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) ou l'oxyde de titane ( $\text{TiO}_2$ ). Ce résultat confirme également les observations faites par Matzke & Whitton [Matzke 1966] selon lesquelles un grand nombre d'oxydes non cubiques, tels que  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ou  $\text{U}_3\text{O}_8$ , peuvent s'amorphiser sous irradiation aux ions lourds, alors que de nombreux matériaux de structure cubique, tel que le dioxyde d'uranium, restent stables, même à des fluences élevées. Ce classement a également été établi par Naguib & Kelly [Naguib 1975], qui considèrent qu'un matériau s'amorphise sous irradiation lorsque son ionicité est inférieure ou égale à 0,47, la stabilité structurale étant conservée lorsque l'ionicité est supérieure à 0,60 (figure 31).

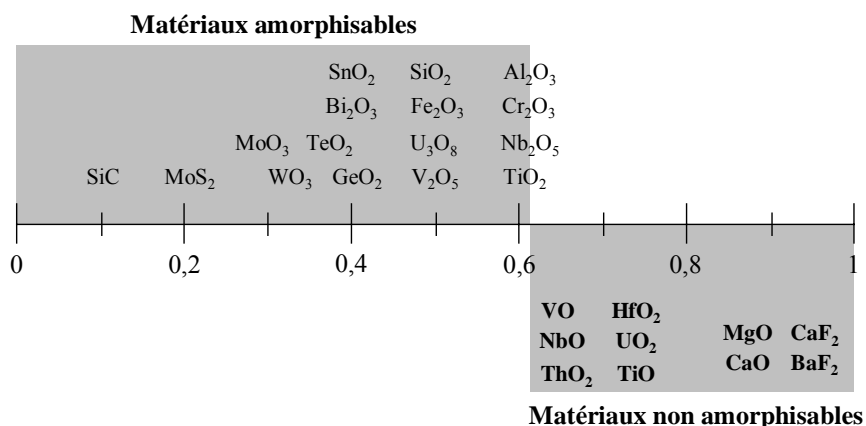


figure 31 : classement des isolants en fonction de leur caractère plus ou moins ionique, indiquant la relation entre amorphisation et ionicité [Naguib 1975]

Ainsi, d'après les classements proposés par Matzke & Whitton [Matzke 1966] et Naguib & Kelly [Naguib 1975], **le dioxyde d'uranium ne s'amorphise pas sous irradiation aux ions lourds**, la liaison entre les atomes d'uranium et les atomes d'oxygène étant essentiellement ionique.

Les travaux effectués sur l'endommagement du dioxyde d'uranium par des ions lourds dans le domaine d'énergie de l'ordre du GeV mettent en évidence deux types de phénomène :

- **la polygonisation**, c'est-à-dire la subdivision des grains en grains de plus petite taille. En effet, les modifications structurales, observées par RBS en canalisation, lors de l'irradiation de cibles de dioxyde d'uranium par des ions  $^{129}\text{Xe}^{18+}$  de 340 MeV et de pouvoir d'arrêt 35 keV/nm, ont été interprétées à l'aide d'un modèle de polygonisation [Garrido 1997]. Ce phénomène de polygonisation est probablement à rapprocher de la fragmentation des grains (effet rim) observée à la périphérie des pastilles de UO<sub>2</sub> ayant subies un fort taux de combustion [Matzke 1996b].
- **la formation de traces** induites par les ions lourds. T. Wiss, Hj. Matzke et collaborateurs [Wiss 1997a, Wiss 1997b, Matzke 2000] ont étudié l'évolution des diamètres des traces dans des cibles de dioxyde d'uranium pour différents ions lourds projectiles. Les traces induites par les ions lourds sont observées par microscopie électronique à transmission (MET). Afin d'utiliser cette technique de microscopie, il faut amincir les cibles de UO<sub>2</sub> irradiées par un traitement thermique et ionique [Wiss 1997b]. Les effets les plus notables sont observés sur des échantillons de UO<sub>2</sub> irradiés par des ions  $^{238}\text{U}$  et  $^{129}\text{Xe}$ . Les traces sont visibles en contraste de champ clair sous forme de spots clairs entourés par un anneau plus sombre. Dans le tableau 7, nous résumons l'ensemble

des principaux paramètres et des résultats obtenus pour le dioxyde d'uranium : le type d'ions projectiles, leur énergie, leur pouvoir d'arrêt électronique dans l'UO<sub>2</sub> et le rayon des traces observées.

Ions projectiles	Energie	$\left. \frac{dE}{dx} \right _e$ (keV/nm)	Rayon (nm)
<sup>238</sup> U	11,4 MeV/uma	56	4,4±0,5
<sup>238</sup> U	5,5 MeV/uma	59	4,8±0,5
<sup>129</sup> Xe	1,3 MeV/uma	29	1,7±0,2

tableau 7 : récapitulatif des conditions d'irradiation et des valeurs des rayons de traces mesurés par T. Wiss [Wiss 1997b]

Pour les ions projectiles <sup>129</sup>Xe de 1,3 MeV/uma, de pouvoir d'arrêt électronique 29 keV/nm, les traces sont rendues visibles par un recuit de l'échantillon à 900°C pendant 1h sous mélange Ar/H<sub>2</sub> afin d'éliminer les défauts ponctuels produits par le processus d'amincissement ionique. Nous pouvons d'ailleurs nous poser la question de l'effet du recuit sur le diamètre des traces... Aucune autre étude n'a été réalisée pour des ions lourds dont le pouvoir d'arrêt électronique est inférieur à 29 keV/nm. Cependant, dans le cas d'irradiation par des fragments de fission de <sup>235</sup>U, correspondant pour le fragment lourd à  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_e \approx 18$  keV/nm et pour le fragment léger à  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_e \approx 22$  keV/nm, des traces sont observées uniquement à la surface du dioxyde d'uranium et pas dans le volume. Ces observations permettent de conclure que le seuil de création de traces dans UO<sub>2</sub> se situe entre 22 et 29 keV/nm [Matzke 2000].

L'ensemble des résultats obtenus pour le dioxyde d'uranium est résumé dans la figure 32. Chaque point représente le rayon déduit de la trace laissée par l'impact d'ions lourds projectiles allant des ions <sup>129</sup>Xe aux ions <sup>238</sup>U.

Les résultats obtenus par MET présentent une évolution linéaire du rayon des traces en fonction du pouvoir d'arrêt électronique. Cette évolution linéaire nous permet de définir un seuil de création de

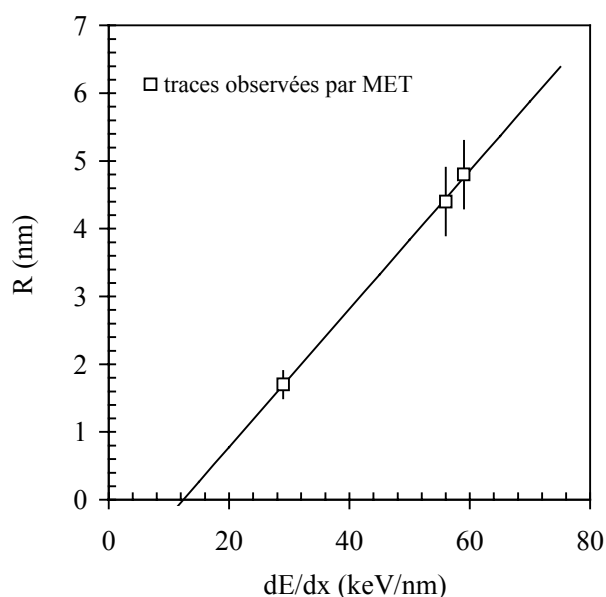


figure 32 : évolution des rayons de traces, observées par MET [Wiss 1997b] en fonction du pouvoir d'arrêt électronique



traces correspondant à environ 15 keV/nm (figure 32), alors que Hj. Matzke et collaborateurs [Matzke 2000] situent le seuil de création de traces entre 22 et 29 keV/nm.

Afin d'élargir la zone de pouvoir d'arrêt sur laquelle les rayons de traces ont été mesurés, nous avons réalisé d'autres expériences d'irradiation aux ions lourds du dioxyde d'uranium. Ces expériences sont présentées dans l'annexe 3. Dans cette annexe, nous donnons les raisons qui nous ont poussés à ne considérer que les traces observées par microscopie électronique. A partir de maintenant, nous considérerons uniquement les rayons de traces mesurés par T. Wiss ; ces rayons étant plus représentatifs des traces latentes induites par l'impact d'ions lourds dans UO<sub>2</sub> que ceux obtenus par microscopie à force atomique (annexe 3).

### III.3 - Comparaison entre l'évolution des rayons de trace et des rendements de pulvérisation

En couplant les résultats de pulvérisation et d'endommagement du dioxyde d'uranium par les ions lourds, nous allons pouvoir quantifier les observations faites précédemment. La figure 33 regroupe :

- les rendements de pulvérisation à  $\psi=0^\circ$ , déduits de l'intégration de l'ajustement par le modèle d'écoulement gazeux supersonique. Ces rendements ont été choisis puisque le meilleur ajustement des distributions angulaires est obtenu avec la fonction du modèle d'écoulement gazeux supersonique.
- les rayons des trace observées au MET [Wiss 1997b].

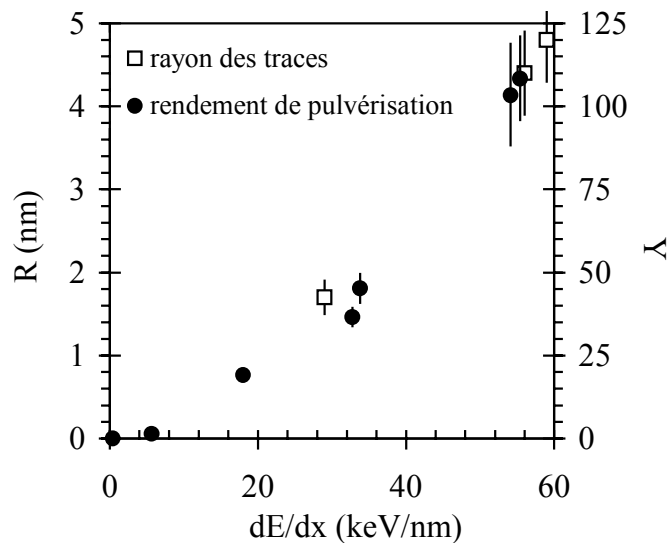


figure 33 : évolution des rayons de traces (carrés blancs) et des rendements de pulvérisation (cercles noirs) en fonction du pouvoir d'arrêt électronique

Connaissant le rayon des traces induites par l'impact d'ions projectiles et les rendements de pulvérisation en uranium, nous pouvons évaluer l'épaisseur de dioxyde d'uranium pulvérisée.

L'épaisseur, h, de UO<sub>2</sub> pulvérisée est calculée en utilisant l'expression suivante :  $h = \frac{Y}{N\pi R^2}$ ,

N étant égal à  $2,44 \times 10^{22}$  molécules de UO<sub>2</sub>/cm<sup>3</sup>, Y représentant le rendement d'atomes

d'uranium pulvérisés de la trace de rayon R. Cette épaisseur est également obtenue par l'intermédiaire du paramètre d'ajustement C du modèle d'écoulement gazeux supersonique. Comme nous l'avons vu au paragraphe II.1.2 de ce chapitre,  $C = \frac{NLR^2}{4}$ , N correspondant au nombre de molécules de  $UO_2$  par unité de volume contenues dans la trace de géométrie cylindrique, de longueur L et de rayon R. Connaissant la valeur de N, de C (tableau 4), et en supposant que le rayon d'éjection correspond au rayon des traces R, nous en déduisons les valeurs de L qui représente l'épaisseur de matière éjectée. Ainsi, à environ **30 keV/nm**, **1,6 Å** de la cible de dioxyde d'uranium est pulvérisée et à **55 keV/nm**, l'éjection a lieu sur une épaisseur d'environ **0,8 Å**, c'est-à-dire inférieure à l'épaisseur d'une maille de  $UO_2$ . Ce sont donc les atomes d'uranium proches de la surface qui sont émis si la pulvérisation a lieu sur toute la surface de la trace.

Nous pouvons également déterminer le pourcentage d'atomes d'uranium contenus dans la trace de géométrie cylindrique de rayon R qui participe à la pulvérisation. Ce pourcentage est

obtenu, soit en confrontant, pour un même pouvoir d'arrêt électronique, le rendement de pulvérisation, Y, au nombre d'atomes d'uranium contenus dans la trace de rayon R, soit en comparant le rendement de pulvérisation, Y, au nombre d'atomes d'uranium contenus dans la trace d'épaisseur L, déduite de l'expression de C dans le modèle d'écoulement gazeux supersonique. En utilisant ces deux considérations, nous obtenons à peu près les mêmes résultats (figure 34), ce qui confirme une fois de plus la cohérence de nos résultats avec le

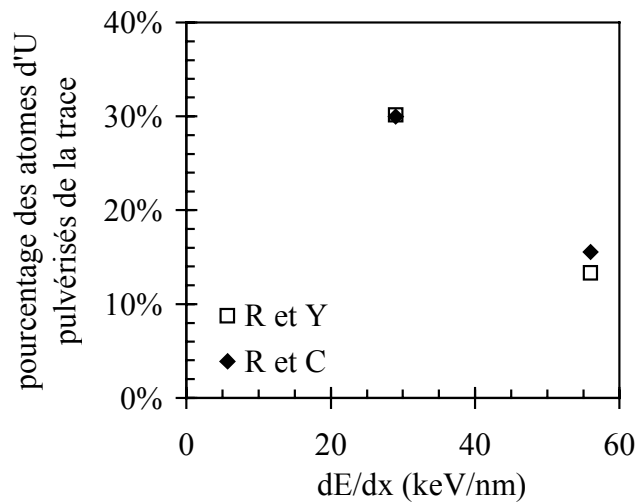


figure 34 : évolution du pourcentage des atomes d'uranium pulvérisés de la trace en fonction du pouvoir d'arrêt électronique, soit en comparant le rendement de pulvérisation au nombre d'atomes d'uranium contenus dans la trace de rayon R (carrés blancs), soit en comparant Y au nombre d'atomes d'uranium contenus dans la trace d'épaisseur L déduite du modèle d'écoulement gazeux (losanges noirs)

modèle d'écoulement gazeux supersonique. Ainsi, nous constatons qu'à **30 keV/nm**, environ **30%** des atomes d'uranium de la trace de rayon R=1,7 nm contribuent à la pulvérisation, ce pourcentage chutant à **environ 15% à 55 keV/nm**.

Puisque nous supposons que la pulvérisation est induite par les traces créées dans  $\text{UO}_2$ , l'évolution des rendements de pulvérisation doit être liée à celle des rayons de trace. Cependant, le manque de résultats concernant la mesure des rayons de traces dans le dioxyde d'uranium ne nous permet pas de mettre clairement en évidence une relation entre l'évolution des rendements de pulvérisation et celle des rayons de trace en fonction du pouvoir d'arrêt électronique (figure 33).

Au vu de ces résultats et en supposant que la pulvérisation est directement liée à la formation de traces dans le dioxyde d'uranium, deux hypothèses peuvent être émises concernant l'évolution des rendements de pulvérisation.

La première hypothèse est de considérer que le changement de régime dans l'évolution des rendements de pulvérisation, entre 12 et 18 keV/nm, peut être interprété comme une modification de la morphologie de la trace. Ainsi, la trace évolue d'une structure discontinue vers une structure continue, comme cela a déjà été observé par A. Meftah et collaborateurs [Meftah 1993] dans le grenat d'yttrium,  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (figure 4 du chapitre 1). D'ailleurs, l'évolution de la morphologie des traces dans  $\text{UO}_2$  peut être mise en évidence par la dépendance des rendements de pulvérisation en fonction de  $(\cos\psi)^{-1}$ ,  $\psi$  étant l'angle d'incidence des ions projectiles (figure 35).

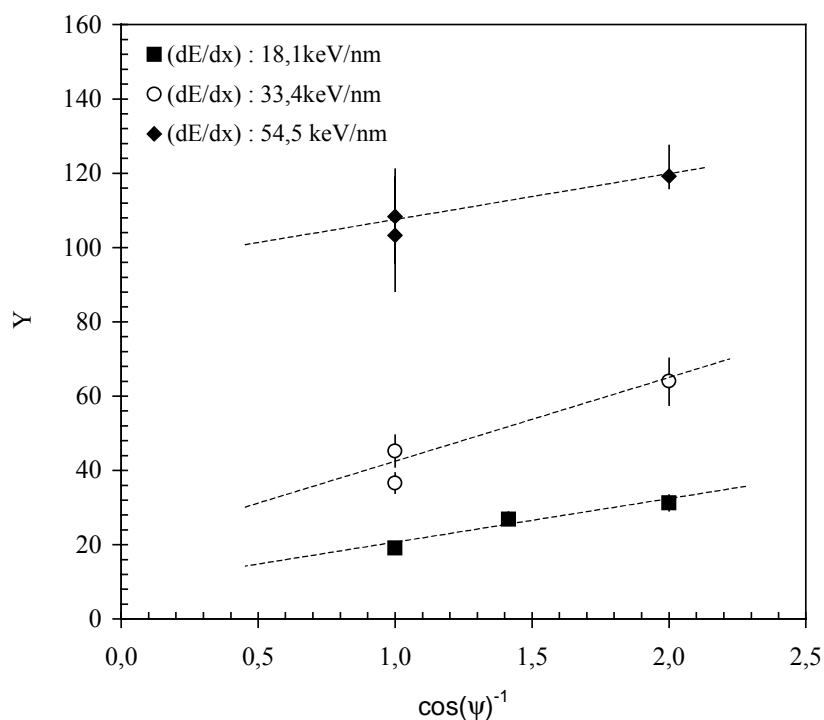


figure 35 : évolution des rendements de pulvérisation en fonction de  $(\cos\psi)^{-1}$  pour chaque pouvoir d'arrêt électronique moyen

Les traits en pointillés sont des guides pour les yeux correspondant à une fonction de la forme  $\eta \times (\cos\psi)^{-1}$ .

