



**HAL**  
open science

# Interaction ion-surface: simulation de l'interaction plasma-paroi (ITER)

Pierre Salou

► **To cite this version:**

Pierre Salou. Interaction ion-surface: simulation de l'interaction plasma-paroi (ITER). Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université de Caen, 2013. Français. NNT: . tel-00915747

**HAL Id: tel-00915747**

**<https://theses.hal.science/tel-00915747>**

Submitted on 9 Dec 2013

**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.

**Université de Caen Basse-Normandie**

Ecole doctorale *SIMEM*

**Thèse de doctorat**

présentée et soutenue le : *15/11/2013*

par

***Pierre Salou***

pour obtenir le

**Doctorat de l'Université de Caen Basse-Normandie**

**Spécialité : *Milieux denses, Matériaux et Composants***

<p><b>Interaction ion-surface : simulation de l'interaction plasma-paroi (ITER)</b></p>
---

Directeur de thèse : *Brigitte Ban d'Etat*

**Jury**

Mme Brigitte Ban d'Etat, Chargée de recherche au CNRS, CIMAP, Caen (directeur de thèse)  
Mr Abdenacer Benyagoub, Directeur de recherche au CNRS, CIMAP, Caen  
Mr Hennig Lebius, Ingénieur chercheur au CEA, CIMAP, Caen  
Mr Bruno Manil, Professeur des universités, LPL, Paris (rapporteur)  
Mme Marika Schleberger, Professeur des universités, Université de Duisburg, Allemagne  
Mr Ian Vickridge, Directeur de recherche au CNRS, INSP, Paris (rapporteur)



## Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique (CIMAP), à Caen. Je souhaite remercier l'ensemble des personnes ayant contribué de près ou de loin à cette entreprise.

Je tiens tout d'abord à remercier ma directrice de thèse, Brigitte Ban d'Etat, pour la confiance qu'elle m'a accordée dès mon arrivée au laboratoire. Me laissant une marge de manœuvre dans mes initiatives mais sachant également m'épauler et me conseiller judicieusement, son encadrement a été pour beaucoup dans la réalisation de ce travail et dans l'enrichissement de mes connaissances et compétences. Il est possible que certaines de mes tournures de phrases l'aient quelque peu agacée...

Je souhaite également remercier les membres du jury de cette thèse : Abdenacer Benyagoub, Henning Lebius, Bruno Manil, Marika Schleberger et Ian Vickridge, pour avoir su porter sur le travail leur regard d'expert qui a permis de formuler des remarques constructives.

Je tiens à remercier les membres du CIMAP avec qui j'ai eu grand plaisir à travailler pendant ces trois ans. Merci aux directeurs successifs du CIMAP, Serge Bouffard et Amine Cassimi, pour m'avoir accueilli au sein de leur laboratoire.

Pas de science expérimentale sans service technique. Aussi, je tiens à remercier l'ensemble de l'équipe technique du Cimap. Je remercie particulièrement Daniel Lelièvre qui a su apporter un grand nombre de solutions techniques sans lesquelles ce projet n'aurait pu aboutir. Un grand merci à Jean Marc Ramillon, Stéphane Guillous, Toiammou Madi, Thierry Been et Frédéric Ropars pour leur aide et pour m'avoir permis d'approfondir mes connaissances dans des domaines très variés.

Je tiens à remercier les personnes ayant contribué à ce travail :

- Daniel Chateigner du laboratoire CRISMAT qui a rendu possible la mesure de texturation des échantillons.
- Hermann Rothard, pour nos discussions très enrichissantes tant scientifiques que brassicoles.
- Jimmy Rangama pour son implication dans ce travail (il fait d'ailleurs une brève apparition photographique dans ce manuscrit), nos discussions concernant le DIY et son utilisation au sein de la recherche.
- Linda de Baeremaker pour ses compétences en matière d'administration. Sans elle, nous serions tous un peu perdus dans cette science obscure.
- Mes colocataires de bureau, Mamour Sall et Aude Ventura, avec qui j'ai pu avoir de nombreux débats sur la température nominale de la pièce sans jamais réussir à obtenir un consensus.
- Les doctorants du CIMAP avec qui j'ai eu plaisir à échanger et à qui je souhaite bon courage pour la fin de leurs thèses.
- Laurent Maunoury qui, depuis quelques années, m'a toujours assuré, ne m'a jamais lâché, même face à des prises périlleuses pour lesquelles il a su me donner la magnésie nécessaire à cette ascension.
- Jissé Pouilly, dont les nombreuses blagues ont rythmé ces trois années. Toujours à propos, jamais redondantes, elles ont su égayer nos journées. Continue, tu ne peux que t'améliorer.

Je suis conscient de n'avoir pas pu citer la totalité des personnes, tant la liste est longue. C'est donc par souci de concision que certains ne verront pas apparaître leur nom mais qui, j'en suis convaincu, ne m'en tiendront pas rigueur. Je ne les oublie pas pour autant et renouvelle mes remerciements les plus sincères.

Je souhaite enfin remercier Sophie qui m'a soutenu durant ces trois ans.



# TABLE DES MATIÈRES

<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>1 Pulvérisation induite par interaction ion-matière</b>	<b>11</b>
1.1 Interaction ion-matière . . . . .	11
1.2 Pouvoir d'arrêt . . . . .	13
1.2.1 Pouvoir d'arrêt nucléaire . . . . .	14
1.2.2 Pouvoir d'arrêt électronique . . . . .	16
1.2.3 Comparaison entre les pouvoirs d'arrêt . . . . .	16
1.3 Pulvérisation par impact d'ion . . . . .	17
1.3.1 Pulvérisation nucléaire . . . . .	17
1.3.1.a Régime de collisions simples . . . . .	18
1.3.1.b Régime de cascade linéaire . . . . .	19
1.3.1.c Régime de cascade non-linéaire . . . . .	22
1.3.2 Pulvérisation électronique . . . . .	22
1.3.3 Pulvérisation de matériaux cristallins . . . . .	23
1.3.4 Simulation numérique . . . . .	28
<b>2 Dispositifs expérimentaux dédiés à la simulation plasma-paroi</b>	<b>31</b>
2.1 Étude expérimentale de la pulvérisation . . . . .	31
2.2 Conception d'un nouveau dispositif : PULSAR . . . . .	34
2.2.1 Conception mécanique . . . . .	35
2.2.2 Description du dispositif PULSAR . . . . .	36
2.2.2.a Calcul du rendement de pulvérisation . . . . .	41
2.2.2.b Corrections liées aux mesures . . . . .	42
2.3 Production de faisceaux d'ions . . . . .	46

2.3.1	Ligne très basse énergie . . . . .	46
2.3.1.a	Source ECR . . . . .	46
2.3.1.b	La ligne de décélération . . . . .	47
2.3.1.c	Mesures de fluence . . . . .	47
2.3.2	Source à filament . . . . .	48
2.3.3	Ligne de faisceau intense . . . . .	50
2.3.3.a	Source Mono1000 . . . . .	50
2.3.3.b	Extraction et systèmes optiques . . . . .	52
2.3.3.c	Filtre de Wien . . . . .	53
2.3.3.d	Démarrage de la ligne . . . . .	54
2.3.3.e	Raccordement au dispositif PULSAR . . . . .	57
<b>3</b>	<b>Analyse des collecteurs par spectroscopie Auger</b>	<b>59</b>
3.1	Principe de la spectroscopie des électrons Auger . . . . .	59
3.1.1	Émission Auger d'un atome isolé . . . . .	60
3.1.2	Émission Auger d'un atome dans un matériau . . . . .	65
3.2	Analyse quantitative d'un dépôt de matière . . . . .	66
3.2.1	Parcours des électrons dans la matière . . . . .	67
3.2.2	Modèles théoriques . . . . .	70
3.3	Fonctionnement du spectromètre Auger . . . . .	73
3.3.1	Analyseur à champ retardant . . . . .	74
3.4	Calibrations pour les couches de carbone . . . . .	77
3.4.1	Dispositif de calibration . . . . .	77
3.4.2	Protocole de calibration . . . . .	79
3.4.3	Spectroscopie Auger de couches minces de carbone . . . . .	81
3.5	Calibrations pour les couches de tungstène . . . . .	85
3.5.1	Protocole et choix des constantes . . . . .	86
3.5.2	Spectroscopie des couches de tungstène . . . . .	87
<b>4</b>	<b>Résultats expérimentaux et discussions</b>	<b>93</b>
4.1	Pulvérisation du carbone . . . . .	93
4.1.1	Protocole expérimental . . . . .	93
4.1.2	Résultats et discussion . . . . .	95
4.1.3	Conclusion . . . . .	101
4.2	Pulvérisation du tungstène . . . . .	102
4.2.1	Protocole expérimental . . . . .	102
4.2.2	Résultats et discussion . . . . .	103
4.3	Interprétation de la distribution angulaire de pulvérisation . . . . .	110
4.3.0.a	Modèle de de Thompson et Sigmund . . . . .	110
4.3.0.b	Modèle de Roosendaal et Sanders . . . . .	110
4.3.0.c	Modèle de Stepanova . . . . .	111

4.3.0.d	Comparaison modèles-expériences . . . . .	112
4.3.0.e	Modélisation empirique des résultats . . . . .	112
4.3.0.f	Interprétation de la présence de l'épaule . . . . .	115
4.3.1	Conclusion . . . . .	116
<b>5</b>	<b>Conclusion et Perspectives</b>	<b>121</b>
5.1	Perspectives à court terme . . . . .	122
5.2	Perspectives à long terme . . . . .	126



# INTRODUCTION

L'interaction ion-surface est l'un des sujets phares du laboratoire CIMAP (Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique) qui dispose des faisceaux d'ions produits par le GANIL, offrant une vaste gamme d'énergie allant de quelques dizaines d'eV à plusieurs MeV/A.