Une telle dépendance en  $\psi$  est observée lorsque les rendements de pulvérisation sont proportionnels à l'aire de l'intersection de la trace cylindrique. Les traits en pointillés de la figure 35 sont des guides pour les yeux correspondant à une fonction de la forme  $\eta \times (\cos\psi)^{-1}$  et permettent ainsi de comparer l'évolution des rendements obtenus pour chaque pouvoir d'arrêt électronique moyen avec cette fonction. Nous constatons qu'à partir de 18 keV/nm, les rendements de pulvérisation évoluent comme  $\eta \times (\cos\psi)^{-1}$ . Si un changement de pente était observé, ceci pourrait sans doute signifier un changement de la morphologie de la trace. Toutefois, le manque de données pour des pouvoirs d'arrêt électronique inférieurs à 18 keV/nm ne nous permet pas de mettre en évidence cette hypothèse. Il serait donc intéressant de tester ceci par des expériences avec des ions dont l'énergie se situe au-dessous du seuil de création de traces.

La seconde hypothèse concernant l'évolution des rendements de pulvérisation est de supposer que la trace est de forme continue, dès sa création, sans passage par une structure discontinue. La pulvérisation étant liée à l'état de surface de la cible, il est évident qu'un changement de régime de l'évolution des rendements de pulvérisation devrait être observé pour des pouvoirs d'arrêt inférieurs au seuil de création de traces dans  $\text{UO}_2$ . Dans le cadre de notre étude, puisque nous observons un changement de régime dans l'évolution des rendements entre 12 et 18 keV/nm, nous pourrions supposer que le pouvoir d'arrêt correspondant à la création de trace se situe dans cet intervalle<sup>12</sup>. Ainsi, si nous considérons le seuil de création de traces entre 12 et 18 keV/nm, nous observons cependant de la pulvérisation pour des pouvoirs d'arrêt inférieurs au seuil de création de traces dans  $\text{UO}_2$ , comme l'atteste les rendements<sup>13</sup> obtenus avec les ions projectiles  $^{40}\text{Ar}^{17+}$  et  $^2\text{He}^+$ . Ceci confirme notre hypothèse, émise dans le paragraphe II.2.3, concernant l'existence d'un mécanisme autre que la création de traces conduisant à la pulvérisation. Cette hypothèse

justifie d'ailleurs le choix d'une fonction de la forme  $b \times \left( \frac{dE}{dx} \Big|_e \right)^p + c$  (figures 25 et 26), afin

d'expliquer l'évolution des rendements de pulvérisation en fonction de  $\frac{dE}{dx} \Big|_e$ , avec  $2 < p < 3$ ,

mettant également en évidence le fait que la pulvérisation n'est pas induite par un simple mécanisme d'évaporation thermique. Nous avons vérifié cette hypothèse en interprétant

<sup>12</sup> Hj. Matzke et collaborateurs [Matzke 2000] situent le seuil de création de traces entre 22 et 29 keV/nm.

<sup>13</sup> Les rendements obtenus avec les ions projectiles  $^{40}\text{Ar}^{17+}$  et  $^2\text{He}^+$  sont inférieurs à 1 atome d'uranium pulvérisé par ion incident.

l'ensemble des résultats avec le modèle de la pointe thermique (voir annexe 4). Jusqu'à présent, nous ne nous sommes pas intéressés de savoir sous quelle forme les atomes que l'on détecte sont éjectés. En effet, la détection des particules pulvérisées avec la méthode des traces de fission ne nous permet pas de savoir si les espèces sont pulvérisées sous forme d'atomes ou d'agrégats. Nous allons donc nous intéresser à la nature des espèces pulvérisées.

## IV - Distribution en masse des particules pulvérisées

### IV.1 - Dispositif expérimental

Les distributions en masse des particules pulvérisées de la cible de dioxyde d'uranium ont été obtenues avec le dispositif expérimental mis au point par S. Della-Negra et collaborateurs de l'IPN d'Orsay [Della-Negra 1987]. Ce dispositif permet de faire une analyse par temps de vol de 255 ions différents par impact et de mesurer pour chaque espèce sa multiplicité. Le schéma de principe du dispositif est représenté sur la figure 36.

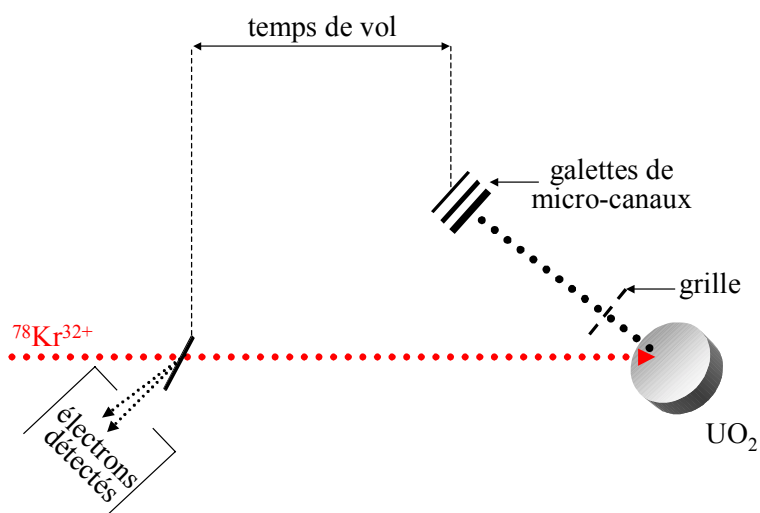


figure 36 : schéma de principe du dispositif mis au point à l'IPN d'Orsay pour les expériences d'émission secondaire

Le faisceau d'ions projectiles  $^{78}\text{Kr}^{32+}$  de 10,7 MeV/uma, délivré par le GANIL, est collimaté et envoyé sur une cible de  $\text{UO}_2$  enrichie en uranium 235, identique à celles utilisées lors des expériences de pulvérisation. Les ions secondaires émis de la cible sont soumis à une tension accélératrice et récoltés sur un détecteur à micro-canaux. Leur masse est alors

déterminée par le temps de vol correspondant à l'intervalle de temps compris entre l'impulsion « start » définie par les électrons émis lors du passage des ions  $^{78}\text{Kr}^{32+}$  à travers une feuille de carbone et les impulsions « stop » délivrées lors de l'arrivée des ions secondaires. Le temps de vol de ces ions secondaires est proportionnel à  $\sqrt{\frac{M}{qU}}$ , où M représente la masse de l'ion, q sa charge et U la tension accélératrice.

## IV.2 - Les résultats

Grâce au dispositif de temps de vol, nous déduisons la spectrométrie de masse des ions secondaires positifs (figure 37) et négatifs (figure 38) émis de la cible de dioxyde d'uranium. Les spectres des figures 37 (a à d) et 38 (a à d) représentent respectivement l'évolution des rendements de pulvérisation  $Y^+$  et  $Y^-$  en fonction de la masse, exprimée en uma.  $Y^{+(-)}$ , correspondant au rendement des ions secondaires positifs (négatifs), est obtenu en divisant le nombre de coups reçus par le détecteur à micro-canaux par le nombre d'ions lourds incidents. Les spectres de masse nous permettent d'identifier les principaux pics révélant :

- la présence de molécules carbonées de type  $C_x$  avec  $2 \leq x \leq 6$ ,
- la présence d'agrégats très lourds monochargés positivement de type  $(U_nO_m)^+$  avec n allant jusqu'à 6, comme cela a déjà été observé par T. Schenkel et collaborateurs [Schenkel 1998], et monochargés négativement de la forme  $(U_nO_m)^-$  avec n allant jusqu'à 5.

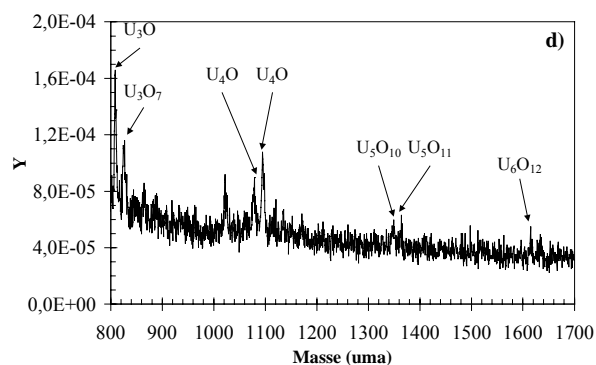
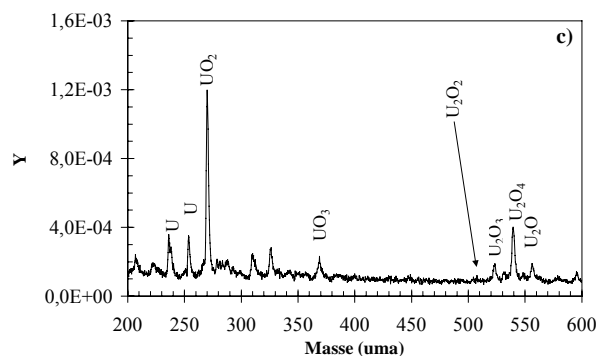
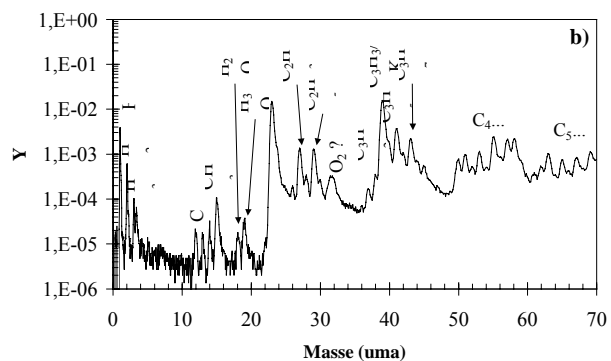
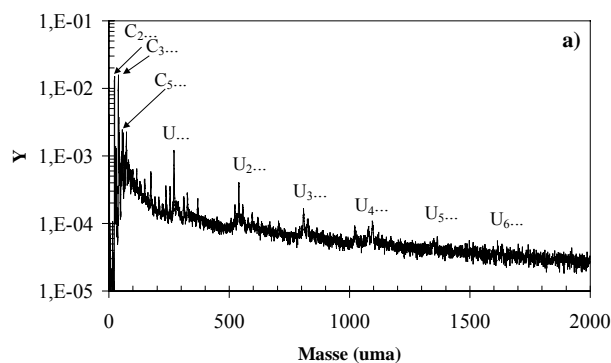


figure 37 : spectres de masse, obtenus par temps de vol, des molécules et agrégats ionisés **positivement**, pulvérisés d'une cible de  $UO_2$  par l'impact d'ions  $^{78}Kr^{32+}$  de 10,7 MeV/uma

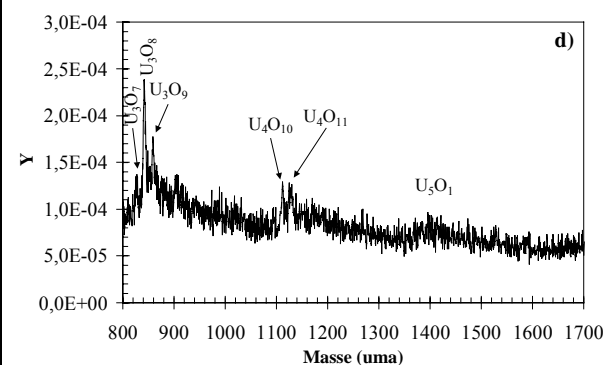
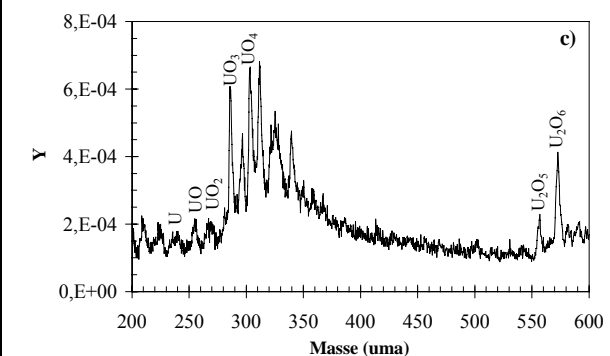
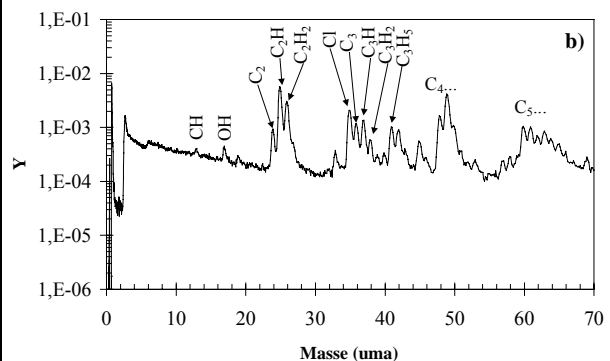
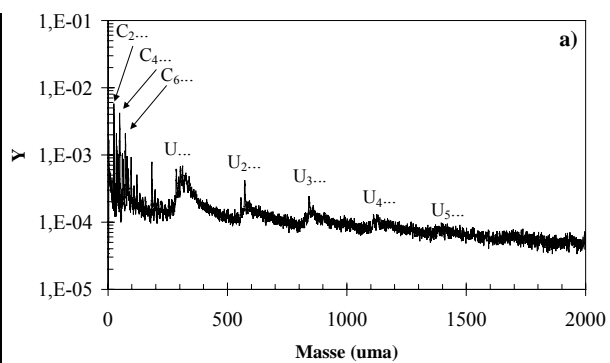


figure 38 : spectres de masse, obtenus par temps de vol, des molécules et agrégats ionisés **négativement**, pulvérisés d'une cible de  $UO_2$  par l'impact d'ions  $^{78}Kr^{32+}$  de 10,7 MeV/uma

Sur les spectres des figures 37 et 38, nous observons clairement des massifs de pic correspondant aux ions  $C_1$ , c'est-à-dire  $C^+$  de masse 12,  $CH^-$  de masse 13 ou encore  $CH_3^+$  de masse 15, aux ions  $C_2$ , c'est-à-dire  $C_2^-$  et ainsi de suite jusqu'aux ions composés de 6 atomes de carbone. Bien que des éléments composés de carbone entrent dans la fabrication des pastilles de  $UO_2$  enrichies en uranium 235, ils ne représentent que 1% du carbone pulvérisé de  $UO_2$ . En fait, ces massifs de pics observés dans les spectres de masse proviennent d'une contamination de la surface de la cible de  $UO_2$ . Cette contamination de surface est d'ailleurs confirmée par la présence d'ions chlore<sup>14</sup>,  $Cl^-$  (figure 38b). En plus de la contamination de la surface de la cible de dioxyde d'uranium, les spectres des figures 37 a) et 38 a) mettent en évidence un bruit de fond. Ce bruit de fond (zone hachurée des figures 39 et 40) peut être attribué soit à une forte contamination de la surface, soit à la fragmentation en vol des agrégats d'uranium.

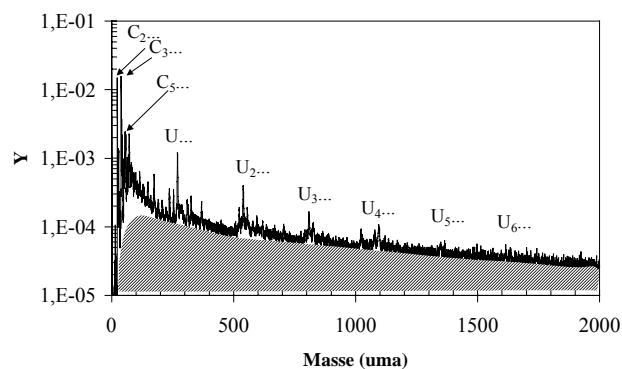


figure 39 : spectre de masse des molécules et agrégats ionisés **positivement**, pulvérisés d'une cible de  $UO_2$  par l'impact d'ions  $^{78}Kr^{32+}$  de 10,7 MeV/uma  
La partie hachurée correspond au bruit de fond.

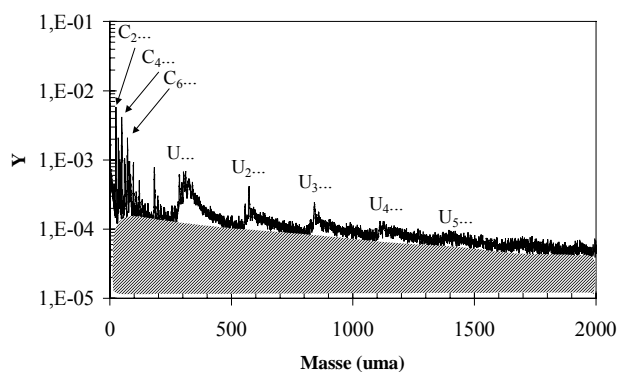


figure 40 : spectre de masse des molécules et agrégats ionisés **négativement**, pulvérisés d'une cible de  $UO_2$  par l'impact d'ions  $^{78}Kr^{32+}$  de 10,7 MeV/uma  
La partie hachurée correspond au bruit de fond.