Parmi les phénomènes induits par les interactions ion-surface, la pulvérisation est, depuis de nombreuses années, étudiée par le CIMAP où plusieurs expériences ont été effectuées sur différents matériaux, à haute comme à basse énergie. Les compétences acquises par le laboratoire apparaissent d'un grand intérêt pour le domaine de la fusion nucléaire par confinement magnétique. Les études des matériaux des réacteurs peuvent en effet fournir des données importantes sur les mécanismes d'interaction ion-plasma et sur les enjeux qu'ils représentent.

Dans les tokamaks règne un environnement très agressif. Les parois du réacteur en regard d'un plasma subissent un endommagement dû, entre autres, à la sublimation causée par les radiations, aux forts flux de chaleur (contraintes mécaniques, fusion et évaporation des matériaux), aux arcs électriques et aux flux de particules.

Ces endommagements posent deux problèmes majeurs : ils détériorent le bon fonctionnement de ces surfaces, à savoir la protection des autres parties du réacteur et produisent une quantité de polluants qui va se retrouver en partie dans le plasma et perturber sa stabilité souvent précaire. Notons que la tolérance d'impureté dans le plasma est fixée à 1% pour ITER[1].

Les matériaux qui composent les parois des réacteurs doivent donc avoir des caractéristiques leur permettant de résister aux attaques du plasma mais aussi de ne pas perturber celui-ci. À ceci s'ajoute une troisième contrainte concernant les réacteurs utilisant du tritium. En effet pour des raisons de sécurité, les com-

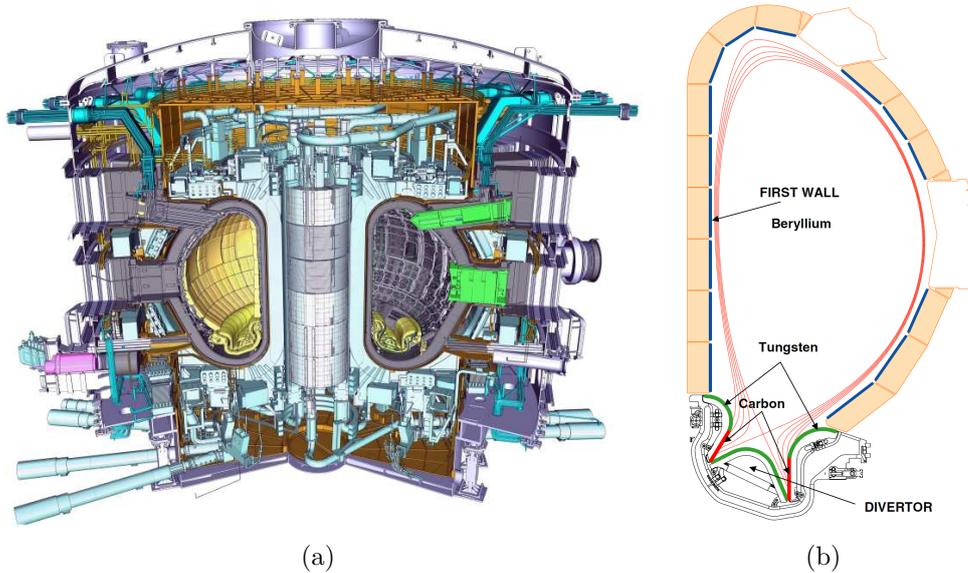


FIGURE 1 – (a) Plan d'ensemble du réacteur ITER[3], (b) Vue en coupe du tokamak[4].

posants du réacteur doivent stocker un minimum de cet élément radioactif[2].

Les composants répondant à ces critères sont le béryllium, le tungstène et le carbone. À ceux-ci viennent s'ajouter d'autres matériaux comme le molybdène, aux propriétés intéressantes (propriété de réflexion et réfractaire) pour l'étude des réacteurs mais moins performantes.

Dans la conception d'ITER, les trois premiers matériaux ont été retenus (Figure 1). Le béryllium formera la majeure partie du réacteur (paroi principale, limiteur). Le diverteur est formé de tungstène et de fibre de carbone (*carbon fiber composite*, CFC). Cette partie du réacteur a pour but de créer une faiblesse dans le confinement magnétique afin d'extraire les impuretés et les cendres (hélium) du plasma ainsi que de récolter l'énergie produite. Elle est, par conséquent, soumise à des flux élevés de chaleur et de particules. Cet environnement très hostile nécessitera de multiples remplacements de cette pièce au cours de la vie du réacteur.

Ces trois matériaux choisis pour le développement du réacteur ITER ont des caractéristiques complémentaires. La Figure 2(a) résume différentes configurations de matériaux pour les parois d'ITER et leurs inconvénients en termes de production de particules, d'érosion et de rétention de tritium.

Le béryllium comporte une bonne tenue mécanique face aux fortes températures. Il a un rendement de pulvérisation relativement élevé (Figure 2(b)), mais le fait d'avoir un faible  $Z$  compense cet effet ; les particules pulvérisées s'io-

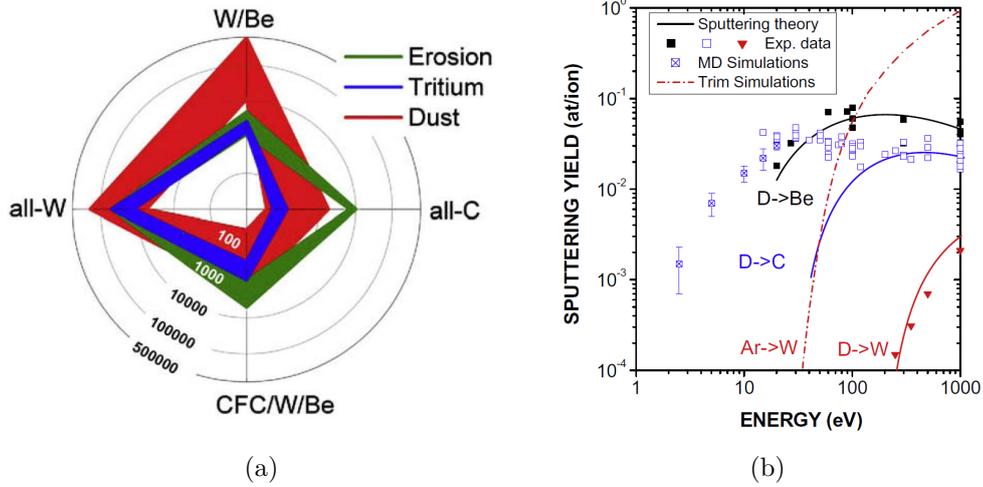


FIGURE 2 – (a) Nombre de décharges plasma requises pour atteindre les limites de sécurité concernant la production de poussières, l'érosion et la rétention de tritium, (b) rendements de pulvérisation des différents composants d'ITER[6].

nisent moins et donc refroidissent peu le plasma. Les pertes d'énergie du plasma par rayonnement Bremsstrahlung sont aussi limitées (évolution en  $Z^2$ ). Le béryllium présente également l'avantage de piéger l'oxygène, rendant le plasma encore plus propre[5]. Ses principaux défauts sont son caractère cancérigène, sa conductivité thermique moyenne ( $201 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) et son point de fusion bas ( $1570 \text{ K}$ ). Ces derniers désavantages ont eu raison de son utilisation, dans le design du réacteur ITER, pour le diverteur, celui-ci ayant pour objectif l'évacuation de la chaleur. Il est cependant utilisé pour le reste de la chambre, notamment pour sa capacité à résister aux pertes brutales de confinement du plasma (*vertical displacement events*, VDE).

Le tungstène présente, quant à, lui un taux de pulvérisation faible. Il résiste bien aux hautes températures (température de fusion  $T_f = 3695 \text{ K}$ ), ce qui, couplé à sa conductivité moyenne ( $174 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ), en fait un bon candidat pour le diverteur. Notons qu'il a cependant pour défaut de produire des poussières radioactives.

Le carbone employé dans les tokamaks sous la forme de fibres composites (CFC) ou encore de graphite et HOPG (*highly oriented pyrolytic graphite*), est le matériau initialement employé dans les premiers réacteurs. Il a pour qualité de ne pas fondre (il sublime) et d'avoir une très bonne conductivité thermique (dépendant de sa forme,  $350 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour les CFC). Il permet aussi, grâce au carbone 13 utilisé comme traceur, d'effectuer facilement des études sur son comportement : étude de pulvérisation, traçage du transport des pollutions dans

le plasma. Malgré ses qualités, le carbone a été délaissé lors de la conception de nouveaux tokamaks (remplacement des tuiles de JET par des tuiles en Be). Cela s'explique d'une part, par son fort rendement de pulvérisation, dû en grande partie à la pulvérisation chimique à basse énergie. Les hydrocarbures formés ont d'ailleurs tendance à se redéposer sur les parois. D'autre part, sa conductivité thermique élevée a tendance à chuter lorsqu'il est soumis à un flux de neutrons[7]. Pour finir le CFC a tendance à stocker du tritium. Ces deux derniers défauts expliquent son absence lors de la phase D-T de ITER.

Le CFC sera cependant employé sur la partie linéaire du diverteur lors de la première phase de test ITER (phase D-D). Ce choix repose sur le fait que le CFC a une meilleure tenue face aux perturbations du plasma, censées être nombreuses lors des premiers essais<sup>1</sup>. À terme, le béryllium devrait lui aussi être retiré des futurs tokamaks. En effet, la présence simultanée de tungstène et de béryllium présente un problème : leur alliage comporte un eutectique, ce qui diminue localement la température de fusion du tungstène.

Les trois matériaux présents dans les réacteurs vont subir une irradiation provenant des particules quittant le confinement du plasma. La réaction à cette irradiation peut se traduire par la pulvérisation d'éléments qui agissent sur la stabilité du plasma. La conception de réacteurs tokamaks nécessite donc une bonne connaissance des effets de pulvérisation des éléments qui les composent. L'étude de la pulvérisation des matériaux face au plasma peut s'effectuer de différentes méthodes : par immersion plasma ou par l'emploi de faisceaux d'ions. La simulation numérique représente une part non négligeable de l'étude des interactions plasma-paroi<sup>2</sup>.

La méthode la plus directe pour étudier les effets d'un plasma sur un matériau est l'immersion plasma. Elle peut s'effectuer à l'aide de petits dispositifs ou directement dans des tokamak ; on peut citer, comme exemple de dispositifs dédiés, le générateur plasma PSI-2[10] qui permet l'étude de tuiles CFC sous fort flux de particules.

Les méthodes d'immersion plasma sont très importantes car elles permettent d'étudier les interactions plasma dans leur ensemble. Il est possible d'observer l'effet du champ magnétique, celui de la gaine du plasma sur les matériaux pulvérisés et de comprendre les phénomènes de redéposition.

Bien que très utile pour l'étude du phénomène d'érosion dans sa globalité, l'immersion plasma souffre cependant de quelques faiblesses. Tout d'abord il peut être très difficile, notamment pour les petits dispositifs, d'arriver à recréer un plasma avec la densité d'énergie souhaitée. Le deuxième problème majeur

---

1. Certains scénarii envisagent même un démarrage d'ITER dans une configuration tout carbone[8].

2. On peut par exemple citer le code de calcul ERO[9].

vient de l'impossibilité d'isoler les différents phénomènes de pulvérisation.

Afin de palier ces problèmes, il est possible de simuler l'environnement plasma par des faisceaux d'ions. En effet l'utilisation de tels faisceaux permet de dissocier les différents paramètres présents lors de l'érosion : les énergies des particules, leurs charges, leurs fluences et leurs angles d'incidences.

Certains équipements comme les faisceaux d'ions pulsés à haute intensité (*high intensity pulsed ion beam*, HIPIB) permettent de simuler de grands flux de particules, rendant possible l'étude simultanée des effets thermiques et de l'érosion[11]. Une autre méthode d'analyse consiste à utiliser de plus petits flux, permettant ainsi de mettre en place des dispositifs expérimentaux plus sensibles. Ces derniers intègrent différentes techniques d'analyse comme la spectroscopie de masse[12, 13], la mesure de perte de masse[14] ou encore la méthode collecteur.

Dans ce travail nous présentons une étude de la pulvérisation du carbone, sous forme HOPG, et du tungstène<sup>3</sup> induite par irradiations en incidence normale<sup>4</sup> aux ions monochargés (de l'hélium au xénon) d'énergie inférieure à la dizaine de keV[16]. Cette étude est basée sur la méthode collecteur, aussi afin de s'affranchir des problèmes liés aux polluants (notamment pour l'étude du carbone) nous avons conçu et réalisé un nouveau dispositif permettant l'analyse des collecteurs *in situ* par spectroscopie des électrons Auger. Nous avons ainsi mesuré les distributions angulaires de pulvérisation et le rendement de pulvérisation par intégration de ces dernières.

Le premier chapitre de ce manuscrit sera l'occasion d'établir un état des lieux des connaissances concernant l'interaction ion-matière, les différents régimes de collisions et de pulvérisation y seront présentés. Cette première partie nous permettra de placer les bases théoriques et de cadrer plus précisément le domaine de notre étude.

Dans un second chapitre nous développerons les dispositifs expérimentaux utilisés. Le travail effectué durant cette thèse concerne en grande partie le développement du dispositif expérimental PULSAR (PULvérisation sur collecteur Silicium et Analyse augeR, [17]), nous commencerons donc par présenter les différents choix techniques entrant dans sa conception. Puis nous nous intéresserons à la production des faisceaux d'ions utilisés lors de nos expériences, il sera alors l'occasion de s'intéresser à la ligne de faisceau intense dont une partie du développement a également fait partie de ce travail.

Le troisième chapitre est dédié à la technique d'analyse des collecteurs utilisée, la spectroscopie des électrons Auger y sera présenté ainsi que les pré-requis

---

3. Le béryllium sera écarté pour des raisons de sécurité.

4. Il faut noter que l'incidence des particules extraites du plasma, notamment au niveau du diverteur, est rasante. Les données relatives à l'incidence normale sont cependant nécessaires à la compréhension des phénomènes de pulvérisation[15].

indispensables au développement d'une analyse quantitative. Nous confronterons alors les théories développées avec les résultats des expériences de calibration.

Un quatrième chapitre présentera les différentes expériences réalisées à l'aide de notre dispositif. Nous développerons les résultats obtenus lors de irradiation du HOPG par des ions  $\text{Ar}^+$  à 2.8 keV, l'interprétation quant à l'origine de la distribution angulaire sera alors traitée. Les résultats de distribution angulaire du tungstène réalisée à l'aide de la ligne de faisceau intense y seront présentés.

Pour terminer ce manuscrit quelques perspectives, à court comme à long terme, seront proposées quant à notre dispositif dédié à l'étude de la pulvérisation.

# CHAPITRE

## 1

# PULVÉRISATION INDUITE PAR INTERACTION ION-MATIÈRE

Ce chapitre concerne l'étude de l'interaction ion-matière. Lorsqu'un ion pénètre dans la matière, celui-ci subit des collisions avec les atomes et les électrons présents. Ces collisions engendrent un dépôt d'énergie, lui-même à l'origine de différents phénomènes dont la pulvérisation.

## 1.1 Interaction ion-matière

Un ion pénétrant dans la matière interagit principalement avec le milieu par une série de collisions<sup>1</sup>. On peut classer ces collisions en deux catégories : les collisions élastiques et inélastiques.

Les collisions élastiques reposent sur le principe de conservation de l'énergie cinétique et de la quantité de mouvement entre les particules impliquées dans la collision. Dans le cas d'une interaction ion-atome, la structure électronique de l'atome cible reste inchangée.

Le mécanisme de collision peut être décrit à l'aide d'un modèle théorique simple (Figure 1.1). Un projectile de masse  $m_1$  et de vitesse  $v_1$  entre en collision avec une cible de masse  $m_2$  et de vitesse  $v_2 = 0$ . D'après les lois de la mécanique classique le transfert d'énergie entre les deux entités considérées sphériques peut

---

1. Nous omettons les réactions nucléaires qui, pour les énergies considérées ( $E < 10$  MeV), sont négligeables.

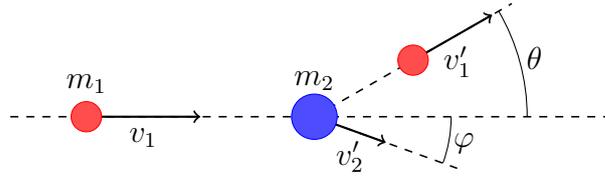


FIGURE 1.1 – Schéma d'une collision binaire.

s'écrire :

$$T = 4 \frac{m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} E_1 \cos^2 \varphi \quad (1.1)$$

avec  $E_1$  l'énergie initiale du projectile et  $\varphi$  l'angle de déviation de l'atome cible. La Figure 1.2(a) montre l'évolution de l'énergie maximale transférée (dans le cas où  $\varphi = 0^\circ$ ). On peut constater que pour  $m_1 \gg m_2$  le transfert d'énergie devient très faible. Le transfert d'énergie entre un ion et un électron est donc négligeable<sup>2</sup> et les collisions ont uniquement lieu entre noyaux, ce qui justifie le fait que ces collisions soient qualifiées de nucléaires.

La Figure 1.2(b) représente l'énergie résiduelle du projectile après impact en fonction de son angle de déviation  $\theta$ . On peut constater que les particules légères ont une propension non négligeable à être rétrodiffusées tandis que les éléments plus lourds sont relativement peu déviés.

Ce modèle simple permet la description qualitative des collisions dans le régime nucléaire. Pour une description plus rigoureuse, il convient de considérer l'interaction cible-projectile comme une répulsion de type coulombienne présentée lors d'une prochaine partie (section 1.2.1).

Les collisions inélastiques rassemblent tous les types de collisions dans lesquelles l'énergie cinétique n'est pas conservée. Il s'agit de l'interaction entre le projectile et le nuage électronique des atomes de la matière. Les trois processus majoritaires sont : la capture par l'ion incident d'un ou de plusieurs électrons, l'excitation et l'ionisation des atomes de la cible.