Les spectres de masse obtenu par temps de vol nous permettent donc de déterminer les rendements de pulvérisation de l'émission ionique secondaire en uranium. En utilisant un programme d'ajustement des pics et en déconvoluant le bruit de fond, nous en déduisons les rendements de pulvérisation correspondant à chaque pic composé d'atomes d'uranium. Nous avons d'abord estimé les rendements d'émission secondaire  $Y^+$  et  $Y^-$  de chaque agrégat d'uranium en ne tenant pas compte du bruit de fond (tableau 8). De ces rendements, nous pouvons déduire les rendements de tous les ions secondaires positifs contenant des atomes

<sup>14</sup> Le NaCl provient de la sueur se trouvant sur la cible de dioxyde d'uranium.



d'uranium,  $Y_U^+$ , et les rendements de tous les ions secondaires négatifs contenant des atomes d'uranium,  $Y_U^-$ .

Agrégat	$Y^+$	$Y_U^+$	$Y^-$	$Y_U^-$
U	$3,8 \times 10^{-3}$	$3,8 \times 10^{-3}$	$5,9 \times 10^{-3}$	$5,9 \times 10^{-3}$
U <sub>2</sub>	$1,2 \times 10^{-3}$	$2,4 \times 10^{-3}$	$2,7 \times 10^{-3}$	$5,4 \times 10^{-3}$
U <sub>3</sub>	$1,1 \times 10^{-3}$	$3,3 \times 10^{-3}$	$1,6 \times 10^{-3}$	$4,8 \times 10^{-3}$
U <sub>4</sub>	$2,8 \times 10^{-4}$	$1,1 \times 10^{-3}$	$7,0 \times 10^{-4}$	$2,8 \times 10^{-3}$
U <sub>5</sub>			$2,2 \times 10^{-4}$	$1,1 \times 10^{-3}$

tableau 8 : rendement des différents agrégats ionisés positivement,  $Y^+$ , et négativement,  $Y^-$ , pulvérisés de la cible de  $UO_2$  et identifiés par spectrométrie de masse par temps de vol

Ces rendements de pulvérisation sont déduits **en ne tenant pas compte du bruit de fond**.

Lors de la pulvérisation, les agrégats éjectés du matériau cible possèdent une forte énergie interne et sont donc instables. Afin de réduire leur énergie interne, les agrégats ont tendance à se fragmenter en vol. Cette fragmentation en vol des agrégats a été mise en évidence par W. Ens et collaborateurs [Ens 1983] avec les spectres de masse obtenus lors de la pulvérisation du iodure de césium, CsI. Ainsi, en tenant compte du bruit de fond se trouvant sous les massifs de pics et en considérant que ce dernier est induit par la fragmentation en vol des agrégats d'uranium, nous obtenons les rendements présentés dans le tableau 9.

Agrégat	$Y^+$	$Y_U^+$	$Y^-$	$Y_U^-$
U	$3,7 \times 10^{-2}$	$3,7 \times 10^{-2}$	$4,0 \times 10^{-2}$	$4,0 \times 10^{-2}$
U <sub>2</sub>	$3,2 \times 10^{-2}$	$6,4 \times 10^{-2}$	$7,0 \times 10^{-2}$	$1,4 \times 10^{-1}$
U <sub>3</sub>	$1,7 \times 10^{-2}$	$5,1 \times 10^{-2}$	$5,3 \times 10^{-2}$	$1,6 \times 10^{-1}$
U <sub>4</sub>	$1,6 \times 10^{-2}$	$6,4 \times 10^{-2}$	$3,1 \times 10^{-2}$	$1,2 \times 10^{-1}$
U <sub>5</sub>	$1,6 \times 10^{-2}$	$8,0 \times 10^{-2}$	$3,0 \times 10^{-2}$	$1,5 \times 10^{-1}$
U <sub>6</sub>	$1,2 \times 10^{-2}$	$7,2 \times 10^{-2}$		

tableau 9 : rendement des différents agrégats ionisés positivement,  $Y^+$ , et négativement,  $Y^-$ , pulvérisés de la cible de  $UO_2$  et identifiés par spectrométrie de masse par temps de vol

Ces rendements de pulvérisation sont déduits **en estimant la désintégration en vol des agrégats**.

Les résultats obtenus lors de l'impact d'ions  $^{78}\text{Kr}^{32+}$  de 10,8 MeV/uma sur une cible de  $UO_2$ , nous permettent de déterminer d'une part, le rendement de pulvérisation des atomes d'uranium neutres et ionisés,  $Y^{15}$  (tableau 6), déduit à partir de la distribution angulaire des

<sup>15</sup>  $Y = Y_U^+ + Y_U^- + Y_{\text{neutre}} = 19,1$  (tableau 6).

atomes d'uranium éjectés (figure 6) et, d'autre part, le rendement d'émission des atomes d'uranium chargés positivement et négativement (tableau 8 et tableau 9). Nous pouvons ainsi comparer l'abondance des atomes d'uranium neutres par rapport aux atomes chargés. Cette comparaison est d'une grande importance, puisque actuellement seule l'étude réalisée par W. Guthier et collaborateurs [Guthier 1986] dans le domaine de la pulvérisation électronique met en évidence le faible rendement de pulvérisation des atomes ionisés positivement par rapport aux atomes neutres (environ 1%).

Dans notre cas, à 18 keV/nm, pour des ions projectiles  $^{78}\text{Kr}^{32+}$  d'énergie 10,8 MeV/uma :

- 0,2% des atomes d'uranium pulvérisés sont ionisés, si le bruit de fond n'est pas pris en compte
- 5% des atomes d'uranium pulvérisés sont ionisés en tenant compte du bruit de fond.

Donc, même en tenant compte du bruit de fond, le nombre d'atomes d'uranium chargés est faible comparé au nombre d'atomes d'uranium neutres émis lors de l'impact d'ions lourds projectiles. La valeur réelle du nombre d'atomes d'uranium chargés pulvérisés est certainement comprise entre ces deux valeurs.

Du fait de la grande facilité de détection des ions, un grand nombre d'études de pulvérisation portent sur les rendements d'émission ionique. Or, au vu de ces résultats, la représentativité de l'émission ionique vis à vis de l'ensemble des phénomènes mis en jeu lors de la création de traces doit donc être posée. Ainsi, la comparaison de l'abondance des espèces neutres et chargées permet d'apporter des idées concernant le processus d'éjection : il n'est pas déraisonnable de penser que les atomes sont tout d'abord ionisés puis sont neutralisés lors du passage de la surface, ou encore que les espèces ionisées et neutres ne proviennent pas de la même zone de la trace comme cela a été mis en évidence par R. Moshammer [Moshammer 1991]. En fait, si nous comparons les phénomènes induits par l'impact d'un ion projectile avec un volcan en activité, le scénario suivant se profile (figure 41) :

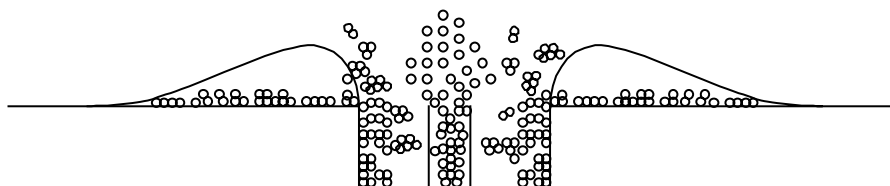


figure 41 : schéma du processus de pulvérisation

- la cheminée du volcan correspond au cœur de la trace où, sont déposés de fortes densités d'énergie induisant une fragmentation des molécules et des agrégats. Donc, la cheminée du volcan est le siège de la pulvérisation des atomes d'uranium.
- la zone entourant la cheminée, pour laquelle les densités d'énergie déposées sont plus faibles, représente la région conduisant à l'émission de grosses molécules ou d'agrégats.
- les atomes ou agrégats pulvérisés qui ne sont pas assez énergétiques forment les flancs du volcan.

Les spectres en masse des atomes d'uranium chargés révèlent la présence d'un grand nombre d'agrégats. La formation des molécules et des agrégats lors de l'émission de particules est une des questions fondamentales de la physique de la pulvérisation. Ainsi, grâce aux spectres de masse obtenus par temps de vol, nous pouvons déduire la fraction totale d'atomes d'uranium émis dans un état lié. Pour cela, nous normalisons les rendements d'agrégats d'uranium pulvérisés aux rendements d'atomes d'uranium émis, et nous obtenons les évolutions de  $Y^+(n)$  correspondant à  $\frac{Y(U_n^+)}{Y(U^+)}$  et  $Y^-(n)$  correspondant à  $\frac{Y(U_n^-)}{Y(U^-)}$ , respectivement représentées dans les figures 42 et 43.

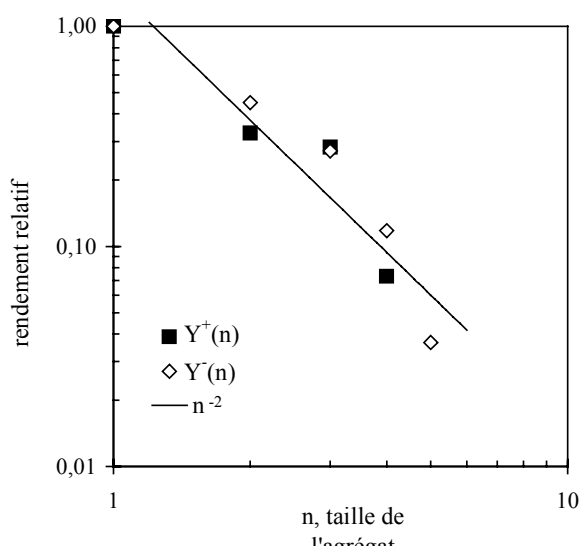


figure 42 : évolution du rapport  $\frac{Y(U_n^+)}{Y(U^+)}$  et  $\frac{Y(U_n^-)}{Y(U^-)}$

en fonction de la taille de l'agrégat  $n$

Les rendements de pulvérisation sont déduits en ne tenant pas compte du bruit de fond (tableau 8).

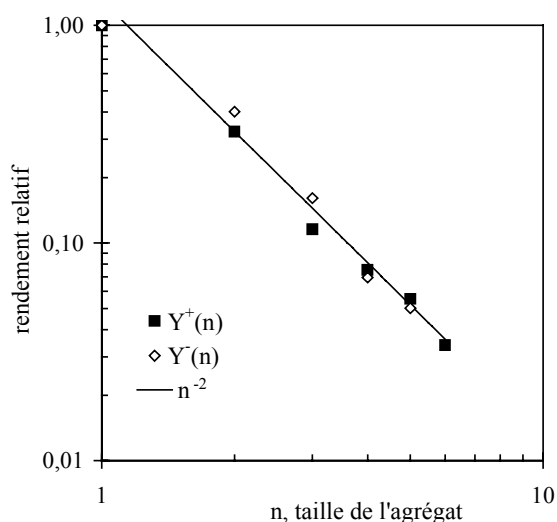


figure 43 : évolution du rapport  $\frac{Y(U_n^+)}{Y(U^+)}$  et  $\frac{Y(U_n^-)}{Y(U^-)}$

en fonction de la taille de l'agrégat  $n$

Pour les rendements, nous avons tenu compte de la fragmentation en vol des agrégats d'uranium, c'est-à-dire du bruit de fond.

Au vu des figures 42 et 43, la probabilité de trouver les atomes d'uranium sous forme d'agrégats diminue lorsque la taille de l'agrégat augmente. En tenant compte ou pas de la fragmentation en vol des agrégats d'uranium,  $Y^+(n)$  et  $Y^-(n)$  varient approximativement suivant une loi en  $n^{-2}$  (figures 42 et 43). Cependant, sur ces figures, nous pouvons remarquer que les résultats semblent meilleurs si nous considérons le processus de fragmentation (figure 43).

Bitensky & Parilis [Bitensky 1987], avec le modèle de pulvérisation par onde de choc, et H.M. Urbassek [Urbassek 1988], avec le modèle d'équilibre thermodynamique, se sont intéressés à l'émission d'agrégats<sup>16</sup>. Ils prédisent une loi en puissance de la forme  $n^{-\delta}$ .

Bitensky & Parilis [Bitensky 1987] traitent l'émission d'agrégats comme résultant d'une onde de choc et trouvent une loi en puissance  $n^{-\delta}$  avec  $\delta=2$ . Ces auteurs considèrent que les atomes de recul proches de la surface peuvent créer des ondes de choc pouvant se réfléchir sur la surface et conduire à la fragmentation d'agrégats. Néanmoins, ce modèle n'apporte aucune explication concernant la relation entre la géométrie de l'onde de choc et l'émission d'agrégats.

H.M. Urbassek [Urbassek 1988] interprète l'émission d'agrégats d'un point de vue purement thermodynamique en supposant qu'un équilibre thermodynamique local s'établit dans une région de la cible irradiée. C'est en refroidissant que les agrégats peuvent se former et que cette région peut subir une transition de phase gaz-liquide hors équilibre. D'après cet auteur, c'est durant cette transition de phase hors équilibre que les agrégats sont pulvérisés, et la fraction d'atomes d'uranium pulvérisés sous forme d'agrégats présente alors une variation en  $n^{-\delta}$  avec  $\delta=\frac{7}{3}$ ,  $n$  représentant la taille de l'agrégat.

L'évolution de  $Y^+$  et  $Y^-$  en  $n^{-2}$  (figure 43) obtenue grâce aux spectres de masse lors de la pulvérisation d'une cible de  $UO_2$  par des ions  $^{78}Kr^{32+}$  peut donc être interprétée par le modèle d'onde de choc. Dans ce modèle, lorsque l'onde de choc arrive à la surface, les atomes chargés positivement sont principalement émis à partir du cœur de la trace où la densité d'ionisation est élevée, tandis que les agrégats et molécules proviennent de la zone entourant le cœur de la trace où la faible densité d'énergie ne conduit pas à la fragmentation des agrégats. Bien que le modèle d'onde de choc explique, d'une part, cette évolution et, d'autre

<sup>16</sup> D'autres modèles existent concernant la formation de molécules et d'agrégats lors de la pulvérisation, comme par exemple les modèles de combinaison statistique (modèle de combinaisons atomiques ou de collisions « multiples ») qui prédisent une dépendance en exponentielle de  $Y^{+(\cdot)}(n)$  en fonction de la taille de l'agrégat [Gerhard 1975, Können 1974].

part, l'évolution des rendements de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique (figure 24) pour une incidence normale des ions lourds projectiles ( $\psi=0^\circ$ ), les distributions angulaires des atomes d'uranium pulvérisés obtenues expérimentalement sont en total désaccord avec les prédictions de ce modèle (tableau 2).

Ainsi, si nous considérons l'ensemble de nos résultats, c'est-à-dire les distributions angulaires, l'évolution des rendements en fonction du pouvoir d'arrêt, l'évolution des rendements relatifs en agrégat en fonction de la taille de l'agrégat, ni les modèles de pulvérisation par pointe thermique, ni les modèles de pulvérisation par choc ne permettent de les interpréter en totalité. Ce résultat soulève un problème. La solution réside peut-être dans le fait que les modèles de pulvérisation par pointe thermique et par choc proposés pour expliquer les résultats du domaine non-linéaire de la pulvérisation nucléaire ne sont pas adaptés à la pulvérisation électronique, ou alors que la pulvérisation n'est pas explicable par un seul et unique modèle.

En conclusion, lors de l'irradiation du dioxyde d'uranium par les ions lourds, nous observons, d'une part, la création de traces à la surface de  $\text{UO}_2$  et, d'autre part, la pulvérisation d'atomes d'uranium, principalement neutres, suivant la normale à la cible, quel que soit l'angle d'incidence des ions lourds projectiles. A 30 keV/nm, les atomes d'uranium sont pulvérisés à partir d'une trace de rayon  $R=1,7$  nm, sur une épaisseur d'environ 1,6 Å. Cette épaisseur est suffisante pour qu'environ 30% des atomes d'uranium de cette trace soient pulvérisés de façon violente avec une vitesse supersonique. Dans ce cas, la pulvérisation doit être caractérisée par un choc permettant alors la possibilité d'une interprétation des résultats expérimentaux par les modèles de pulvérisation par choc. Néanmoins, l'étude en parallèle :

- des distributions angulaires des atomes d'U émis
- de l'évolution des rendements de pulvérisation en fonction de  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_e$
- du spectre de masse de l'émission ionique secondaire

montre qu'aucun modèle de pulvérisation ne permet d'expliquer l'ensemble de nos résultats.

De plus, le manque de données concernant l'endommagement du dioxyde d'uranium ne nous a pas permis de mettre en évidence une corrélation entre les processus de création de traces et de pulvérisation. Toutefois, le modèle de pointe thermique, proposé par M. Toulemonde et collaborateurs, nous donne l'occasion, d'une part, de déterminer le pouvoir

d'arrêt seuil de création de traces dans  $\text{UO}_2$ , semblant être étroitement lié au changement de régime dans l'évolution des rendements de pulvérisation, et, d'autre part, de mettre en évidence qu'un modèle simple de pulvérisation par évaporation thermique n'explique en rien nos résultats expérimentaux.

# *Conclusion*

La mise en mouvement des atomes d'un matériau, induite par un ion projectile se traduit dans le volume par la création de traces et à la surface par l'éjection d'atomes vers le vide. L'étude expérimentale de la pulvérisation peut apporter de précieuses informations afin d'appréhender les mécanismes initiaux de l'endommagement par les ions, en particulier en vue de comprendre la dynamique de formation des traces. C'est dans ce cadre là que nous nous sommes intéressés à la fois à l'endommagement et à la pulvérisation du dioxyde d'uranium par les ions lourds.