Lors de l'irradiation d'un matériau, les deux types de collisions coexistent. Leur importance relative dépend à la fois du projectile (énergie, masse, charge) et des caractéristiques de la cible. Le projectile dépose alors de l'énergie le long de son parcours.

---

2. Ce raisonnement est à prendre avec précaution, le modèle n'étant valable que pour la condition  $v_1 \gg Z_2^{2/3} v_0$  (avec  $v_0 = e^2/\hbar$ )[18].

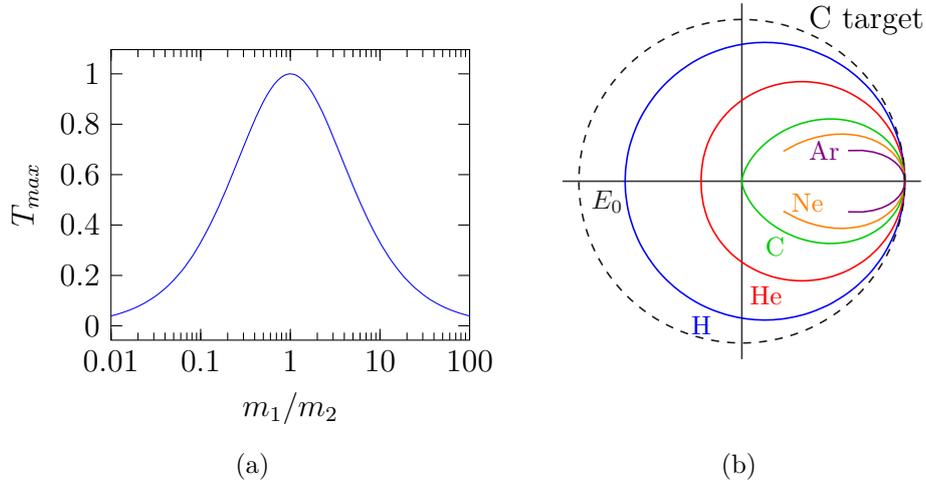


FIGURE 1.2 – (a) Énergie maximale transférée (normalisée) en fonction du rapport  $m_1/m_2$ . (b) Énergie résiduelle normalisée du projectile après collision en fonction de  $\theta$ .

## 1.2 Pouvoir d'arrêt

Lorsqu'un matériau est irradié par un faisceau d'ions mono-cinétique d'énergie  $E_1$ , les ions pénétrant la matière subissent des séries de collisions élastiques et inélastiques différentes. Après le passage à travers une épaisseur de matière  $\delta r$ , l'énergie résiduelle  $E'_1$  varie d'un ion à l'autre (Figure 1.3).

Si  $\delta r$  est suffisamment petit pour ne permettre qu'une seule collision lors du passage d'un ion, l'énergie moyenne transférée par l'ion à son milieu s'écrit :

$$\langle T \rangle = E_1 - \langle E'_1 \rangle = N \delta r \int_0^{T_{max}} T \sigma(T) dT \quad (1.2)$$

avec  $T$  l'énergie transférée à un noyau ou à un électron avec une probabilité  $\sigma$  (section efficace),  $T_{max}$  l'énergie maximale transférée lors d'une collision et  $N$  le nombre de centres de collision par unité de volume. On définit alors le pouvoir d'arrêt  $S$  comme la variation moyenne d'énergie du projectile au cours de son parcours :

$$S(E) = -\frac{dE}{dx} = \frac{\langle T \rangle}{\delta r} = N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T \sigma(T) dT \quad (1.3)$$

Le terme  $T_{min}$  correspond au plus petit transfert d'énergie et est introduit afin que l'expression converge.

On peut distinguer le pouvoir d'arrêt dû aux collisions dans le régime nucléaire  $S_n$  et dans le régime électronique  $S_e$ . Le pouvoir d'arrêt total étant la

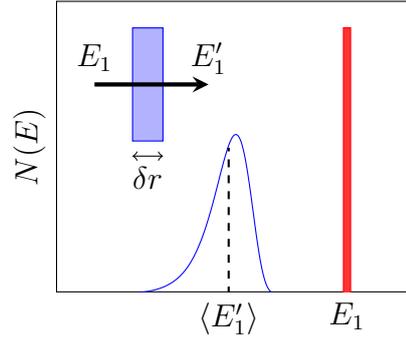


FIGURE 1.3 – Dispersion en énergie d'un faisceau d'ions  $\delta r$  après le passage à travers une couche mince de matière.

somme de ces deux termes :

$$S_{tot}(E) = S_n(E) + S_e(E) \quad (1.4)$$

Avant de développer l'expression de ces deux types de pouvoir d'arrêt, on peut remarquer qu'il est possible d'obtenir le parcours moyen d'un ion avec l'expression :

$$\langle R(E_1) \rangle = \int_0^{E_1} \frac{dT}{S_{tot}} \quad (1.5)$$

### 1.2.1 Pouvoir d'arrêt nucléaire

Pour déterminer le pouvoir d'arrêt nucléaire d'un matériau nous utilisons le modèle prenant en compte la répulsion coulombienne simple. La Figure 1.4 schématise la répulsion coulombienne dans le référentiel du centre de masse. La collision est alors décrite par une particule virtuelle de masse  $\mu = m_1 m_2 / (m_1 + m_2)$  et de vitesse  $\vec{v} = \vec{v}_1 + \vec{v}_2$  traversant une couronne  $d\sigma$  de rayon  $b$  (le paramètre d'impact) et de largeur  $db$ . Celle-ci est déviée par un champ coulombien d'un angle compris entre  $\theta$  et  $\theta + d\theta$ , la particule est alors comprise dans une portion d'angle solide  $d\Omega$ .

La relation entre l'angle de diffusion et le paramètre d'impact est :

$$\tan \frac{\theta}{2} = \frac{p}{2b} \quad (1.6)$$

Le terme  $p$  correspond à la distance minimum entre les deux particules lors d'un choc frontal ( $b = 0$ ), il est défini par la relation :

$$\frac{Z_1 Z_2 e^2}{p} = \frac{\mu v^2}{2} \quad (1.7)$$

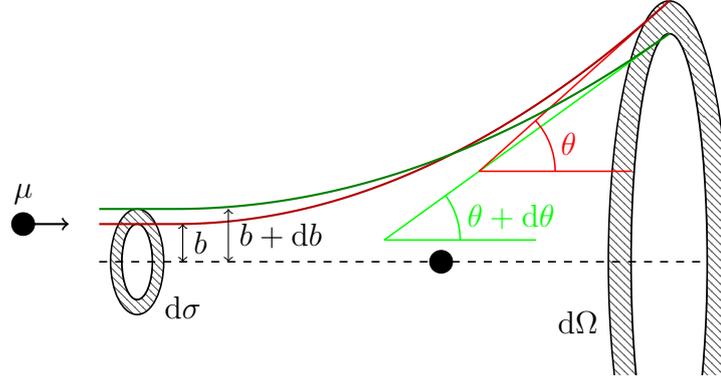


FIGURE 1.4 – Répulsion coulombienne dans le référentiel du centre de masse.

avec  $Z_1$  et  $Z_2$  les charges des particules. Le transfert d'énergie communiquée à la particule cible devient :

$$T = \frac{T_{max}}{1 + \left(\frac{2b}{p}\right)^2} \quad (1.8)$$

avec  $T_{max} = 4E_1(m_1m_2)/(m_1 + m_2)^2$ . La différentielle de la section efficace de ce transfert s'écrit, d'après la relation de Rutherford[19] :

$$d\sigma(T) = 2\pi b db = \frac{\pi p^2}{4} T_{max} \sin^2 \frac{\theta}{2} \frac{dT}{T} \quad (1.9)$$

À l'aide des trois expressions précédentes et de l'équation 1.3, on déduit le pouvoir d'arrêt nucléaire, dans le cas de répulsions coulombiennes :

$$S_n = \frac{2\pi N(Z_1 Z_2 e^2)^2}{M_2 v^2} \int_{T_{min}}^{T_{max}} \frac{dT}{T} \quad (1.10)$$

En développant cette dernière on obtient :

$$S_n = \frac{2\pi N(Z_1 Z_2 e^2)^2}{M_2 v^2} \ln \frac{T_{max}}{T_{min}} \quad (1.11)$$

Il est possible d'affiner le modèle afin de prendre en compte des paramètres additionnels comme l'effet d'écrantage du noyau par les électrons. À partir du potentiel écranté de Thomas-Fermi, Biersack[20] propose une expression plus réaliste :

$$S_n = 4\pi N Z_1 Z_2 e^2 a^2 \frac{M_1}{M_1 + M_2} \frac{\ln \varepsilon}{2\varepsilon (1 - \varepsilon^{1.49})} \quad (1.12)$$

avec  $\varepsilon = a/p$  et  $a$  correspond au rayon d'écran et vaut :

$$a = \frac{a_0}{Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}} \quad (1.13)$$

avec  $a_0 = 0.529 \times 10^{-8}$  cm.

### 1.2.2 Pouvoir d'arrêt électronique

Le pouvoir d'arrêt électronique est complexe à déterminer car il comprend différents types de collisions mettant en jeu les électrons des atomes. L'expression relative à ces collisions dépend de la vitesse du projectile. On peut séparer le pouvoir d'arrêt selon deux régimes de vitesse, entre ces deux régimes, le pouvoir d'arrêt atteint son maximum pour des vitesses de projectile égales à  $v = Z_1^{2/3} v_0$ , où  $v_0$  représente la vitesse de Bohr ( $v_0 = e^2/\hbar$ ).

Dans le régime de haute vitesse ( $v \gg Z_1^{2/3} v_0$ ), l'ion incident est totalement épluché de ses électrons. Il peut alors être considéré comme une charge ponctuelle. La modélisation du pouvoir d'arrêt est donnée par la formule de Bethe[21] :

$$S_e = \frac{4\pi e^4 Z_1^2 N Z_2}{m_e v_1^2} \ln \frac{2m_e v_1^2}{I} \quad (1.14)$$

avec  $m_e$  la masse de l'électron,  $N Z_2$  la densité électronique de la cible et  $I$  le potentiel moyen d'ionisation ( $I \approx 10$  eV). Dans ce domaine  $S_e$  diminue selon  $\ln E_1/E_1$ .

Dans le régime de basse vitesse ( $v \ll Z_1^{2/3} v_0$ ), l'ion incident possède une partie de ses électrons qui se couplent alors à ceux des atomes cibles. Ce réarrangement induit un transfert d'énergie décrit par le modèle de Lindhard[22] :

$$S_e = \frac{N 8\pi e^2 a_0 Z_1^{7/6} Z_2 v_1}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2} v_0} \quad (1.15)$$

Dans ce régime, le pouvoir d'arrêt augmente avec l'énergie de l'ion.

Pour des vitesses intermédiaires ( $v \approx Z_1^{2/3} v_0$ ), des phénomènes de capture d'électrons entre l'ion incident et les atomes interviennent. Le dépôt d'énergie devient maximum, cette région est appelée pic de Bragg.

### 1.2.3 Comparaison entre les pouvoirs d'arrêt

Les modèles présentés ont chacun leur domaine de validité ainsi qu'une précision relative. Il existe de nombreux modèles théoriques permettant une description plus ou moins fine dans un domaine d'énergie défini. Pour obtenir le pouvoir d'arrêt d'un ion dans un matériau sur un large domaine d'énergies, il existe des tables de données[23]. Le programme SRIM (*Stopping and Range of Ion in Matter*[24]) permet d'obtenir le pouvoir d'arrêt calculé à partir de différents modèles théoriques et de données expérimentales.

La Figure 1.5 montre l'évolution du pouvoir d'arrêt pour un ion argon dans le tungstène. On peut remarquer le pic de Bragg aux alentours de 50 MeV. On peut aussi constater la faible proportion du pouvoir d'arrêt électronique dans

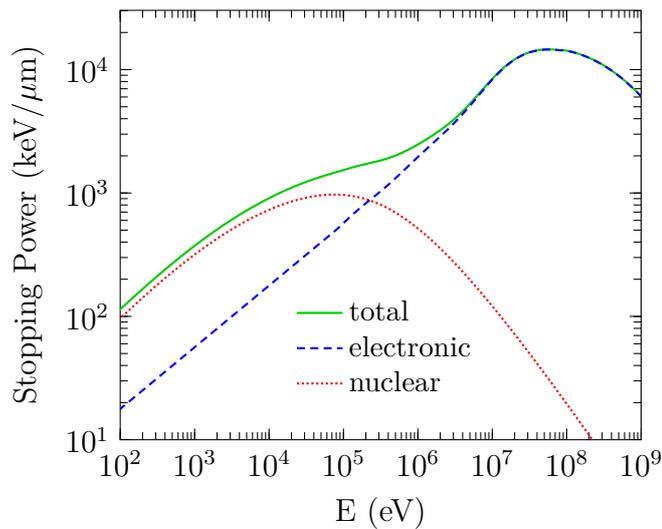


FIGURE 1.5 – Pouvoir d’arrêt de tungstène pour un ion d’argon en fonction de l’énergie calculé à partir de code SRIM[24].

le pouvoir d’arrêt total pour la gamme d’énergie nous concernant (de 1 keV à 10 keV). Les réactions engendrées par le passage d’un ion à ces énergies sont donc principalement dûes aux chocs nucléaires.

## 1.3 Pulvérisation par impact d’ion

Le dépôt d’énergie induit par le passage d’un ion est à l’origine de plusieurs phénomènes au sein du matériau cible. Parmi ces phénomènes, la pulvérisation (ou *sputtering* en anglais) consiste en l’éjection d’atomes, d’ions ou d’agrégats de la surface du matériau. Il se produit lorsque les atomes de la cible ont gagné une énergie suffisante à leur évation de la surface.

On peut distinguer la pulvérisation induite par collision nucléaire et élastique. Pour chacun de ces cas, plusieurs théories coexistent avec différents domaines de validité.

### 1.3.1 Pulvérisation nucléaire

Lorsqu’un ion incident entre en collision avec un atome de la cible, il transfère à ce dernier une partie de son énergie cinétique. Cet atome issu de la première collision (*primary knock-on atom*, PKA) peut lui aussi entrer en collision avec d’autres atomes de la cible (et former des atomes de seconde collision, SKA). On peut distinguer trois régimes de collisions schématisés sur la

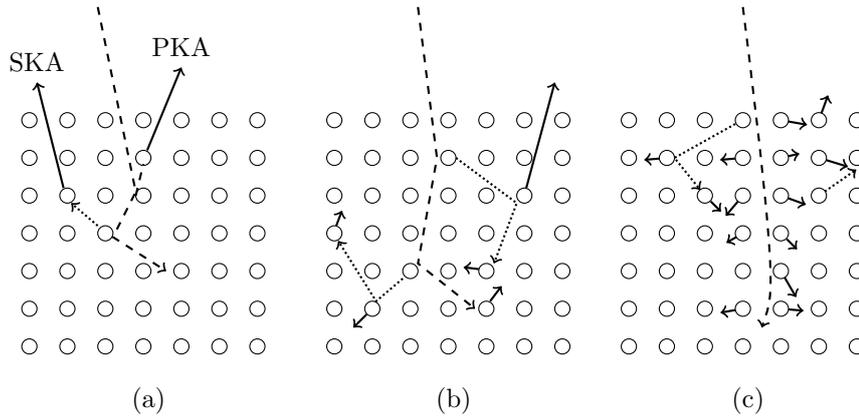


FIGURE 1.6 – Différents régimes de pulvérisation nucléaire : (a) régime de collisions simples, (b) régime de cascade linéaire, (c) régime de cascade non-linéaire.

Figure 1.6.

Si l'énergie transférée au PKA et SKA est faible, la probabilité que ceux-ci engendrent à nouveau des déplacements d'atomes reste alors faible. Les atomes en mouvement dans la cible sont donc majoritairement composés de PKA et SKA, le régime de pulvérisation est appelé régime de collision simple.

Si l'énergie transférée des premières collisions est élevée, une cascade de collisions se crée. Suivant la densité d'atomes en mouvement, la cascade peut être de différentes natures. Si cette densité est suffisamment faible pour que la probabilité que deux atomes en mouvement se rencontrent est proche de zéro, on dit que la cascade est linéaire. Au contraire si la densité d'atomes en mouvement est élevée, la probabilité que les atomes en mouvement entrent en collision est non négligeable, la cascade est alors non linéaire (ou régime de pointe).

### 1.3.1.a Régime de collisions simples

Dans le régime de collisions simples, seul un faible nombre d'atomes est en mouvement. Le nombre d'atomes susceptibles d'être pulvérisés est de ce fait relativement faible (moins d'un atome pour dix ions incidents). Ce régime intervient lorsque l'énergie de l'ion est faible ou dans le cas de projectiles légers tels que H et He à des énergies de quelques keV. L'énergie transférée est alors trop faible pour permettre le développement d'une cascade de collisions.

Les atomes pulvérisés sont originaires de la première ou de la seconde collision (PKA ou SKA). La Figure 1.7 montre la proportion de ces différents atomes en fonction de l'énergie dans le cas de l'irradiation d'une cible de nickel par des ions hydrogène. La nature de l'ion (rétrodiffusé ou non, ion out / ion

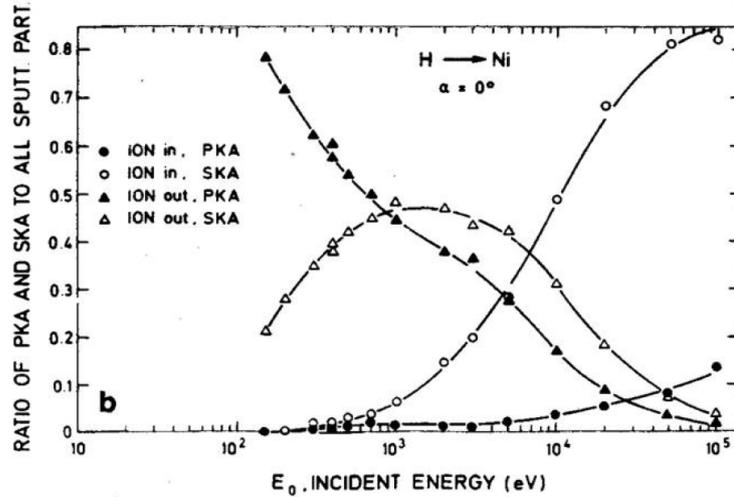


FIGURE 1.7 – Simulation Monte Carlo de l'irradiation de Ni par un faisceau d'ion  $H^+$  en incidence normale, contribution des différents processus de pulvérisation[25].

in) lors de la collision est également prise en compte.