Les résultats expérimentaux concernant les traces dans l'UO<sub>2</sub> ne nous ont pas permis de trouver une corrélation évidente entre endommagement et pulvérisation. En revanche, les expériences de pulvérisation donnent des informations importantes sur :

- la nature des particules éjectées : ces dernières sont constituées d'un grand nombre d'agrégats monochargés très lourds.
- l'état de charge des particules pulvérisées : ces dernières sont principalement formées de particules neutres (5% des espèces sont pulvérisées sous forme ionisée).
- les rendements de pulvérisation : variant de 0,006 à 100 atomes d'uranium pulvérisés par ion incident.
- les mécanismes de pulvérisation : permettant d'interpréter les résultats expérimentaux. D'ailleurs, nos résultats nous ont permis d'exclure le modèle de pulvérisation par évaporation thermique comme possible processus de pulvérisation. L'évolution des rendements de pulvérisation peut être interprétée par les modèles de flux gazeux, d'impulsion de pression ou d'onde de choc alors que ce dernier modèle n'explique en aucun cas l'évolution de nos distributions angulaires. Ainsi, tous les modèles proposés dans la littérature, pris individuellement, ne rendent compte que partiellement de nos résultats expérimentaux. En conséquence, l'ensemble de ces résultats imposent des contraintes aux modèles de pulvérisation. Il serait maintenant intéressant de poursuivre cette étude sur l'endommagement et la pulvérisation.

Pour la pulvérisation, les perspectives de ce travail sont dans un premier temps la mesure des distributions en angle des agrégats afin de comparer ces distributions avec celles des atomes pour voir si elles sont identiques ou non. En effet, on pourrait supposer une contribution isotrope des atomes et une contribution très « piquée » des agrégats. Dans un deuxième temps, il serait intéressant de mesurer les distributions en vitesse des particules neutres et ionisées. Ces distributions permettraient de tester le modèle de flux gazeux supersonique d'une part, et, d'obtenir des informations concernant l'origine des atomes neutres et des ions d'autre part. En effet, on peut se poser la question de savoir si les neutres et les ions proviennent du même endroit de la trace.

En ce qui concerne l'endommagement du dioxyde d'uranium, une question reste posée : qu'est ce qu'une trace dans l' $\text{UO}_2$  ? En effet, dans la même gamme de pouvoir d'arrêt, des traces et également de la polygonisation sont observées. Or ces deux résultats sont un peu contradictoires puisqu'une trace est induite par une forte déformation alors que l'observation de ce phénomène de polygonisation par RBS en canalisation met en évidence le faible taux de déformation.

L'ensemble de ces résultats constitue donc « la première pierre » d'une thématique de recherche fondamentale développée au CIRIL et apporte également des informations pour des recherches plus appliquées dans le domaine du nucléaire, comme par exemple pour des questions concernant le stockage du combustible nucléaire fortement irradiée ou la mise en mouvement des atomes d'uranium à l'intérieur des gaines de réacteur nucléaire.



# Annexe 1

## Expressions des angles $\theta$ et $\varphi$

Un point M situé sur un mica du bras ou de la plaque, qu'il soit « collecteur » ou « réplique », est repéré par son abscisse x et son ordonnée z dans un repère cartésien. Ce point M est également repéré par deux angles  $\theta$  et  $\varphi$  (figure 1) permettant de décrire l'évolution des distributions angulaires des atomes d'uranium pulvérisés.

- $\theta$  : représente l'angle entre la normale à la surface de la cible et la projection du point M (noté M') sur le mica collecteur dans le plan (OXY).
- $\varphi$  : représente l'angle entre la normale à la surface de la cible et la projection du point M (noté M'') sur le mica collecteur dans le plan (OYZ).

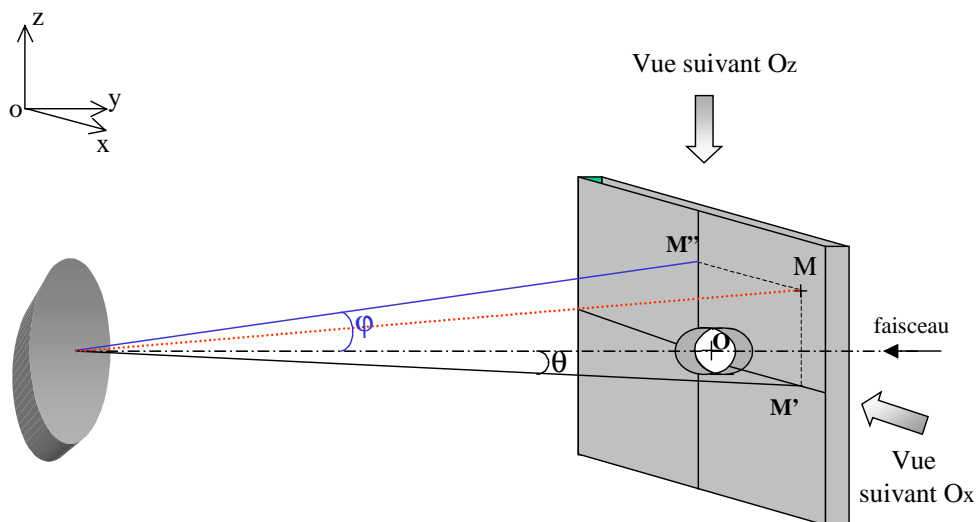


figure 1 : définition des angles  $\theta$  et  $\varphi$

Pour chacun de ces angles, nous définissons deux expressions : l'une lorsque le point M se trouve sur un des micras de la plaque et l'autre lorsque le point M se trouve sur un des micras du bras (figure 2).



figure 2 : photographie du dispositif collecteur constitué d'une plaque et d'un bras sur lesquels sont placés les micras collecteurs

## I - Repérage sur les micras de la plaque

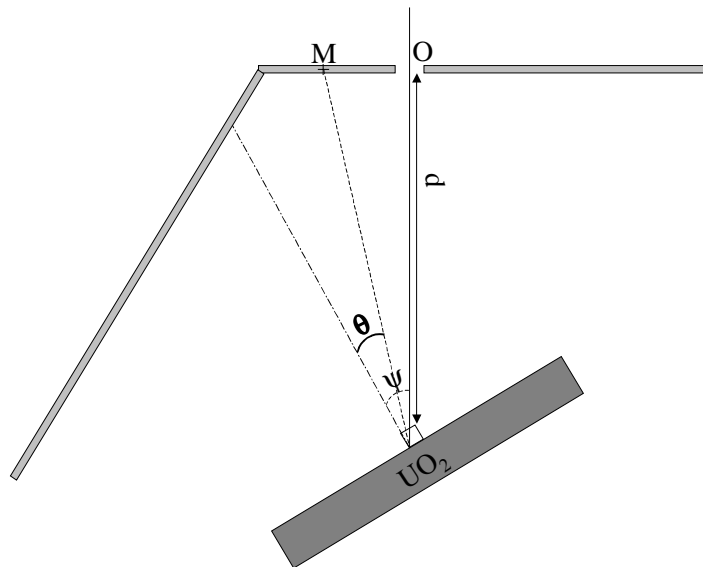


figure 3 : schéma du repérage des angles pour les micras se trouvant sur la plaque

Pour un point M de coordonnées  $x$  et  $z$  se trouvant sur un des **micras de la plaque** :

- l'expression littérale de  $\theta$  est la suivante :  $\theta = \psi - \arctan\left(\frac{x}{d}\right)$

$\theta$  dépend de l'abscisse  $x$  du point M, de l'inclinaison de la pastille  $\psi$  et de la distance  $d$  séparant la cible d' $UO_2$  de la plaque collectrice (figure 3).

- l'expression littérale de  $\varphi$  est la suivante :  $\varphi = \arctan\left(\frac{z}{x^2 + d^2}\right)$

$\varphi$  dépend des mêmes paramètres que  $\theta$  avec en plus l'ordonnée  $z$  du point M (figures 1 et 3).

## II - Repérage sur les micas du bras

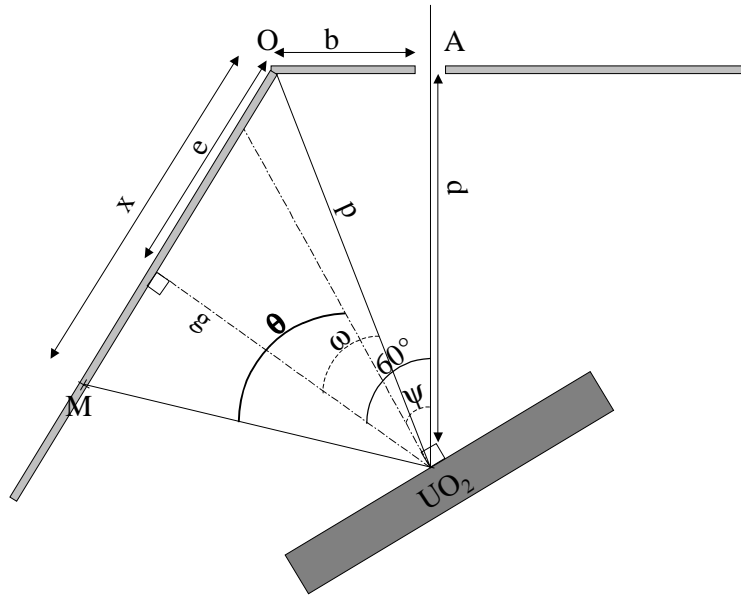


figure 4 : schéma du repérage des angles pour les micas se trouvant sur le bras

Pour un point M de coordonnées  $(x,z)$ , se trouvant sur un des **micas du bras**, les expressions littérales se compliquent, en effet :

- l'expression littérale de  $\theta$  est la suivante :  $\theta = \arctan\left(\frac{x-e}{g}\right) + 60^\circ - \psi$

$\theta$  dépend de l'abscisse  $x$  du point correspondant à la distance OM, de  $e$  égale à  $p \times \sin \omega$  avec  $p = \sqrt{b^2 + d^2}$  ( $b$  représentant la distance entre le centre du diaphragme de la plaque collectrice et le bras collecteur) et  $\omega = 60^\circ - \arctan\left(\frac{b}{d}\right)$ , de  $g = p \times \cos \omega$  et enfin de l'angle d'inclinaison de la pastille  $\psi$ .

- l'expression littérale de  $\varphi$  est la suivante :  $\varphi = \arctan\left(\frac{\frac{z}{d - \frac{x\sqrt{3}}{2}}}{1 + \left(\frac{b + \frac{x}{2}}{d - \frac{x\sqrt{3}}{2}}\right)^2}\right)$

$\varphi$  dépend des coordonnées cartésiennes du point M, de d représentant la distance séparant la cible d' $\text{UO}_2$  de la plaque collectrice et de b correspondant à la distance entre le centre du diaphragme de la plaque collectrice et le bras collecteur (figure 4).

# Annexe 2

## Modèle d'écoulement gazeux supersonique

Considérons un cylindre contenant à l'instant  $t$ ,  $N$  molécules de gaz par unité de volume contenues dans le cylindre à la température  $T_0$  (figure 1). Les molécules de gaz qui traversent la surface  $\Sigma$  entre les instants  $t$  et  $t+dt$  avec une vitesse  $\vec{v}(v_x, v_y, v_z)$  sont contenues dans le cylindre<sup>1</sup> de section  $\pi \times r_0^2$  et de hauteur  $\bar{v}_x \times \int_0^\infty dt$ , correspondant au parcours moyen des particules sortantes.

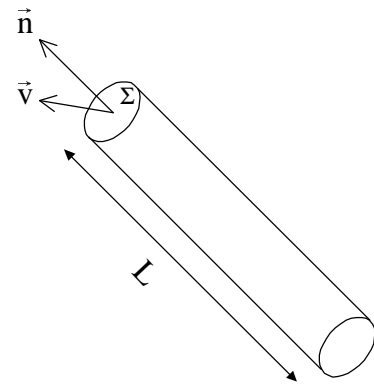


figure 1 : cylindre de longueur  $L$ , contenant à l'instant  $t$  les molécules qui vont traverser  $\Sigma$  entre les instants  $t$  et  $t+dt$  avec la vitesse  $\vec{v}$

Ainsi,  $Y$  représente le nombre de molécules traversant  $\Sigma$  et s'écrit :

$$Y = \underbrace{\frac{dN}{\text{Nombre de molécules par unité de volume}}}_{\text{Nombre de molécules par unité de volume}} \times \underbrace{\pi \times r_0^2 \times \bar{v}_x \times \int_0^\infty dt}_{\text{Volume du cylindre}}$$

D'après la distribution des vitesses de Maxwell, représentant la loi de répartition des vitesses pour les molécules d'un gaz, la probabilité de trouver une molécule dont le module de vitesse  $\vec{v}(v_x, v_y, v_z)$  est compris entre  $v$  et  $v+dv$ , correspond à :

$$\frac{dN}{N} = f(v_x)dv_x \times f(v_y)dv_y \times f(v_z)dv_z,$$

$$\text{où } f(v_i) = \sqrt{\frac{M}{2\pi k_B T_0}} \times e^{-\frac{M \times v_i^2}{2 \times k_B \times T_0}}, \text{ avec } i=x,y,z.$$

<sup>1</sup> Le cylindre est considéré comme « idéal », dont les parois sont réfléchissantes.

Cette expression de dN conduit à :

$$Y = \pi \times r_0^2 \times N \times \int_0^{\infty} dt \times \int_0^{\infty} v_x f(v_x) dv_x \times \int_{-\infty}^{+\infty} f(v_y) dv_y \times \int_{-\infty}^{+\infty} f(v_z) dv_z .$$

Le modèle d'écoulement gazeux supersonique, basé sur la cinétique des gaz, suppose qu'un flux gazeux de particules est éjecté de la trace. R. Moshammer [Moshammer 1991] ajoute simplement à la fonction de distribution en vitesse des particules, une vitesse constante  $u$ , représentant la vitesse du flux gazeux de particules dans la direction  $x$ , dirigée vers l'extérieur [Bird 1976].

En remplaçant  $dt$  par  $\frac{dx}{dv_x}$  et en exprimant  $dv_x dv_y dv_z$  en coordonnées cylindriques

$2\pi v_r dv_r dv_a$  où  $v_r$  et  $v_a$  représentent les composantes axiales et radiales de la vitesse, et  $L$  la longueur du cylindre, l'expression suivante est obtenue :

$$Y = 2\pi^2 r_0^2 N \frac{L}{v_a} \times \int_0^{+\infty} v_r f(v_r) dv_r \times \int_{-\infty}^{+\infty} v_a f(v_a - u) dv_a \quad (1)$$

En posant  $\beta^2 = \frac{M}{2k_B T_0}$ , l'expression (1), conduit à :

$$\frac{dY}{dv_r dv_a} = 2\pi^2 r_0^2 N L v_r \times \left( \frac{\beta^2}{\pi} \right)^{3/2} \times e^{-\frac{M}{2k_B T_0} [v_r^2 + (v_a - u)^2]} \quad (2)$$

En exprimant  $v_a$  et  $v_r$  en coordonnées cylindriques  $\begin{cases} v_a = v \times \cos \theta \\ v_r = v \times \sin \theta \end{cases}$  (3) et en utilisant

l'expression de l'angle solide  $d\Omega = 2\pi \times \sin \theta d\theta$ , on obtient :

$$\frac{dY}{dv_r dv_a} = \frac{2\pi \sin \theta}{v} \times \frac{dY}{dv d\Omega} \quad (4)$$

En utilisant les relations (3) et (4) dans l'équation (2), l'expression suivante est obtenue :

$$\frac{dY}{d\Omega} = \pi r_0^2 N L \left( \frac{\beta^2}{\pi} \right)^{3/2} \times \int_0^{\infty} v^2 e^{-\frac{M}{2k_B T_0} [(v \sin \theta)^2 + (v \cos \theta - u)^2]} dv$$

En intégrant par partie l'intégrale  $\int_0^{\infty} v^2 e^{-\frac{M}{2k_B T_0} [(v \sin \theta)^2 + (v \cos \theta - u)^2]} dv$ , et en utilisant la relation

$$\begin{aligned} \text{suivante : } \int_0^{\infty} e^{-\beta^2 (v-u \cos \theta)^2} dv &= \int_{-u \cos \theta}^{+\infty} e^{-\beta^2 X^2} dX \\ &= \frac{\sqrt{\pi}}{2\beta} \{1 + \operatorname{erf}(\beta u \cos \theta)\}, \text{ nous obtenons :} \end{aligned}$$

$$\frac{dY}{d\Omega} = \pi r_0^2 NL \times \left( \frac{\beta^2}{\pi} \right)^{3/2} \left\{ \frac{1}{2\beta^2} (1 + 2\beta^2 u^2 \cos^2 \theta) e^{-\beta^2 u^2 \sin^2 \theta} \times \frac{\sqrt{\pi}}{2\beta} (1 + \operatorname{erf}(\beta u \cos \theta)) \right\}$$

La constante  $\beta u$  est remplacée par le nombre de Mach de la vitesse d'écoulement,

$M = \frac{u}{a_0}$ .  $M$  est défini comme étant le rapport de la vitesse du flux par rapport à la vitesse du

son  $a_0$  dans le gaz,  $a_0^2 = \frac{5}{3} \times \frac{k_B T_0}{M}$ . Il en est déduit l'approximation suivante  $\beta u \approx M$ , conduisant

à l'expression suivante du rendement différentiel en angle,  $\frac{dY}{d\Omega}$  :

$$\frac{dY}{d\Omega} = \frac{NLR^2}{4} \times [(1 + 2M^2 \times \cos^2 \theta)(1 + \operatorname{erf}(M \cos \theta))] \times e^{-M^2 \sin^2 \theta}$$

## *Annexe 3*

# *Observation des traces dans UO<sub>2</sub> par microscopie à force atomique*

Dans le cadre de l'étude de l'endommagement du dioxyde d'uranium par les ions lourds, les cibles de UO<sub>2</sub> sont fixées sur des supports en aluminium placés verticalement et perpendiculairement au faisceau d'ions lourds projectiles. Des feuilles d'aluminium placées devant les cibles jouent le rôle de dégradeur en énergie. L'épaisseur de ces feuilles de ralentissement est choisie en fonction du pouvoir d'arrêt électronique souhaité. Les pastilles de dioxyde d'uranium sont observées, avant et après irradiation, par microscopie à force atomique (AFM) à l'air, à l'aide d'un microscope Nanoscope III de Digital Instruments, les mouvements de la pointe du microscope étant détectés par une méthode optique laser.

Avant d'exposer les résultats concernant les mesures des rayons de traces créées dans UO<sub>2</sub>, nous allons rappeler brièvement le principe de l'AFM, déjà développé dans la thèse de C. Leroy [Leroy 1996] auquel le lecteur pourra se référer pour de plus amples informations.

### **I - Quelques rappels sur l'AFM**

Le principe de fonctionnement du microscope à force atomique repose sur l'exploration d'une surface par une sonde de petite taille sensible à la force d'interaction entre la pointe et la surface de l'échantillon. Le microscope à force atomique permet deux modes d'utilisation :

- le mode « **contact** ». Lorsque ce mode est utilisé, la pointe située au bout d'une poutre se trouve en contact direct avec la surface à analyser et exerce sur celle-ci une force très faible. Par asservissement sur la flexion de la poutre, cette force est maintenue constante au cours de l'observation.



• le mode « **tapping** », permettant l'utilisation de forces beaucoup plus faibles. Dans ce mode, la pointe vibre autour de sa fréquence de résonance avec une amplitude de l'ordre de 20 à 100 nm et ne touche la surface que lors de chaque période d'oscillation (figure 1). Le mode « tapping » permet donc par rapport au mode « contact » de s'affranchir d'un contact permanent entre la pointe et l'échantillon lors d'une observation. Le contact périodique avec la surface réduit l'amplitude des oscillations ; l'asservissement maintient cette réduction d'amplitude constante lors de l'exploration de la surface de l'échantillon.

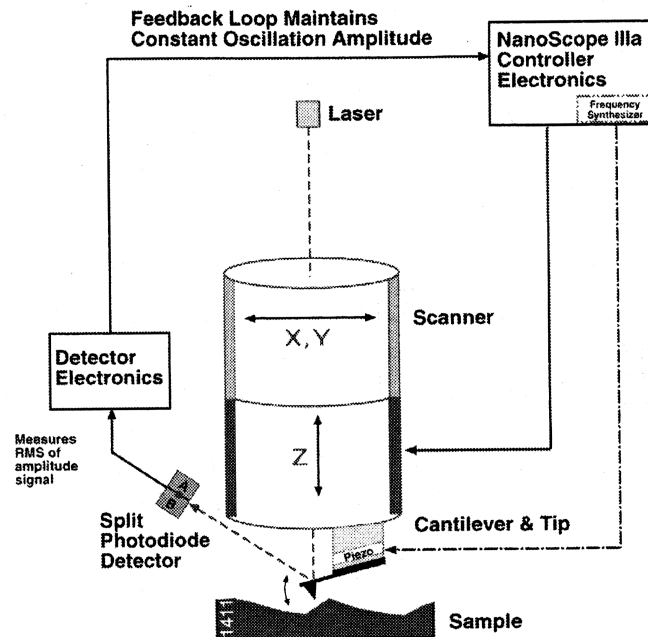


figure 1: schéma de principe de fonctionnement du microscope à force atomique en mode « tapping »

Sur le matériau irradié, chaque zone correspondant à l'impact d'un ion projectile aura une structure et des propriétés notablement différentes de celles du matériau vierge. Les défauts de la surface entraînent donc une modification locale des forces pointe-surface mises en jeu lors d'une observation par microscopie à champ proche. Ainsi, en plus des modifications de topographie, les changements dans l'interaction pointe-surface seront imagés au niveau de l'émergence des traces latentes. Les modifications de cette interaction se traduisent par un changement du déphasage entre l'excitation et la réponse dans l'oscillation de la poutre. Les images AFM des traces dans le dioxyde d'uranium ont été obtenues en mode « tapping ». En effet, lors de l'observation en mode « contact », la topographie de la surface du dioxyde d'uranium aux joints de grain étant très perturbée, la pointe « décroche » de la surface, rendant impossible l'observation.

## II - Rayons des traces observées

Grâce au mode « tapping », nous pouvons visualiser la surface du dioxyde d'uranium avec une résolution inférieure au nanomètre, et ainsi observer individuellement les traces latentes. Pour chaque irradiation, le diamètre des traces est mesuré en reproduisant en son maximum la coupe de la trace par une gaussienne. Le diamètre est alors défini comme étant 2,35 fois l'écart-type déviation standard de la gaussienne (figure 2).

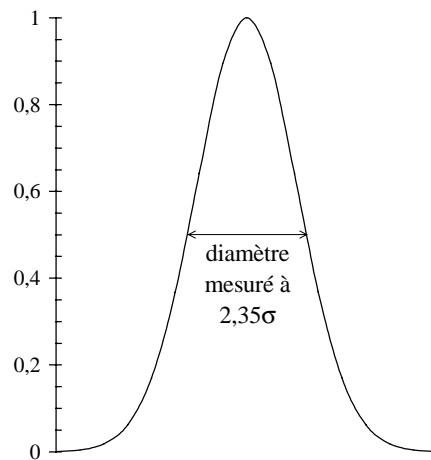


figure 2 : définition du diamètre de trace mesuré par AFM

Les fluences utilisées lors de nos observations sont suffisamment faibles pour permettre la visualisation des traces induites par le passage des ions de façon individuelle, c'est-à-dire sans recouvrement. La caractérisation des traces induites par l'irradiation est effectuée par l'analyse du nombre d'impacts par unité d'aire, qui correspond à la fluence d'irradiation, et par la distribution des diamètres des traces.

Les figures 3 à 6 représentent les images AFM de la surface du dioxyde d'uranium irradiée avec des agrégats de  $C_{60}$  d'énergie 20 MeV, avec des ions  $^{208}Pb$  d'énergie 1,6 MeV/uma et des ions  $^{181}Ta$  d'énergie 6 MeV/uma. Les spots blancs observés sur les images AFM sont des bosses et correspondent aux impacts des ions lourds ou agrégats projectiles.

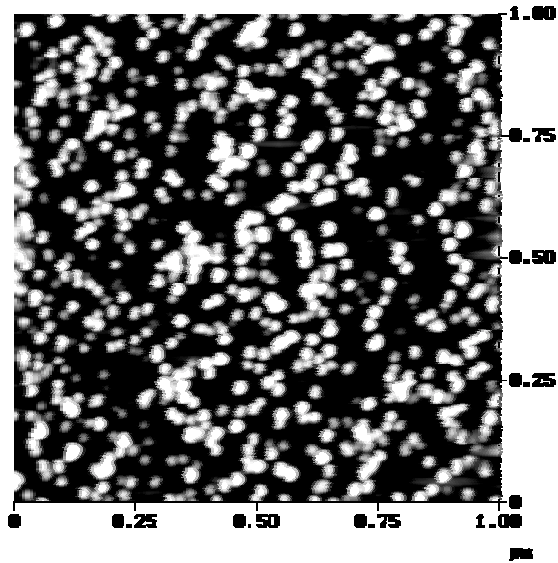


figure 3 : traces dans  $UO_2$  induites par des  $C_{60}$  de 20 MeV et observées par AFM

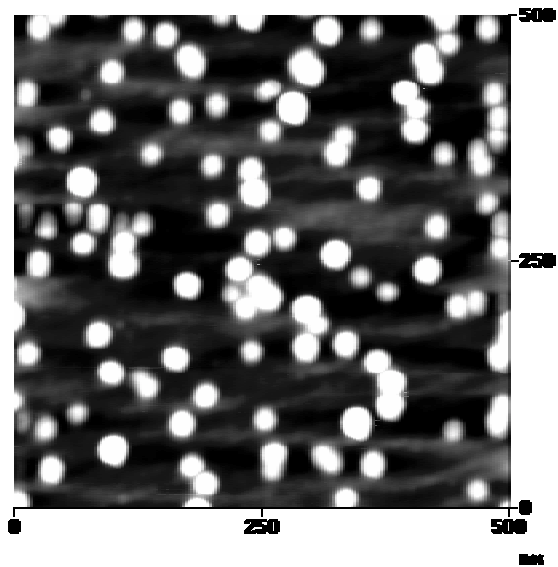


figure 4 : traces dans  $UO_2$  induites par des ions  $^{208}Pb$  de 1,6 MeV/uma et observées par AFM

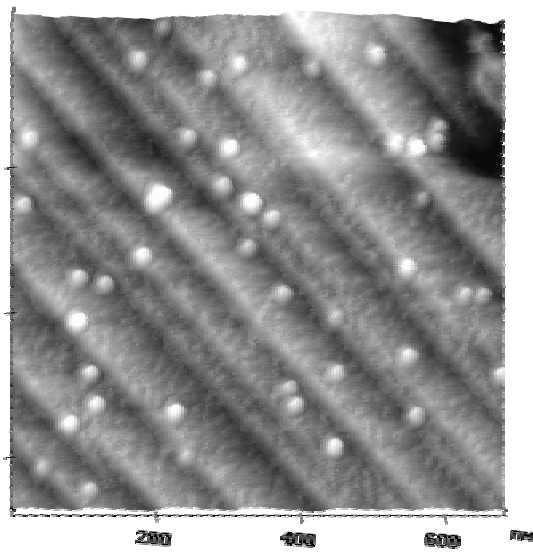


figure 5 : traces dans  $UO_2$  induites par des ions  $^{181}Ta$  de 6 MeV/uma et observées par AFM

Le tableau 1 résume les valeurs des rayons obtenues pour chaque irradiation. Nos mesures des rayons de traces, observées par AFM, ont été confirmées par A. Audouard. En effet, ce dernier a également observé les traces induites dans UO<sub>2</sub> par les ions lourds, avec un autre microscope à force atomique (de l'INSA de Toulouse).

Ions projectiles	Energie	$\frac{dE}{dx}_e$ (keV/nm)	Rayon (nm)	Mesures faites par :
<sup>107</sup> Ag	7,82 MeV/uma	23 <sup>1</sup>	7,0±1,2	S. Schlutig (AFM)
<sup>208</sup> Pb	1,6 MeV/uma	42	10,0±1,5	S. Schlutig (AFM)
<sup>181</sup> Ta	6 MeV/uma	49	12±1,5	S. Schlutig (AFM)
<sup>208</sup> Pb	1,07 GeV	55	15,5±3,0	A. Audouard (AFM)
C <sub>60</sub>	20 MeV	114	20,5±5,0	A. Audouard (AFM)
C <sub>60</sub>	20 MeV	114	17,0±8,0	A. Audouard (AFM)
C <sub>60</sub>	20 MeV	114	18,5±8,0	A. Audouard (AFM)
C <sub>60</sub>	20 MeV	114	17,0±4,0	S. Schlutig (AFM)

tableau 1 : récapitulatif des conditions d'irradiation et des valeurs des rayons de traces

L'ensemble des résultats obtenus pour le dioxyde d'uranium est résumé dans la figure 6. Chaque point représente le rayon déduit de la trace laissée par l'impact des projectiles allant des ions <sup>107</sup>Ag aux agrégats C<sub>60</sub>. Pour chaque ion projectile, le rayon correspond à une moyenne statistique sur au moins une cinquantaine de traces. Les incertitudes représentées caractérisent l'intervalle de confiance à l'intérieur duquel nous avons 95% de chance de trouver le diamètre moyen. Dans cette figure, nous avons également représenté l'évolution des rayons des traces observées par microscopie électronique à transmission (MET), par T. Wiss [Wiss 1997b].

Dans le cas d'ions lourds projectiles, les résultats obtenus par microscopie à force atomique présentent une évolution quasi-linéaire du rayon des traces en fonction du pouvoir d'arrêt électronique. Cette évolution quasi-linéaire, nous permet de définir un seuil de création de traces correspondant à environ 2 keV/nm pour les mesures AFM. Ce seuil est d'environ 15 keV/nm pour les traces observées par MET (figure 6), alors que Hj. Matzke et collaborateurs [Matzke 2000] situent le seuil de création de traces entre 22 et 29 keV/nm.

<sup>1</sup> Pour le faisceau d'ions <sup>107</sup>Ag, une feuille d'aluminium a été placée sur le trajet du faisceau, en amont de la cible de UO<sub>2</sub>, jouant ainsi le rôle de dégradeur en énergie. Son épaisseur a été choisie de façon à obtenir un pouvoir d'arrêt électronique d'environ 20 keV/nm.

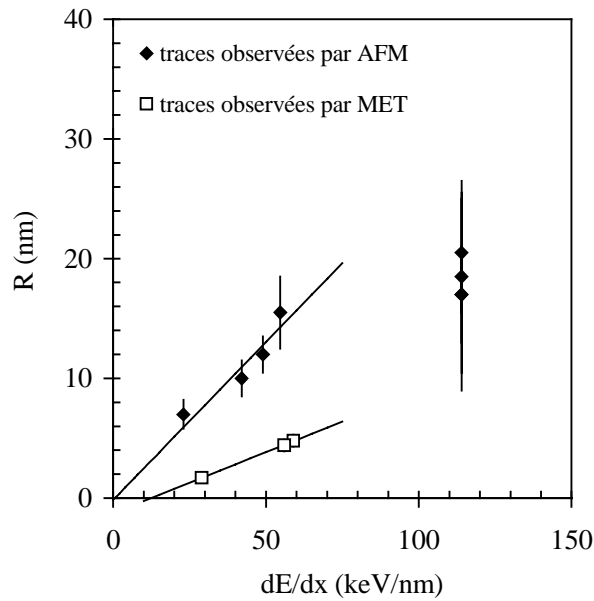


figure 6 : évolution des rayons de traces, observées par AFM (losanges noirs) et par MET [Wiss 1997b] (carrés blancs), en fonction du pouvoir d'arrêt électronique

### III - Bilan sur l'endommagement de $UO_2$

En AFM mode « tapping »<sup>2</sup>, comme en microscopie électronique à transmission (MET), une évolution linéaire du rayon des traces avec le pouvoir d'arrêt électronique est observée. Cependant, les rayons de traces déduits de l'analyse par AFM des cibles de dioxyde d'uranium sont nettement supérieurs à ceux obtenus par MET. Par exemple, pour  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_e \approx 55$

keV/nm, le rayon des traces par microscopie à force atomique est 3,5 fois plus grand que celui obtenu par MET. En fait, ces différences peuvent s'expliquer :

- par les différentes techniques de microscopie utilisées.

L'AFM et le MET n'étant pas sensibles aux mêmes parties de la trace, il pourrait exister une différence entre les valeurs des rayons mesurés à la surface et dans le cœur du matériau. En effet, le MET est sensible au désordre structural du matériau, alors que l'AFM décrit les modifications topographiques de surface. La création

d'une zone désordonnée au cœur du matériau induit obligatoirement des contraintes de compression autour de cette zone (observées par MET). Ces contraintes peuvent conduire à

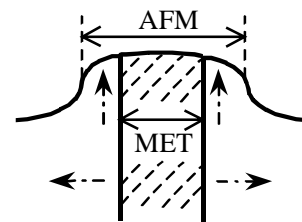
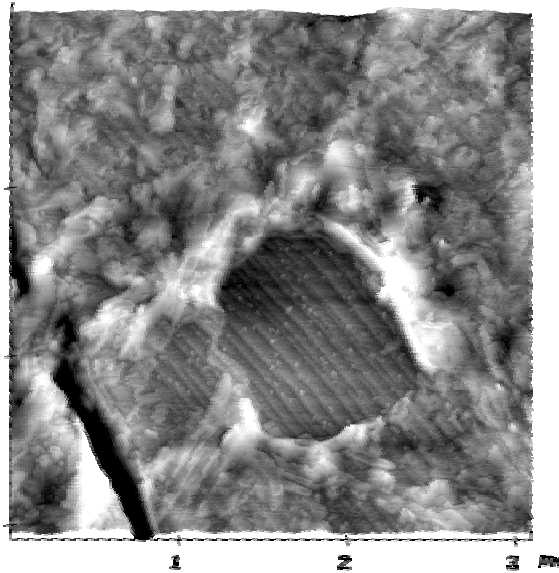


figure 7 : schéma représentant le diamètre mesuré par MET et le diamètre mesuré par AFM

<sup>2</sup> Si les rayons de traces obtenus avec les agrégats de  $C_{60}$  ne sont pas considérés.

des déformations de la surface. Ainsi, les mesures par AFM incluront ces déformations, situées au-delà du cœur de la trace (figure 7).

- par une réactivité de la surface après irradiation. Lors de l'observation de  $UO_2$  irradié avec des ions  $^{181}Ta$ , une couche de pollution située à la surface du dioxyde d'uranium a rendu difficile la visualisation des traces (figure 8).



*figure 8 : image obtenue par AFM d'une surface de  $UO_2$  après irradiation avec des ions  $^{181}Ta$*

*Au premier plan, se trouve une couche de pollution et au milieu de cette couche apparaît une ouverture laissant découvrir la surface du dioxyde d'uranium caractérisée par les traces de polissage.*

Nous attribuons cette couche de pollution à une oxydation de la surface du dioxyde d'uranium, confirmée par une analyse par diffraction X. L'irradiation aux ions lourds pourrait rendre la surface de  $UO_2$  plus réactive, accélérant ainsi le processus d'oxydation à la surface. Cette oxydation pourrait également provoquer un élargissement des traces, pouvant également influencer la pulvérisation. T. Wiss ne rencontre pas ce problème de pollution, puisque, après irradiation, le dioxyde d'uranium est soumis à un traitement thermique et mécanique avant l'observation au MET. D'ailleurs la question peut se poser sur l'influence de ces traitements sur le diamètre des traces...