On peut constater qu'à basse énergie ( $E_1 < 1$  keV) la majorité des atomes pulvérisés provient de collisions avec les ions préalablement rétrodiffusés. Pour des énergies supérieures, les atomes pulvérisés proviennent principalement de SKA engendré par des ions directs. L'énergie transférée est alors suffisante pour permettre leur recul vers la surface.

### 1.3.1.b Régime de cascade linéaire

Le régime de cascade intervient lorsque le transfert d'énergie entre l'ion incident et les atomes de la cible est suffisant pour permettre une série de collisions d'ordre supérieur. Lorsque la densité d'atomes en mouvement est suffisamment faible et que ceux-ci ne rentrent pas en collision entre eux, la cascade est dite linéaire.

Cette succession de collisions peut être étudiée dans le cadre de la théorie du transport. Elle intervient lors de l'irradiation de matériaux par des ions d'énergie allant du keV à quelques centaines de keV mais n'est cependant pas valable pour des ions trop lourds qui forment une trop grande densité d'atome en mouvement.

La théorie de la cascade linéaire, établie par Sigmund en 1969[26], est décrite comme la succession de trois phénomènes : l'ion pénètre dans la matière en

libérant son énergie. Il se développe alors une cascade de collisions au sein des atomes du matériau, une partie des atomes obtient les conditions énergétiques et directionnelles suffisantes pour s'échapper de la surface.

Au sein de la cascade linéaire, l'énergie des atomes en mouvement peut être décrite selon la physique statistique basée sur une approche de l'intégrale de Boltzmann en supposant un «chaos moléculaire». La distribution statistique des énergies suit alors une tendance en :

$$N(E) \propto E^{-n} \quad (1.16)$$

avec  $n \approx 2$  [27].

Dans la cascade, certains atomes parviennent à la surface avec une énergie suffisante pour s'y échapper. Cette énergie de liaison peut être décrite par différents modèles. Il est possible de considérer l'énergie de liaison  $U_s$  constante quelque soit l'angle de sortie  $\theta$  de l'atome. Dans ce cas, si l'énergie de l'atome est supérieure à  $U_s$ , l'atome est extrait de la surface et le potentiel de surface est dit sphérique ou isotrope. Un second modèle prend en compte l'angle de sortie de l'atome, le potentiel de surface est alors plan. Le critère pour qu'un atome soit pulvérisé devient  $E \cos \theta > U_s$ , l'atome pulvérisé subit alors une réfraction (Figure 1.8(a)).

Le choix de modèles de potentiel de surface est important, bien que le second modèle convienne pour le cas de surfaces idéales (surfaces lisses), il peut se révéler inapproprié pour le cas de surface réelle où le potentiel de surface varie au voisinage des atomes de la surface. Le potentiel de surface sphérique semble, quant à lui, approprié pour la description de surfaces comportant des défauts, il agit alors comme un potentiel de surface effectif.

Le choix de l'énergie de liaison a également son importance. La Figure 1.8(b) montre l'évolution du rendement de pulvérisation (définition en p.32) d'une cible de cuivre amorphe irradiée par des ions argon d'énergie 1 keV en fonction de l'énergie de liaison et du modèle de liaison choisi. On peut remarquer que le résultat est fortement dépendant de ce choix.

La valeur de  $U_s$  est donc importante dans la description des mécanismes de pulvérisation. Elle est généralement déterminée comme étant égale à l'énergie de sublimation pour un atome de la cible. Cette loi empirique n'est cependant pas systématiquement valable, notamment pour les surfaces parfaitement ordonnées où elle est alors surestimée[29, 30].

Dans l'hypothèse d'un potentiel de surface plan et d'un flux d'atomes isotrope à la surface de la cible avec une distribution en énergie de la forme  $E^{-2+2m}$ , le flux d'atomes pulvérisés  $\Phi$  est modélisé par la distribution triplement différentielle de Sigmund-Thompson[31] :

$$\frac{d^3\Phi}{dE d^2\Omega} \propto \frac{E}{(E + U_s)^{3-2m}} \cos^n \theta \quad (1.17)$$

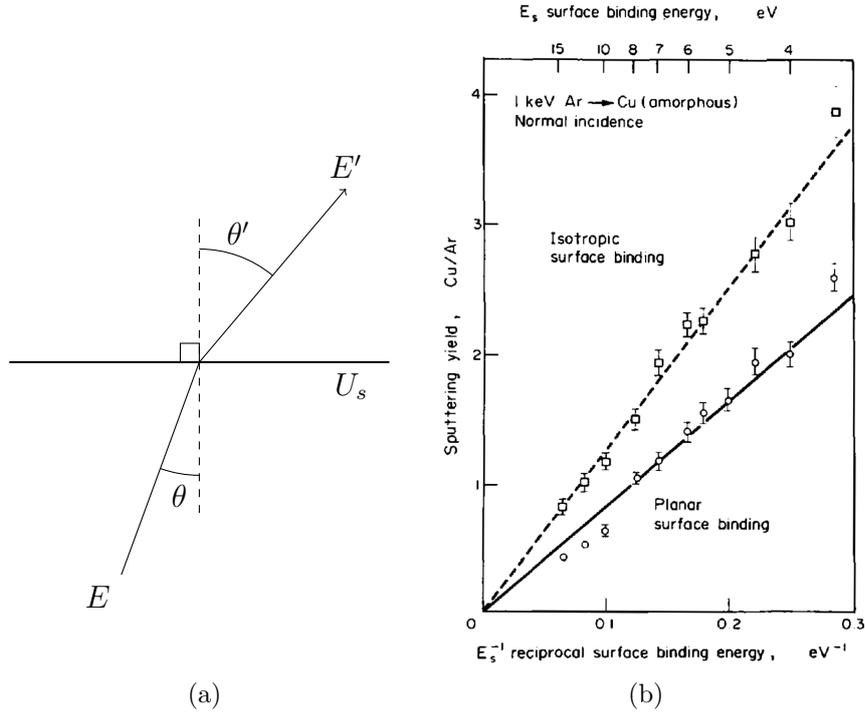


FIGURE 1.8 – (a) Réfraction induite par le franchissement d'un potentiel de surface plan. (b) Évolution du rendement de pulvérisation en fonction du modèle de potentiel de surface et de l'énergie de surface ( $E_s = U_s$ )[28].

avec  $\theta$  l'angle par rapport à la normale du flux d'atomes pulvérisés dans un angle solide  $d\Phi$ . Le paramètre  $m$  dépend des sections efficaces de collisions et est compris entre 0 et 1. Dans le cas de diffusions de type Rutherford,  $m = 1$  et dans le domaine de basse énergie ( $E =$  quelques keV)  $m = 0$ . Cela montre que la dépendance angulaire du flux d'atomes pulvérisés suit une loi en cosinus :

$$\frac{d^3\Phi}{d^2\Omega} \propto \cos \theta \quad (1.18)$$

Dans le cadre d'un flux isotrope à la surface de la cible, la distribution angulaire de pulvérisation est donc décrite par une distribution en cosinus. En réalité la cascade n'est pas strictement isotrope et de légères déviations ont été communément observées. Les distributions mesurées sont, pour la plupart, décrites par une fonction de type  $\cos^n \theta$ , avec  $n$  compris entre 1 et 2[32]. Ce sujet est développé plus en détail en section 4.2.

### 1.3.1.c Régime de cascade non-linéaire

Lorsque l'énergie de l'ion incident est plus élevée ou que la masse du projectile est grande, un nombre important d'atomes entre en mouvement dans la cascade. La densité d'atomes en mouvement ne permet alors plus de considérer les collisions comme indépendantes, la cascade devient non-linéaire.

Il est possible de définir un volume dans lequel la quasi totalité des atomes est en mouvement, ce volume est appelé pointe (*spike* en anglais)[33][34]. Les atomes présents peuvent alors atteindre un équilibre thermodynamique local et leur énergie peut être décrite par une distribution de Maxwell-Boltzmann et le flux de particules atteignant la surface devient :

$$\frac{d^3\Phi}{dEd^2\Omega} \propto E \exp(-E/kT_p) \cos \theta \quad (1.19)$$

avec  $T_p$  la température de pointe,  $kT_p$  représentant l'énergie moyenne des atomes au sein du volume de pointe[35]. En prenant en compte l'énergie de liaison de surface, l'équation 1.19 devient :

$$\frac{d^3\Phi}{dEd^2\Omega} \propto E \exp\left(-\frac{E + U_s}{kT_p}\right) \cos \theta \quad (1.20)$$

Le modèle de pointe nécessite l'hypothèse d'un équilibre thermodynamique local. Le concept de température, de nature statistique, ne peut s'appliquer que pour un grand nombre de particules. Ce modèle est donc sujet à controverse et peut, dans certains cas, nécessiter quelques modifications. Sigmund *et al*[36][37] propose une relation permettant de prendre en compte le caractère cylindrique et semi-infini du volume de pointe :

$$\frac{d^3\Phi}{dEd^2\Omega} \propto E \exp\left(-\frac{E + U_s}{T_p + T_a}\right) \cos \theta \quad (1.21)$$

avec  $T_a$  la température ambiante (macroscopique) du solide.