# *Annexe 4*

## *Interprétation des résultats par le modèle de la pointe thermique*

La perspective première de notre étude était de comprendre les mécanismes de mise en mouvement des atomes dans le sillage d'un ion lourd rapide grâce aux atomes d'uranium éjectés de la cible de  $\text{UO}_2$ . Or, ni l'évolution des distributions angulaires, ni celle des rendements de pulvérisation ne nous permettent de montrer clairement si la pulvérisation est un phénomène thermique ou hydrodynamique ou, éventuellement, une combinaison des deux. Afin de répondre à ces interrogations, nous présentons dans cette annexe les résultats concernant l'interprétation de l'évolution, d'une part, des rayons de traces observées et, d'autre part, des rendements de pulvérisation obtenus expérimentalement, par le modèle de la pointe thermique et son programme associé, développé au CIRIL par M. Toulemonde et collaborateurs.

### **I - Présentation du modèle**

Du point de vue de la pointe thermique, les traces apparaissant dans le dioxyde d'uranium au-delà d'un pouvoir d'arrêt seuil résultent d'une élévation de la température. Dans le chapitre 1, nous avons décrit succinctement les principes de ce modèle, que nous reprenons ici plus en détail [Dufour 1993a]. Le matériau étudié est constitué de deux sous-systèmes en interaction :

- le gaz d'électrons, à la température  $T_e$ , caractérisé par sa chaleur spécifique  $C_e$  et sa conductivité thermique  $K_e$
- le réseau atomique, à la température  $T_a$ , caractérisé lui aussi par sa chaleur spécifique  $C_a$  et sa conductivité thermique  $K_a$ .

Le transfert d'énergie des ions incidents vers le matériau se fait en deux temps :

- 1) l'énergie des ions incidents est déposée sur les électrons en un temps de l'ordre de  $10^{-15}$ s,
- 2) l'énergie est ensuite transférée des électrons vers les atomes en un temps variant de  $10^{-13}$ s à  $10^{-10}$ s. Ce transfert est gouverné par le couplage électron-phonon.

Au cours de ce processus, l'énergie diffuse radialement dans les deux sous-systèmes. Le bilan de transfert d'énergie se traduit par l'écriture de deux équations différentielles régissant l'évolution de la température des deux sous-systèmes. Ce bilan s'établit dans une géométrie cylindrique dont l'axe (Ox) est l'axe de passage des ions ; r est la distance à cet axe et t le temps (figure 1) :

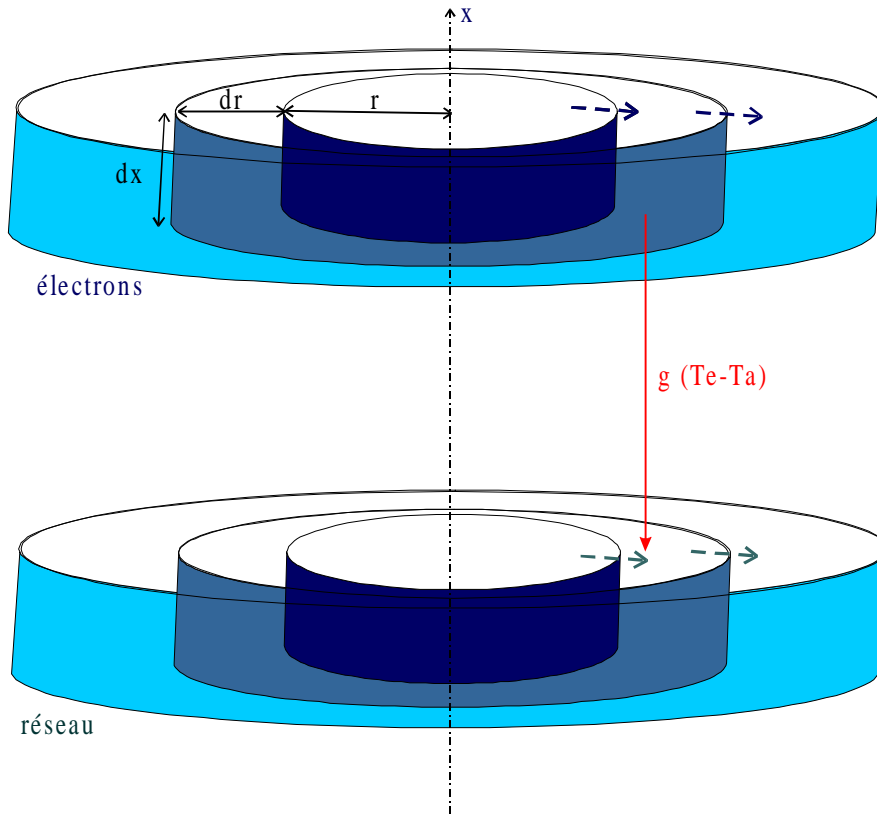


figure 1 : transfert d'énergie entre le gaz d'électrons et le réseau en géométrie cylindrique  
Les flèches en pointillés représentent la diffusion d'énergie dans les deux sous-systèmes.

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

$$C_a \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial r} \right) + g(T_e - T_a) \quad (2)$$

$\underbrace{\hspace{10em}}_{\parallel} \quad \underbrace{\hspace{10em}}_{\parallel} \quad \underbrace{\hspace{10em}}_{\parallel}$



Le terme  $\eta$  correspond à la diffusion thermique selon la loi de Fourier.

Le terme  $\mu$  décrit le transfert de l'énergie des électrons vers le réseau où  $g$  est la constante de couplage électron-phonon.

Le terme  $\epsilon$  représente l'énergie déposée sur les électrons par l'ion incident.

## II - Paramètres utilisés pour la solution numérique

Plusieurs questions se posent quant aux valeurs à prendre pour certaines caractéristiques thermiques, notamment du système d'électrons. En effet, le modèle de 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). La définition d'une diffusivité thermique électronique a alors tout son sens ( $D_e = \frac{K_e}{C_e}$ ).

En revanche, dans les isolants, les électrons chauds issus de la région excitée ne peuvent interagir qu'entre eux et avec les électrons de la bande de valence du solide. Ce dernier processus cesse lorsque l'énergie cinétique des électrons chauds devient inférieure à la largeur de la bande interdite. Ainsi, dans le cas des isolants, la définition d'une diffusivité thermique électronique est beaucoup plus délicate. Néanmoins, en nous référant à des travaux antérieurs et en considérant que pour un isolant les électrons chauds de la bande de conduction se comportent de la même manière que dans les métaux [Baranov 1988], le modèle de gaz d'électrons libres peut être appliqué. Dans ce cas, la chaleur spécifique vaut :  $C_e = \frac{3}{2} N_e k_B$ ,  $k_B$  étant la constante de Boltzmann et  $N_e$  le nombre d'électrons participant à la diffusion de l'énergie. En supposant une densité électronique d'environ  $5 \times 10^{22} \text{ e.cm}^{-3}$ , la valeur de  $C_e$  correspond alors à  $1 \text{ J.cm}^{-3}.\text{K}^{-1}$  [Dufour 1993b]. De plus, dans le modèle du gaz d'électrons libres,  $D_e$  est égale à  $\frac{1}{3} \ell v_F$ ,  $\ell$  correspondant au libre parcours moyen et  $v_F$  représentant la vitesse de Fermi ( $\approx 10^8 \text{ cm.s}^{-1}$ ). Cette relation décrit assez bien la diffusion de l'énergie sur les électrons dans un métal, comme par exemple l'or à température ambiante, en utilisant une valeur  $\ell$  de 40 nm [Dufour 1993b, Dufour 1996]. Dans le cas d'une forte température électronique, en utilisant une valeur minimale  $\ell$  égale à la distance interatomique, la relation

conduit à  $D_e=2 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ . Ainsi, en connaissant  $C_e$  et  $D_e$ , la conductivité thermique  $K_e$  est égale à  $2 \text{ J.cm}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{K}^{-1}$ .

Le couplage électron-phonon,  $g$  (en  $\text{W.cm}^{-3}.\text{K}^{-1}$ ), n'est pas directement fourni dans la littérature pour les isolants. Cependant, sa valeur est supposée être plus élevée pour les cristaux ioniques, comme par exemple  $\text{UO}_2$ , que pour les cristaux covalents [Hayes 1985].

$g$  est lié au temps moyen d'interaction électron-phonon,  $\tau_a$ , par la relation  $\tau_a = \frac{C_e}{g}$  [Toulemonde 1996], et  $\tau_a$  est lié à la longueur moyenne de diffusion thermique, notée  $\lambda$ , par la relation :

$$\lambda^2 = \frac{D_e C_e}{g} = \frac{K_e}{g}$$

$\lambda$  est le seul paramètre ajustable du modèle et dépend de  $D_e$  et  $C_e$  posés comme constants quel que soit le matériau étudié. Les études sur les isolants montrent que  $\lambda$  est de l'ordre de quelques nanomètres.

En ce qui concerne le terme  $\parallel$ ,  $A(r, t)$  représente l'énergie déposée sur les électrons par l'ion incident. La forme suivante a été adoptée :

$$A(r,t) = S_e \times f(r) \times h(t)$$

$S_e$  représente la section efficace d'arrêt correspondant à  $\frac{dE/dx}{\text{nombre d'atomes/cm}^3}$ ,  $f(r)$  décrit la distribution spatiale en énergie initiale, parfaitement définie par B. Gervais et collaborateurs [Gervais 1993] pour tenir compte des effets de vitesse et de charge,  $h(t)$  est une fonction gaussienne centrée sur  $t_0=10^{-15}$  s, d'écart type  $\sigma$  (tel que  $\sigma = t_0=10^{-15}$  s), qui correspond au temps nécessaire pour ralentir les électrons  $\delta$  [Gervais 1993].

Il n'existe pas de solution analytique pour les deux équations (1) et (2) dans la mesure où les paramètres de calcul ne dépendent pas linéairement de la température. De plus, il faut tenir compte des transitions de phase possibles (solide-liquide et liquide-gaz) lors de ces processus thermiques. Par exemple, lorsque la température de fusion est atteinte, la quantité d'énergie apportée dans une couronne donnée ne se traduit pas par une augmentation de la température mais par une augmentation d'enthalpie que l'on compare à l'enthalpie de changement de phase solide-liquide. Cela se manifeste par un palier de température à la température de

fusion. Une fois ce changement d'état atteint, le calcul reprend de manière analogue avec une augmentation de température jusqu'à atteindre la température de vaporisation pour laquelle le phénomène est observé. Pour cela, nous supposons que la température de fusion reste identique à la valeur macroscopique.

La dissipation de la chaleur dans le réseau est régie par les paramètres thermodynamiques macroscopiques du matériau, reportés dans le tableau 1.

Propriétés thermodynamiques	Valeurs	Références
Température de fusion (K)	3120	<a href="http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html">http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html</a>
Chaleur latente de fusion (J/g)	277	<a href="http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html">http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html</a>
Température de vaporisation (K)	3815	<a href="http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html">http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html</a>
Chaleur latente de vaporisation (J/g)	1531	<a href="http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html">http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html</a>
Masse volumique solide (g/cm <sup>3</sup> )	10,96	[Belle 1961]
Masse volumique liquide (g/cm <sup>3</sup> )	8,6	<a href="http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html">http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html</a>
Chaleur spécifique C <sub>a</sub> (J.g <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	300 0,26 600 0,295 1600 0,333 2000 0,37 2300 0,44 2500 0,518 2700 0,630 3100 0,48 3800 0,333	<a href="http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html">http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html</a>
Conductivité thermique K <sub>a</sub> (W.K <sup>-1</sup> .cm <sup>-1</sup> )	300 0,0976 600 0,0597 1600 0,0267 2000 0,0245 2300 0,0259 2500 0,0281 2700 0,0311 3100 0,0391	<a href="http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html">http://www.insc.anl.gov/matprop/uo2/uo2.html</a>

tableau 1 : propriétés thermodynamiques de UO<sub>2</sub>

La modélisation nécessite la connaissance du paramètre libre  $\lambda$ , représentant le libre parcours moyen de l'interaction électron-phonon. L'étude d'un certain nombre d'isolants a permis d'obtenir une représentation unifiée de ce paramètre  $\lambda$ , à condition de faire les hypothèses suivantes [Toulemonde 2000] :

- la création de traces dans les matériaux amorphisables correspond à une fusion,
- la création de traces dans les matériaux non amorphisables correspond à une vaporisation.

La valeur de  $\lambda$  est ajustée afin que le rayon de la zone fondue ou vaporisée coïncide avec le rayon des traces observées. La figure 2, représentant l'évolution du couplage électron-phonon  $\lambda$  en fonction de la bande interdite, montre que  $\lambda$  est d'autant plus grand que la largeur de bande interdite est faible. Cette figure met ainsi en évidence une corrélation entre la largeur de la bande interdite et le paramètre  $\lambda$ .

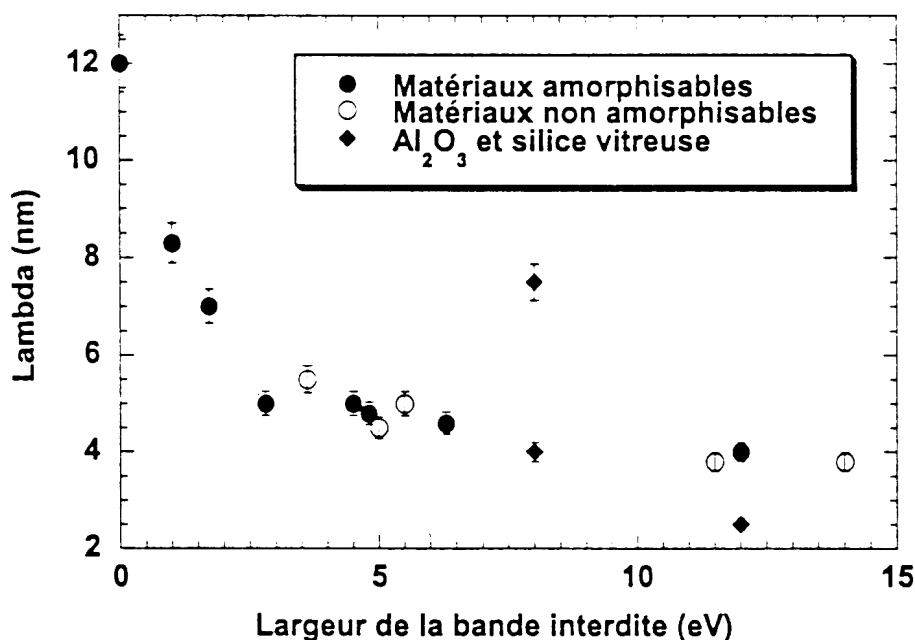


figure 2 : évolution du paramètre  $\lambda$ , issu des calculs de pointe thermique, en fonction de  $E_g$ , la largeur de bande interdite du matériau amorphisable, d'après M. Toulemonde et collaborateurs [Toulemonde 2000]

La largeur de la bande interdite,  $E_g$ , dans le dioxyde d'uranium étant de 5 eV [Kelly 1987], les calculs seront effectués en utilisant un paramètre  $\lambda$  compris entre 4 et 6 nm. La réalité physique du paramètre  $\lambda$  n'étant pas évidente, ce dernier sera néanmoins considéré comme un paramètre permettant d'ajuster le couplage électron-phonon.

Les figures 3 et 4 décrivent, pour une valeur  $\lambda$  de 5 nm, l'évolution des températures de réseau, calculées en fonction du temps  $t$ , pour des ions projectiles U d'énergie 5 MeV/uma, de pouvoir d'arrêt 60 keV/nm et des ions projectiles Xe d'énergie 5 MeV/uma, de pouvoir d'arrêt 30 keV/nm. A partir de ces courbes, nous pouvons définir le rayon de la zone fondue et celui de la zone vaporisée.

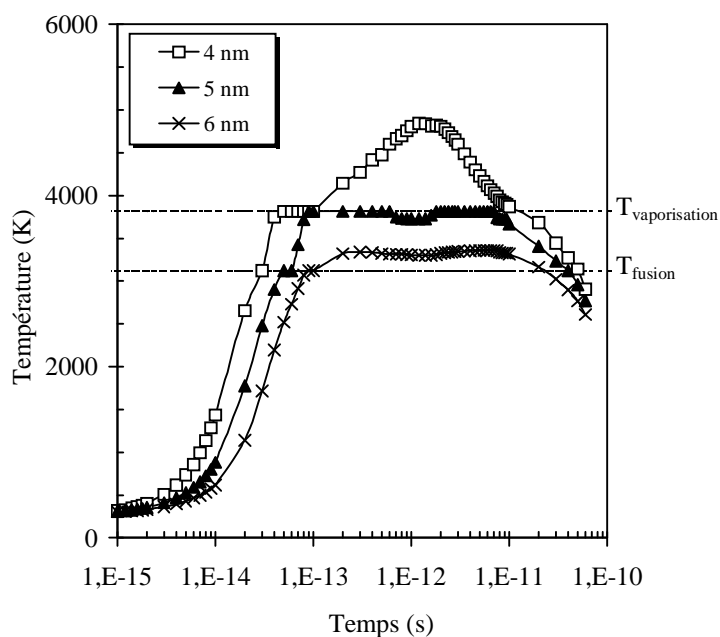


figure 3 : évolution de la température atomique en fonction du temps  $t$  pour trois distances à la trajectoire d'un ion U

Sur la figure 3 , nous remarquons que pour des distances de 4 à 5 nm de l'impact de l'ion lourd projectile U, la température atomique dépasse la température de vaporisation, alors que pour la distance de 6 nm, la température est inférieure à la température de vaporisation. Par conséquent, le rayon maximal à l'intérieur duquel la température de vaporisation a été dépassée est de 5 nm. Pour l'ion projectile Xe, le rayon vaporisé n'est que de 2 nm (figure 4).

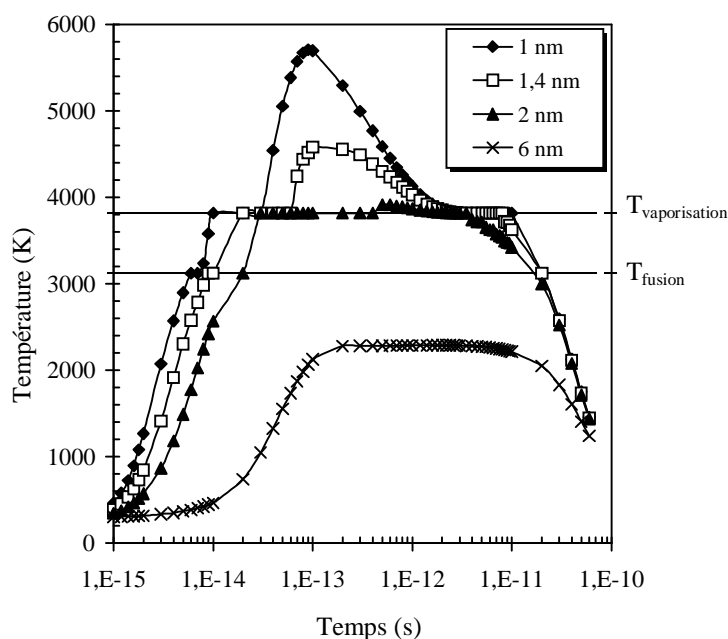


figure 4 : évolution de la température atomique en fonction du temps  $t$  pour quatre distances à la trajectoire d'un ion Xe

## III - Résultats et commentaires

### III.1 - Les rayons de traces

Comme nous l'avons vu précédemment, les traces observées par microscopie électronique à transmission [Wiss 1997b] sont plus représentatives des traces latentes induites par l'impact d'ions lourds dans le dioxyde d'uranium que celles obtenues par microscopie à force atomique. Ainsi, dans ce paragraphe, les rayons de traces considérés sont ceux obtenus expérimentalement par T. Wiss [Wiss 1997b]. Ces derniers sont reportés sur la figure 5 et sont comparés à ceux déduits des calculs pour différentes valeurs du paramètre  $\lambda$ . Le meilleur accord est obtenu pour  $\lambda=4$  nm.

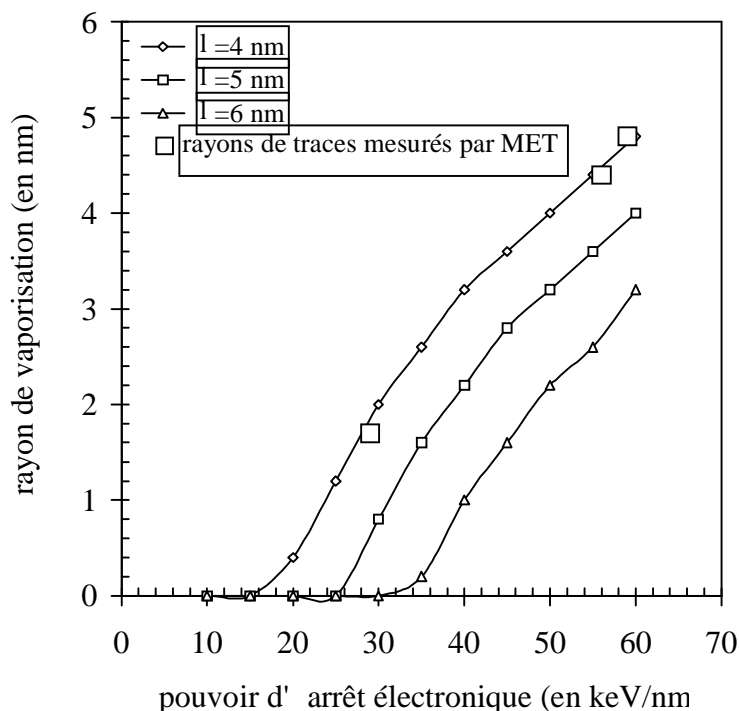


figure 5: évolution des rayons calculés des zones vaporisées en fonction du pouvoir d'arrêt électronique pour trois valeurs différentes du paramètre  $\lambda$ . Les carrés blancs correspondent aux rayons de traces mesurés par T. Wiss dans  $\text{UO}_2$ .

D'après ces résultats, le modèle de la pointe thermique semble bien décrire la formation des traces en utilisant **le critère de vaporisation pour un matériau non amorphisable** à la place **du critère de fusion pour les matériaux amorphisables**. Le point obtenu avec les mesures faites par T. Wiss dans  $\text{UO}_2$  ( $E_g=5$  eV,  $\lambda=4$  nm) confirme la corrélation entre le

paramètre d'expansion de l'énergie  $\lambda$  et la largeur de la bande interdite dans l'ensemble des matériaux isolants.

De plus, la courbe correspondant à  $\lambda=4$  nm, obtenue par calculs, permet de déterminer un seuil de création de traces dans le dioxyde d'uranium égal à 15 keV/nm, c'est-à-dire identique au pouvoir d'arrêt correspondant au changement de régime de pulvérisation dans UO<sub>2</sub>. Ainsi, ces calculs montrent que, d'une part, le seuil de création de traces estimé par Hj. Matzke et collaborateurs [Matzke 2000] semble être surestimé et, d'autre part, la création de traces et la pulvérisation peuvent être deux phénomènes fortement corrélés.

### III.2 - Les rendements de pulvérisation

Afin de savoir si l'élévation de température est responsable de la pulvérisation d'atomes en surface, nous comparons nos résultats expérimentaux avec ceux proposés par le programme de la pointe thermique. Par abus de langage, le terme générique « pointe thermique » est utilisé pour la partie pulvérisation. Or, comme nous l'avons vu au chapitre 2, deux types de modèles existent pour la pulvérisation par pointe thermique : la pulvérisation par évaporation thermique et celle par flux gazeux. Le programme utilisé, en vue de l'interprétation des résultats de pulvérisation, est basé sur un modèle d'évaporation thermique.

Sigmund & Clausen [Sigmund 1981b] ont proposé un modèle pour expliquer la pulvérisation d'atomes à la surface de métaux bombardés par des ions lourds. Le comportement du réseau atomique est assimilé à celui d'un gaz parfait de particules de masse M en équilibre dans une enceinte à une température T. Ces particules suivent la statistique de Maxwell-Boltzmann. Le flux de particules pouvant être éjecté de la surface de la cible s'écrit :

$$\phi = N \sqrt{\frac{k_B T_a(r,t)}{2\pi M}} \times \exp\left(-\frac{U}{k_B T_a(r,t)}\right)$$

où  $k_B$  correspond à la constante de Boltzmann, N à la densité atomique,  $T_a(r,t)$  représente la distribution de température atomique donnée par les calculs de pointe thermique et U est le potentiel de l'énergie de surface. L'hypothèse est faite que l'énergie de surface est équivalente à l'énergie de sublimation. Pour le dioxyde d'uranium, l'énergie de surface U vaut 2,68 eV.

La figure 6 présente l'évolution du rendement d'atomes d'uranium  $^{235}\text{U}$  pulvérisés en fonction du pouvoir d'arrêt électronique,  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_e$ , pour différents  $\lambda$ . Sur cette figure, sont également reportés les rendements d'atomes d'uranium pulvérisés obtenus dans le cas où  $\psi=0^\circ$  (les cercles noirs).

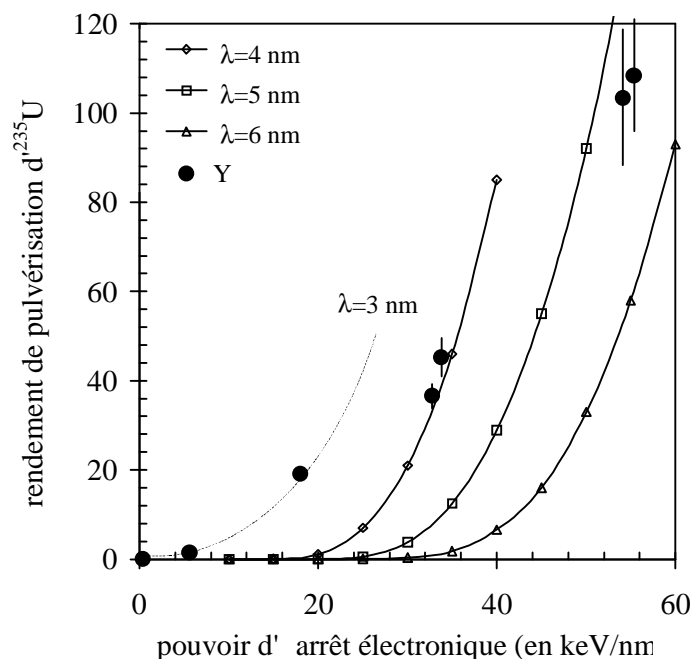


figure 6 : évolution des rendements de pulvérisation calculés en fonction du pouvoir d'arrêt électronique pour trois valeurs différentes de  $\lambda$   
Les cercles noirs correspondent aux rendements de pulvérisation expérimentaux.

En utilisant le modèle de pulvérisation par évaporation thermique afin d'interpréter les rendements d'atomes d'uranium pulvérisés, plusieurs valeurs de  $\lambda$  sont déduites : lorsque  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_e \leq 18$  keV/nm,  $\lambda \approx 3$  nm, pour  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_e \approx 33$  keV/nm,  $\lambda = 4$  nm et enfin pour  $\left. \frac{dE}{dx} \right|_e \approx 55$  keV/nm,  $5 \text{ nm} < \lambda < 6$  nm. En fait, seuls les rendements de pulvérisation obtenus pour un pouvoir d'arrêt électronique équivalent à 33 keV/nm donnent la même valeur de  $\lambda$  que celle obtenue avec les rayons de traces. Les différentes valeurs de  $\lambda$  obtenues confirment le fait qu'un modèle d'évaporation thermique n'est pas en mesure d'interpréter l'ensemble des rendements de pulvérisation expérimentaux. En outre, rappelons que les distributions angulaires des atomes d'uranium pulvérisés, étant de la forme  $A \times \cos^n(\theta + \theta_0)$  avec  $n > 2,88$ , ne sont pas du tout en accord avec une hypothèse d'évaporation thermique, qui prédit une éjection des particules pulvérisées en  $(\cos\theta)^1$ .



Bien qu'à partir de quelques hypothèses simples, le modèle phénoménologique de la pointe thermique donne des résultats satisfaisants pour le diamètre des traces, il n'en est pas de même concernant la pulvérisation. Le problème du modèle de la pointe thermique pour la pulvérisation peut provenir de la supposition faite sur l'énergie de surface. En effet, cette énergie correspond à une énergie de sublimation lorsque l'énergie communiquée aux atomes est faible, mais nous pouvons nous poser la question du devenir de l'énergie de surface lorsque l'énergie communiquée aux atomes est élevée. De plus, dans le modèle de la pointe thermique appliquée au rendement de pulvérisation, nous supposons que ce sont des atomes d'uranium qui sont pulvérisés du dioxyde d'uranium lors de l'impact d'ions lourds projectiles. Or, au cours de la pulvérisation cette masse peut varier, avec l'émission d'agrégats d'uranium.

# *Bibliographie*

- Aleksandrov 1975* : B.M. Aleksandrov, N.V. Babadzhanyants, I.A. Baranov, A.S. Krivokhatskii, L.M. Krizhanskii and V.V. Obnorskii, *Sov. At. Energ.* **38**, 57 (1975).
- Andersen 1985* : H.H. Andersen, B. Stenum, T. Sørensen and H.J. Whitlow, *Nucl. Instr. and Meth. B* **6**, 459 (1985).
- Baranov 1988* : I.A. Baranov, Yu.V. Martynenko, S.O. Tsepelevich and Yu.N. Yavlinskii, *Sov. Phys. Usp.* **31**, 1015 (1988).
- Barbu 1991* : A. Barbu, A. Dunlop, D. Lesueur and R. Averbach, *Europhys. Lett.* **15**, 37 (1991).
- Belle 1961* : J. Belle, uranium dioxide : properties and nuclear applications, Government Printing Office, Washington D.C. (1961).
- Bethe 1930* : H. Bethe, *Ann. Physik* **4**, 443 (1930).
- Bethe 1933* : H. Bethe, *Handbuch der Physik* **14**, 491 (1933).
- Betz 1994* : G. Betz and K. Wien, *Int. J. Mass Spec. Ion Proc.* **140**, 1 (1994).
- Biersack 1968* : J.P. Biersack, *Z. Phys.* **211**, 495 (1968).
- Biersack 1974* : J.P. Biersack, D. Fink and P. Mertens, *J. Nucl. Mat.* **53**, 194 (1974).
- Biersack 1980* : J.P. Biersack, L.G. Haggmark, *Nucl. Instr. and Meth. B* **174**, 257 (1980).
- Biersack 1984* : J.P. Biersack and W. Eckstein, *Appl. Phys. A* **34**, 73 (1984).
- Bird 1976* : G.A. Bird, *Molecular Gas Dynamics*, Oxford University Press (1976).
- Birtcher 2000* : R.C. Birtcher, S.E. Donnelly, S. Schlutig, *Phys. Rev. Letters* **85**, 4968 (2000).
- Bitensky 1987* : I.S. Bitensky and E.S. Parilis, *Nucl. Instr. and Meth. B* **21**, 26 (1987).
- Bitensky 1990* : I.S. Bitensky, A.M. Goldenberg and E.S. Parilis, *Ion Formation from Organic Solids (IFOS V)*, ed. A. Hedin, 205 (1990).
- Blank 1970* : H. Blank, *J. Nucl. Mater.* **51**, 269 (1970).

- Bolbach 1987* : G. Bolbach, S. Della Negra, C. Deprun, Y. LeBeyec and K.G. Standing, *Rapid. Comm. Mass. Spectrom.* **1**, 22 (1987).
- Bonnin 1997* : M. Bonnin-Mosbah, J.P. Duraud et S. Ayrault, communication privée.
- Bringa 1999* : E.M. Bringa, R.E. Johnson and . Dutkiewicz, *Nucl. Instr. and Meth. B* **152**, 267 (1999).
- Brown 1980* : W.L. Brown, W.M. Augustiniak, E. Brady, B. Cooper, L.J. Lanzerotti, A. Ramirez, B. Evatt and R.E. Johnson, *Nucl. Instr. and Meth. B* **170**, 321 (1980).
- Brown 1993* : W.L. Brown, in *Ionization in Solids by Secondary Electrons*, ed. R.A. Baragiola, Plenum, 395 (1993).
- Brunet 1985* : G. Brunet, C.H. Leung, *Solid State Comm.* **53**, 607 (1985).
- Carter 1983* : G. Carter, B. Navinšek and J.L. Whitton, in *Sputtering by particle bombardment II*, ed. R. Behrisch, 231 (1983).
- Chailley 1996* : V. Chailley, Thèse de l'Université de Caen (1996).
- Constantini 1992* : J. Constantini, F. Brisard, J. Flament, A. Meftah, M. Toulemonde and M. Hage-Hali, *Nucl. Instr. and Meth. B* **65**, 568 (1992).
- David 1986* : D.E. David, T.F. Magnera, R-J. Tian, D. Stulik and J. Michl, *Nucl. Instr. and Meth. B* **14**, 378 (1986).
- Della-Negra 1987* : S. Della-Negra, O. Becker, W. Guthier, R. Cotter, Y. Le Beyec, B. Monart, K. Standing, K. Wien, *J. Physique* **48**, 261 (1987).
- Desauer 1923* : F. Desauer, *Z. Physik* **38**, 12 (1923).
- Dufour 1993a* : C. Dufour, Thèse de l'Université de Caen (1993).
- Dufour 1993b* : Ch. Dufour, A. Audouard, F. Beuneu, J. Dural, J.P. Girard, A. Hairie, M. Levalois, E. Paumier and M. Toulemonde, *J. Phys. : Condens. Matter* **5**, 4573 (1993).
- Dufour 1996* : Ch. Dufour, Z.G. Wang, M. Levalois, P. Marie, E. Paumier, F. Pawlak and M. Toulemonde, *Nucl. Instr. and Meth. B* **107**, 218 (1996).
- Duraud 1996* : J.P. Duraud, M. Mosbah and S. Ayrault, communication privée.
- Dwivedi 1993* : K.K. Dwivedi, S. Ghosh and J. Ran, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* **22**, 45 (1993).
- Ens 1983* : W. Ens, R. Beavis and K.G. Standing, *Phys. Rev. Letters* **50**, 27 (1983).
- Eriksson 1996* : J. Eriksson, P. Demirev, P. Håkansson, R.M. Papaléo and B.U.R. Sundqvist, *Physical Review B* **54**, 15025 (1996).