## 1.3.2 Pulvérisation électronique

Les ions rapides sont essentiellement ralentis par freinage électronique. Les électrons excités par le passage de l'ion transmettent leur énergie aux atomes de la cible qui entrent en mouvement. Lorsque les conditions sont réunies, un atome peut être éjecté de la surface.

Ce processus indirect, appelé pulvérisation électronique, dépend principalement des propriétés spécifiques du matériau. La mise en mouvement des atomes dépend en effet du mécanisme de conversion de l'excitation d'électrons en énergie cinétique des atomes.

Plusieurs modèles permettant la description de la pulvérisation électronique existent, ceux-ci ne permettent cependant pas la description de tous les types de matériaux. Nous présentons ici quelques modèles :

#### **Modèle de la pointe thermique**

Le modèle de la pointe thermique consiste en une approche thermodynamique similaire au modèle de la cascade non linéaire. Au passage de l'ion incident, les électrons sont excités, ils transfèrent alors leur énergie aux atomes. La vitesse de transfert dépend du couplage électron-phonon du matériau. Si ce couplage est efficace, la température au sein de la trace augmente rapidement, on parle alors de pointe thermique.

L'élévation de la température peut induire la pulvérisation d'atomes selon deux mécanismes : soit les atomes en mouvement quittent la surface de la même façon que lors de la pulvérisation nucléaire, on parle alors de pulvérisation thermique[38], soit les atomes sont évaporés du fait de la température atteinte, il s'agit alors de pulvérisation par flux gazeux[39].

#### **Modèle de l'explosion coulombienne**

Une seconde approche consiste à prendre en compte la répulsion des atomes suite à leur ionisation par le passage du projectile. Le mouvement induit par cette répulsion peut être à l'origine de la pulvérisation[40]. Ce modèle impose cependant que le temps de neutralisation des atomes soit suffisamment grand, ce qui limite l'utilisation de ce modèle aux matériaux isolants.

#### **Modèle de pulvérisation par choc**

Ce modèle prend en compte les effets collectifs induits par le passage de l'ion incident[41]. La forte densité d'énergie déposée peut être à l'origine de la création d'une onde de choc se propageant dans le matériau. Lors de la rencontre entre l'onde et la surface, une ablation mécanique peut conduire à l'éjection d'atomes.

Le passage de l'onde peut aussi laisser la matière dans un état thermodynamique propice à la pulvérisation thermique ou par flux gazeux[42].

### **1.3.3 Pulvérisation de matériaux cristallins**

Si les modèles présentés précédemment sont uniquement valables dans le cas de matériaux amorphes, ils restent cependant appropriés pour décrire la pulvérisation de matériaux polycristallins[26]. Dans le cas de matériaux cristallins, des angles préférentiels de pulvérisation peuvent être observés.

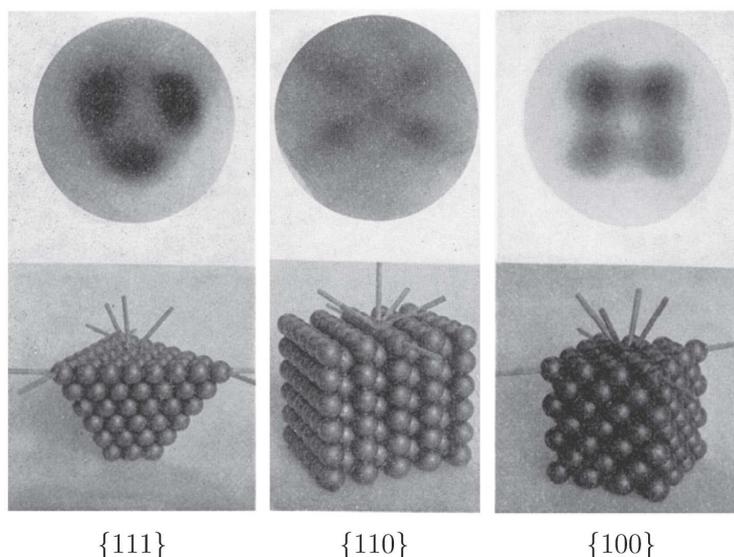


FIGURE 1.9 – Distribution angulaire de pulvérisation d'une cible monocristalline d'or irradiée par un faisceau d'ions Hg d'énergie 100 eV (gauche et droite) et 50 eV (centre)[44].

Ces observations ont été effectuées par Wehner dans les années 1950, lors d'irradiation à très basse énergie (quelques dizaines d'eV). Elles ont, entre autres, permis de confirmer l'hypothèse selon laquelle la pulvérisation provient d'une séquence de collisions[43]. La Figure 1.9 montre les directions préférentielles de pulvérisation dans le cas d'une irradiation d'une cible monocristalline d'or pour différentes orientations cristallines, ces directions forment des spots appelés spots de Wehner.

L'interprétation des directions préférentielles de pulvérisation a été expliquée par différents modèles théoriques, les plus couramment utilisés sont :

#### **Pulvérisation par séquence de collisions focalisées**

Peu après la découverte des spots de Wehner, Silsbee[45] a décrit la pulvérisation à angle préférentiel par la présence de séquences de collisions préférentielles (*focussed collision sequence, focuson*). La collision entre les atomes du matériau est décrite comme un choc de sphères dures le long d'un axe cristallin (Figure 1.10).

Dans ce modèle, un atome reçoit un moment cinétique d'angle  $\beta_0$  par rapport à l'axe cristallin. Par collision, il transfère une partie de son énergie à son plus proche voisin qui est déplacé avec un angle  $\beta_1$ . Silsbee a montré que si l'espace entre les deux atomes est inférieur à leur diamètre,  $\beta_1$  sera inférieur à  $\beta_0$ , ainsi

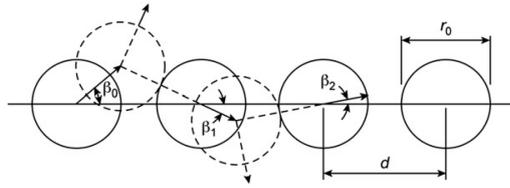


FIGURE 1.10 – Schéma d'une séquence de collisions focalisée[46].

au fur et à mesure que la séquence de collisions se propage, l'angle  $\beta$  devient de plus en plus petit. Le transfert d'énergie lors de la collision devient, quant à lui, de plus en plus efficace.

Ce modèle implique que les atomes soient correctement rangés le long de l'axe cristallin, cependant il admet l'agitation thermique des atomes qui a pour effet de diminuer la tendance sans pour autant l'annihiler.

Les principales faiblesses de ce modèle sont la prise en compte de sphères dures pour la représentation des atomes ainsi que la longueur de la séquence de collisions. Ce dernier point est problématique car il ne permet pas la description de tous les phénomènes observés, notamment à très basse énergie. Lors des expériences de Wehner, les ions ont une énergie ne dépassant pas la centaine d'eV. À ces énergies, les ions ne pénètrent pas dans le matériau et ne peuvent donc pas déclencher une séquence de collisions. Il est cependant possible d'interpréter des phénomènes observés à plus haute énergie[47, 48].

Ce modèle a été étudié de façon numérique par Harrison qui a montré que les séquences de collisions focalisées, bien que possibles, sont relativement rares[49, 50].

### Le modèle de transparence

Le modèle de transparence (*transparency model*) prend également l'hypothèse de sphères dures pour décrire les atomes. Si ces sphères sont suffisamment petites, les réseaux du cristal seront transparents jusqu'à une certaine profondeur. L'ion incident peut alors déclencher une cascade de collisions en profondeur propice à des séquences de collisions focalisées.

La Figure 1.11(a) représente le phénomène de transparence pour un cristal à deux dimensions. L'ion pénètre par le côté supérieur droit avec un angle  $\Phi$ , le nombre inscrit dans les sphères correspond à la tangente de l'angle d'incidence, les sphères rayées indiquent les atomes ayant bloqué le passage de l'ion, les angles relatifs correspondent à un minimum de pulvérisation.