- Evatt 1980* : R. Evatt and R.E. Johnson, Radiat. Effects **52**, 187 (1980).
- Fenyö 1992* : D. Fenyö, R.E. Johnson, Phys. Rev. B **46**, 5090 (1992).
- Firsov 1959* : O.B. Firsov, Sov. Phys. JETP **9**, 1076 (1959).
- Fleischer 1963* : R.L. Fleischer and P.B. Price, Science **140**, 1220 (1963).
- Fleischer 1964a* : R.L. Fleischer and P.B. Price, J. Geophys. Res. **69**, 331 (1964).
- Fleischer 1964b* : R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker and F.L. Hubbard, Phys. Rev. A **133**, 1443 (1964).
- Fleischer 1965* : R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, Ann. Rev. Sci. **15**, 1 (1965).
- Fleischer 1967* : R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, Phys. Rev. **156**, 353 (1967).
- Fleischer 1975* : R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, « Nuclear Tracks in Solids, Principles and Applications », University of California Press (1975).
- Fleischer 1998* : R.L. Fleischer, « Tracks to Innovation », Springer (1998).
- Garrido 1997* : F. Garrido, C. Choffel, J.C. Dran, L. Thomé, L. Nowicki and A. Tuross, Nucl. Instr. and Meth. B **128**, 634 (1997).
- Gerhard 1975* : W. Gerhard, Z. Phys. B **22**, 31 (1975).
- Gervais 1993* : B. Gervais, Thèse de l'Université de Caen (1993).
- Goldstein 1902* : E. Goldstein, Verh. Dtsch. Phys. Ges., **4**, 228, 237 (1902).
- Gregg 1977* : R. Gregg, Z.E. Switovski and T.A. Tombrello, Nucl. Instr. and Meth. B **144**, 613 (1977).
- Gregg 1978* : R. Gregg and T.A. Tombrello, Radiat. Effects **35**, 243 (1978).
- Griffith 1980* : J.E. Griffith, R.A. Weller, L.E. Seiberling and T.A. Tombrello, Rad. Effects **51**, 223 (1980).
- Gronvold 1955* : J. Inorganic and Nucl. Chem. **1**, 357 (1955).
- Grove 1853* : W.R. Grove, Philos. Mag. **5**, 203 (1853).
- Grundy 1969* : R.E. Grundy, Phys. Fluids **12**, 2011 (1969).

- Guinan 1974* : M.J. Guinan, J. Nucl. Mater. **53**, 171 (1974).
- Guthier 1986* : W. Guthier, edited by A. Benninghoven, Springer Proc. Phys. **9**, 17 (1986).
- Haff 1976* : P.K. Haff, Appl. Phys. Lett. **29**, 473 (1976).
- Håkansson 1982a* : P. Håkansson and B. Sundqvist, Radiat. Eff. **61**, 179 (1982).
- Håkansson 1982b* : P. Håkansson, I. Kamensky and B. Sundqvist, Surf. Sci **116**, 302 (1982).
- Håkansson 1984* : P. Håkansson, I. Kamensky, M. Salehpour, B. Sundqvist and S. Widdiyasekera, Radiat. Eff. **80**, 141 (1984).
- Hayashiuchi 1977* : Y. Hayashiuchi, Y. Kitazoe, T. Sekia and Y. Yamamura, J. Nucl. Mater. **71**, 181 (1977).
- Hayes 1985* : W. Hayes, A. M. Stoneham, Defect and Defect Processes in Nonmetallic Solids, Wiley, New York (1985).
- Hébert 1998* : S. Hébert, Thèse de l'Université de Caen (1998).
- Hedin 1985* : A. Hedin, P. Håkansson, B.U.R. Sundqvist and R.E. Johnson, Phys. Rev. B **31**, 1780 (1985).
- Hedin 1987* : A. Hedin, P. Håkansson, M. Salehpour and B.U.R. Sundqvist, Phys. Rev. B **35**, 7377 (1987).
- Hémon 1998* : S. Hémon, C. Dufour, F. Gourbilleau, E. Paumier, E. Dooryhée and S. Begin-Collin, Nucl. Instr. and Meth B **146**, 443 (1998).
- Itoh 1987* : N. Itoh, Nucl. Instr. and Meth B **27**, 155 (1987).
- Johnson 1987a* : R.E. Johnson, Int. J. Mass Spec. Ion Proc. **78**, 357 (1987).
- Johnson 1987b* : R.E. Johnson, B. Sundqvist, P. Håkansson, A. Hedin, M. Salehpour and G. Saeve, Surf. Sci. **179**, 187 (1987).
- Johnson 1989* : R.E. Johnson, B.U. Sundqvist, A. Hedin, D. Fenyö, Phys. Rev. B **40**, 49 (1989).
- Johnson 1991* : R.E. Johnson, M. Pospieszalka, W.L. Brown, Phys. Rev. B **44**, 14 (1991).
- Johnson 1993a* : R.E. Johnson, in Ionization of Solids by Heavy Particles, ed. R.A. Baragiola, Plenum, 419 (1993).
- Johnson 1993b* : R.E. Johnson, J.Schou, Matematisk-fysiske Meddelelser **43**, 403 (1993).
- Kabler 1967* : M.N. Kabler, D.A. Patterson, Phys. Rev. Lett. **19**, 652 (1967).

- Kelly 1987* : P.J. Kelly and M.S.S. Brooks, J. Chem. Soc. Faraday Trans. **2**, 83, 1189 (1987).
- Kelly 1990* : R. Kelly, Nucl. Instr. and Meth. B **46**, 441 (1990).
- Kinchin 1955* : G. Kinchin and R. Pease, Rep. Prog. Phys. **18**, 1 (1955).
- Kitazoe 1980* : Y. Kitazoe and Y. Yamamura, Rad. Eff. Lett. **50**, 39 (1980).
- Kitazoe 1981* : Y. Kitazoe, N. Hiraoka and Y. Yamamura, Surf. Sci. **111**, 381 (1981).
- Können 1974* : G.P. Können, A. Tip and A.E. de Vries, Rad. Eff. **21**, 269 (1974).
- L'Ecuyer 1976* : J. L'Ecuyer, C. Brassard, C. Cardinal, J. Chabbal, L. Deschenes, J.P. Labrie, B. Terrault, J.G. Martel and R. St Jacques, J. Appl. Phys. **47**, 881 (1976).
- Lehman 1977* : C. Lehman, Interaction of Radiation with Solids and Elementary Defects Production. Amsterdam : North-Holland (1977).
- Leroy 1996* : C. Leroy, Thèse de l'Université de Caen (1996).
- Lesueur 1993* : D. Lesueur and A. Dunlop, Rad. Effects and Def. in Solids **126**, 163 (1993).
- Libbrecht 1980* : K.G. Libbrecht, J.E. Griffith, R.A. Weller and T.A. Tombrello, Rad. Effects **49**, 195 (1980).
- Lindhard 1961* : J. Lindhard and M. Scharff, Phys. Rev. **124**, 128 (1961).
- Lindhard 1963a* : J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff and P.V. Thomsen, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. **3**, 10 (1963).
- Lindhard 1963b* : J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff and P.V. Thomsen, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. **3**, 14 (1963).
- Lindhard 1963c* : J. Lindhard, M. Scharff, H.E. Schiott, Range concept and heavy ion range, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. **33** (1963).
- Lucchese 1987* : R.R. Lucchese, J. Chem. Phys. **86**, 443 (1987).
- Matsuda 1986* : Y. Matsuda, Y. Yamamura, Y. Ueda, K. Uchino, K. Muraoka, M. Maeda and M. Akazaki, Jpn. J. Appl. Phys. **24**, 8 (1986).
- Matzke 1966* : Hj. Matzke and J.L. Whitton, Can. J. Phys. **44**, 995 (1966).
- Matzke 1983* : Hj. Matzke and A. Turos, J. Nucl. Mater. **114**, 349 (1983).
- Matzke 1990* : Hj. Matzke and A. Turos, Nucl. Instr. and Meth. B **46**, 117 (1990).

- Matzke 1992* : Hj. Matzke and A. Turos, J. Nucl. Mater. **188**, 285 (1992).
- Matzke 1996a* : Hj. Matzke, Nucl. Instr. and Meth. B **65**, 30 (1996).
- Matzke 1996b* : Hj. Matzke, Nucl. Instr. and Meth. B **116**, 121 (1996).
- Matzke 2000* : Hj. Matzke, P.G. Lucuta and T. Wiss, Nucl. Instr. and Meth. B **166/167**, 920 (2000).
- Meftah 1993* : A. Meftah, F. Brisard, J.M. Constantini, M. Hage Ali, J.P. Stoquert, F. Studer and M. Toulemonde, Phys. Rev. B **48**, 920 (1993).
- Meins 1983* : C.K. Meins, J.E. Griffith, Y. Qiu, M.H. Mendenhall, L.E. Seiberling and T.A. Tombrello, Rad. Effects **71**, 13 (1983).
- Mieskes 1999* : H.D. Mieskes, Dissertation der Fakultät für Physik der Ludwig-Maximilians-Universität München (1999).
- Moshhammer 1991* : R. Moshhammer, Thesis, Institute of Nuclear Physics, Technische Hochschule Darmstadt (1991).
- Naguib 1975* : H.M. Naguib and R. Kelly, Rad. Effects **25**, 1 (1975).
- Price 1962* : P.B. Price and R.M. Walker, Nature **196**, 732 (1962).
- Qiu 1982* : Y. Qiu, J.E. Griffith and T.A. Tombrello, Rad. Effects **64**, 111 (1982).
- Qiu 1983* : Y. Qiu, J.E. Griffith, W.J. Meng and T.A. Tombrello, Rad. Effects **70**, 231 (1983).
- Reimann 1993* : C.T. Reimann, Matematisk-fysiske Meddelelser **43**, 351 (1993).
- Schenkel 1998* : T. Schenkel, A.V. Barnes, A.V. Hamza, D.H. Schneider, J.C. Banks and B.L. Doyle, Phys. Rev. Letters **80**, 4325 (1998).
- Schiwietz 1990* : G. Schiwietz, J.P. Biersack, D. Schneider, N. Stolterfoht, D. Fink, V.J. Montemayor, B. Skogvall, Phys. Rev. B **41**, 6292 (1990).
- Seiberling 1980* : L.E. Seiberling, J.E. Griffith and T.A. Tombrello, Rad. Effects **52**, 201 (1980).
- Seiberling 1982* : L.E. Seiberling, C.K. Meins, B.H. Cooper, J.E. Griffith, M.H. Mendenhall and T.A. Tombrello, Nucl. Instr. and Meth. B **198**, 17 (1982).
- Seitz 1956* : F. Seitz and J.S. Koehler, Solid State Physics **2**, 305 (1956).
- Shi-Jün 1988* : G. Shi-Jün, R. Brandt, P. Vater, R. Dersch, Nucl. Tracks and Radiat. Meas. **15**, 751 (1988).
- Sigmund 1969* : P. Sigmund, Phys. Rev. **184**, 383 (1969) ; **187**, 768 (1969).

- Sigmund 1974* : P. Sigmund, Appl. Phys. Lett. **25**, 169 (1974).
- Sigmund 1981a* : P. Sigmund, in Sputtering by Particle Bombardment I, ed. by R. Behrisch, Topics in Applied Physics, Springer Berlin, **47**, 9 (1981).
- Sigmund 1981b* : P. Sigmund and C. Clausen, J. Appl. Phys. **52**, 2 (1981).
- Sigmund 1982* : P. Sigmund, A. Olivia and G. Falcone, Nucl. Instr. and Meth. B **194**, 541 (1982).
- Sigmund 1984* : P.Sigmund, M. Szymonski, Appl. Phys. A **333**, 141 (1984).
- Silk 1959* : E.C.H. Silk and R.S. Barnes, Phil. Mag. **4**, 970 (1959).
- Sparrow 1992* : R.A. Sparrow, R.E. Olson, D. Schneider, J. Phys. B **25**, 295 (1992).
- Studer 1992* : F. Studer, M. Toulemonde, Nucl. Instr. and Meth. B **65**, 560 (1992).
- Sunner 1988* : J. Sunner, A. Morales and P. Kebarle, Int. J. of Mass Spect. and Ion Proc. **86**, 169 (1988).
- Szymonski 1986* : M. Szymonski, W. Huang and J. Onsgaard, Nucl. Instr. and Meth. B **16**, 263 (1986).
- Tombrello 1983a* : T.A. Tombrello, Nucl. Instr. and Meth. B **218**, 679 (1983).
- Tombrello 1983b* : T.A. Tombrello, Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys. **53**, 307 (1983).
- Toulemonde 1992* : M. Toulemonde, C. Dufour and E. Paumier, Phys. Rev. B **46**, 14362 (1992).
- Toulemonde 1996* : M. Toulemonde, J.M. Constantini, C. Dufour, A. Meftah, E. Paumier and F. Studer, Nucl. Instr. and Meth. B **116**, 37 (1996).
- Toulemonde 2000* : M. Toulemonde, Ch. Dufour, A. Meftah and E. Paumier, Nucl. Instr. and Meth. B **166/167**, 903 (2000).
- Turos 1993* : A. Turos, Hj. Matzke, M. Wielunski and L. Nowicki, Nucl. Instr. and Meth. B **80/81**, 1259 (1993).
- Turos 1994* : A. Turos, O. Meyer, L. Nowicki, J. Remmel and M. Wielunski, Nucl. Instr. and Meth. B **85**, 448 (1994).
- Urbassek 1984* : H.M. Urbassek, P. Sigmund, Appl. Phys. A **35**, 19 (1984).
- Urbassek 1987* : H.M. Urbassek and J. Michl, Nucl. Instr. and Meth. B **22**, 480 (1987).
- Urbassek 1988* : H.M. Urbassek, Nucl. Instr. and Meth. B **31**, 541 (1988).



- Urbassek 1991* : H.M. Urbassek and K.T. Waldeer, Phys. Rev. Lett. **67**, 105 (1991).
- Vincent 1984* : D. Vincent, R. Clocchiatti and Y. Langevin, Earth and Planetary Science Letters **71**, 340 (1984).
- Vineyard 1976* : G.H. Vineyard, Rad. Eff. **29**, 245 (1976).
- Waligorski 1986* : M.R.P. Waligorski, R.N. Hamm and R. Katz, Nucl. Track. Rad. Meas. **11**, 309 (1986).
- Wang 1994* : Z.G. Wang, C. Dufour, E. Paumier and M. Toulemonde, J. Phys. Condens. Matter **6**, 6733 (1994).
- Watson 1985* : C.C. Watson, T.A. Tombrello, Rad. Effects **89**, 263 (1985).
- Whapham 1962* : A.D. Whapham and M.J. Makin, Phil. Mag. **7**, 1441 (1962).
- Wien 1989* : K. Wien, Rad. Effects and Def. in Solids **109**, 137 (1989).
- Wien 1991* : K. Wien, O. Becker, W. Guthier, R. Matthäus, R. Moshhammer, Nucl. Tracks Radiat. Meas., **19**, 971 (1991).
- Wien 1992* : K. Wien, Nucl. Instr. and Meth. B **65**, 149 (1992).
- Wiss 1997a* : T. Wiss, Hj. Matzke, C. Trautmann, M. Toulemonde and S. Klaumünzer, Nucl. Instr. and Meth. B **122**, 583 (1997).
- Wiss 1997b* : T. Wiss, Thèse de l'Université Paris XI Orsay (1997).
- Wittmaack 1977* : K. Wittmaack, in Inelastic Ion-Surface Collisions, ed. by N.H. Tolk, J.C. Tully, W. Heiland, C.W. White, Academic New York, 153 (1977).
- Yamamura 1978* : Y. Yamamura and Y. Kitazoe, Rad. Eff. **39**, 251 (1978).
- Yamamura 1982* : Y. Yamamura, Nucl. Instr. and Meth. B **194**, 515 (1982).
- Zhenxia 1997* : W. Zhenxia, P. Jisheng, Z. Jiping, T. Zhenlan, W. Wenmin, Z. Huiming and Z. Yuwu, Vacuum **46**, 247 (1997).

## **Résumé :**

La mise en mouvement des atomes d'un matériau par un ion lourd se traduit dans le volume par la création de traces et à la surface par l'éjection d'atomes vers le vide. Ainsi, afin d'appréhender les mécanismes initiaux de formation des traces, nous nous sommes intéressés à la pulvérisation du dioxyde d'uranium par les ions lourds rapides. L'étude est consacrée à l'influence du pouvoir d'arrêt électronique sur l'émission de particule neutre et plus spécifiquement sur la mesure de leurs distributions angulaires. Ces mesures sont complétées par celles des ions émis d'une cible d' $\text{UO}_2$  soumise à un bombardement d'ions lourds rapides.

L'ensemble des résultats expérimentaux donne accès à : i) la nature des particules pulvérisées ; ii) l'état de charge des particules émises ; iii) la direction d'éjection des particules pulvérisées ; iv) et aux rendements de pulvérisation, obtenus à partir des distributions angulaires. Ces résultats sont confrontés aux modèles de pulvérisation proposés dans la littérature et il apparaît que seul le modèle d'écoulement gazeux supersonique donne des résultats cohérents avec nos observations.

Enfin, grâce aux expériences antérieures, réalisées par T. Wiss, concernant l'endommagement du dioxyde d'uranium, ce travail débouche sur la comparaison entre les modifications observées dans le matériau et la pulvérisation. Cette démarche permet de mettre en évidence que seule une fraction de monocouches d' $\text{UO}_2$  participe à la pulvérisation.

## **Abstract :**

Swift heavy ion-solid interaction leads in volume to track creation and on the surface to the ejection of particles into the vacuum. To learn more about initial mechanisms of track formation, we are focused on the sputtering of uranium dioxide by fast heavy ions. This present study is exclusively devoted to the influence of the electronic stopping power on the emission of neutral particles and especially on their angular distribution. These measurements are completed by those of the ions emitted from  $\text{UO}_2$  targets bombarded with swift heavy ions.

The whole experimental results give access to : i) the nature of the sputtered particles ; ii) the charge state of the emitted particles ; iii) the direction of ejection of the sputtered particles ; iv) the sputtering yields deduced from the angular distributions. These results are compared to the prediction of the sputtering models proposed in the literature and it seems that the supersonic gas flow model is well suited to describe our results.

Finally, the sputtering yields are compared with a set of earlier experimental data on uranium dioxide damage obtained by T. Wiss and we observe that only a small fraction of  $\text{UO}_2$  monolayers are sputtered.