Les minima de pulvérisation deviennent visibles en observant le rendement de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence. La Figure 1.11(b) montre cette mesure pour une cible monocristalline de cuivre irradiée par des ions argon

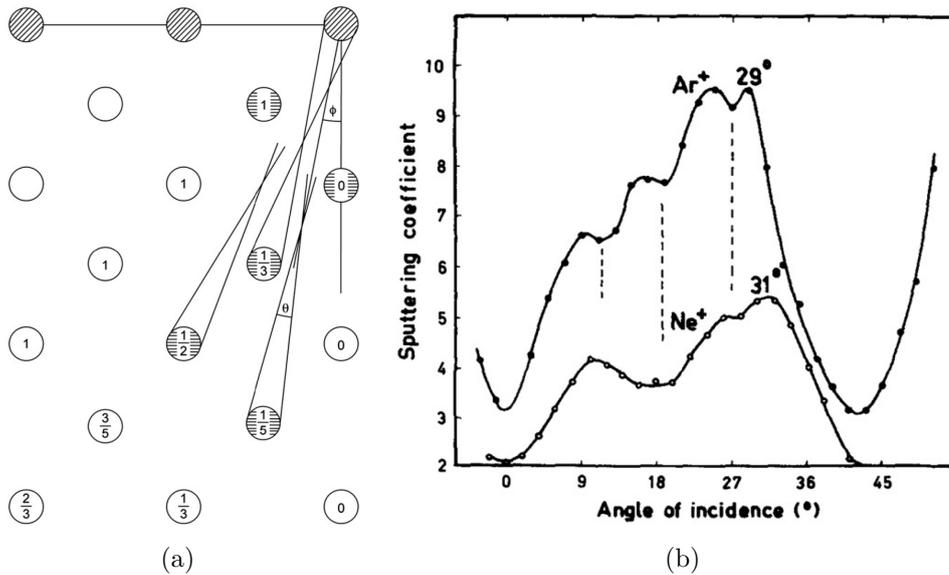


FIGURE 1.11 – (a) Modèle de transparence, (b) Dépendance angulaire de la pulvérisation d'une cible de cuivre (100) par des ions argon et néon d'énergie 20 keV[51].

et néon. Des minima locaux à  $11^\circ$ ,  $19^\circ$  et  $27^\circ$  sont observés et prédits par le modèle[51]. Les tendances générales de la distribution ne sont cependant pas expliquées par ce modèle.

### Le modèle dérivé de la cascade linéaire

Les atomes en mouvement dans la cascade linéaire ont une énergie relativement faible. Pour pouvoir s'échapper de la surface, ils doivent avoir l'énergie et l'orientation nécessaire à leur extraction. Dans le cas de matériaux amorphes, nous avons précédemment vu que cette barrière de surface peut être modélisée par un potentiel de surface de forme plane ou sphérique. Dans le cas d'un cristal, les atomes sont ordonnés, le potentiel de surface comporte une structure particulière, à même de favoriser l'éjection d'atomes à certains angles.

Cette théorie permet de s'affranchir du modèle simple de sphères dures. Elle présente non seulement l'avantage d'expliquer les spots de Wehner observés à basse énergie[52] mais aussi de pouvoir expliquer l'observation de spots dans des directions ne correspondant pas à la structure cristalline[53].

### Le modèle dérivé de la canalisation

La théorie de la canalisation développée par Lindhard[54] a été utilisée pour

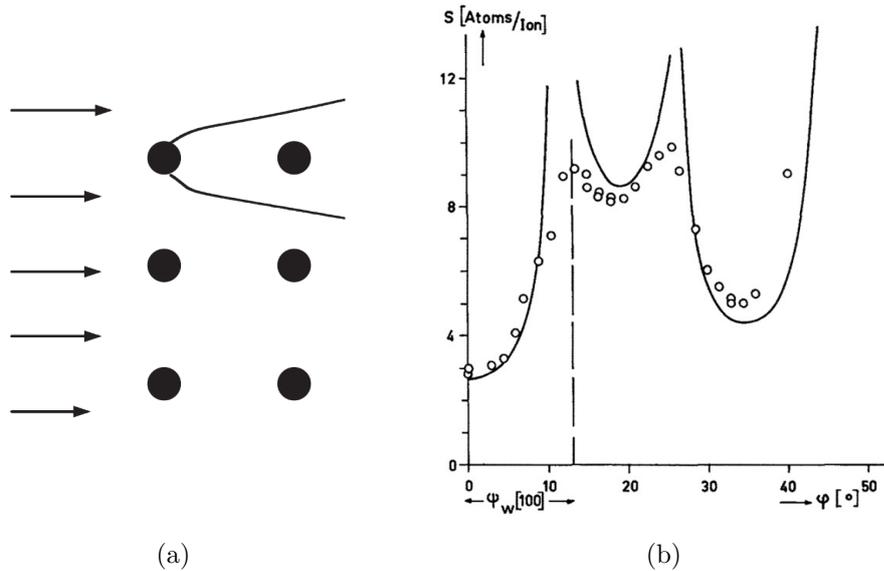


FIGURE 1.12 – (a) Cône d’ombrage produit par un atome, (b) Dépendance angulaire de la pulvérisation d’un cristal de cuivre orienté (100) irradié à 20 keV[56].

expliquer l’effet de l’angle d’incidence des ions sur la pulvérisation<sup>3</sup>. Le parcours d’un ion dans un cristal peut être influencé par l’organisation des atomes. À certains angles, l’ion se trouve canalisé, ce qui augmente fortement son pouvoir de pénétration. Le dépôt d’énergie varie alors avec l’angle d’incidence, ce qui à un effet non négligeable sur la pulvérisation.

À partir de la théorie de la canalisation, Onderdelinden[56] a interprété les variations du rendement de pulvérisation en fonction de l’angle d’incidence pour une cible monocristalline de cuivre. L’expérience menée est identique à celle utilisée pour l’interprétation du modèle de transparence développé précédemment (Figure 1.11(b)). Là où le modèle de transparence prédit les variations des angles donnés, ce modèle permet la prédiction des tendances de la pulvérisation dans une gamme d’angle étendue (Figure 1.12(b)).

Bien que ce modèle permet une bonne interprétation des données expérimentales, il nécessite néanmoins des profondeurs d’implantations déterminées de façon empirique. Ces distances de diffusion sont en général bien plus grandes que celle attendues théoriquement[46], ce modèle reste donc à clarifier.

3. Il faut cependant noter que ce type de canalisation intervient à des énergies bien plus faibles que celles généralement associées à la canalisation[55].

### 1.3.4 Simulation numérique

Les différents modèles théoriques présentés précédemment sont analytiques et nécessitent donc une simplification des phénomènes de pulvérisation. On peut par, exemple, citer le cas du potentiel inter-atomique qui est généralement modélisé par des formules simples (simple répulsion coulombienne, répulsion coulombienne écrantée). Pour palier ce problème, l'étude de la pulvérisation a rapidement été assistée par la simulation numérique<sup>4</sup>.

L'augmentation de la capacité de calcul des ordinateurs a permis l'étude de la pulvérisation en prenant en compte de nouveaux paramètres tels que : l'effet de la température, la géométrie et la composition de la cible (par exemple des couches de matériaux superposés), l'effet de l'irradiation par des agrégats ou encore la structure cristalline de la cible. Il devient aussi possible de suivre l'évolution des mécanismes de pulvérisation ainsi que la nature des éjectas (atome isolé ou agrégat).

On peut citer trois types de simulation numérique : la simulation de type *Monte Carlo*, la simulation de collisions binaires et la dynamique moléculaire.

La simulation de type *Monte Carlo* nécessite une bonne connaissance des sections efficaces de collision. Le parcours des ions et des atomes de recul sont calculés de manière aléatoire. Ce type de code permet de suivre en détail le développement de la cascade de collisions ou encore l'origine d'un atome pulvérisé. On peut citer le code TRIM[57] ou ses différentes versions prenant en compte l'évolution dynamique de la cible TRIDYN[58] et SDTrimSP[59].

La simulation de collisions binaires se base sur une structure de cible pré-définie où évolue de manière déterministe<sup>5</sup> l'ion incident. Contrairement à la méthode de *Monte Carlo*, cette simulation n'utilise pas la section efficace de collision mais calcule chaque collision en fonction du paramètre d'impact et de l'énergie initiale. Elle rend possible l'étude de l'effet de la structure cristalline sur la pulvérisation. Un grand nombre de codes de simulation existe, les plus utilisés sont les codes : MARLOWE[60], OXANA[61], ACAT[62].

La simulation par dynamique moléculaire consiste en la modélisation de chaque atome, de l'ion incident et de leur interaction. Il s'agit d'une simulation complexe à n-corps qui se limite généralement à l'étude des mécanismes d'émission. La Figure 1.13 montre la simulation de l'impact d'un atome d'or sur une cible monocristalline d'or de différente forme géométrique.

---

4. Ceci provient principalement du fait que les modèles théoriques ne nécessitent généralement que des calculs stochastiques simples ne requérant pas l'utilisation de la mécanique quantique[46].

5. Certains termes aléatoires peuvent cependant être introduits, par exemple, pour simuler l'agitation thermique des atomes.

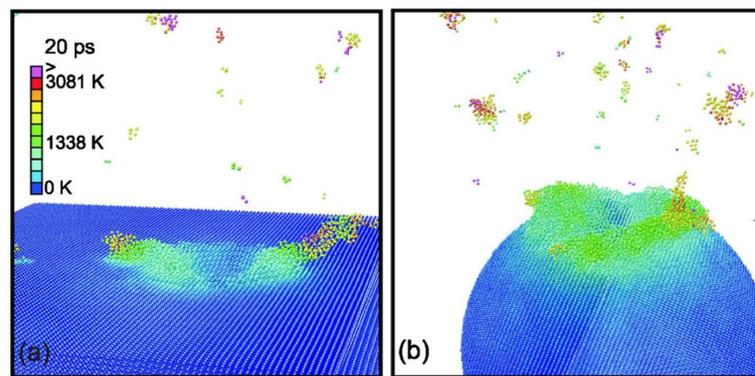


FIGURE 1.13 – Simulation par dynamique moléculaire de l'impact d'un atome d'or d'énergie 16 keV sur des cibles plane (a) et sphérique (b) d'or[63].



DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX  
DÉDIÉS À LA SIMULATION  
PLASMA-PAROI

Les premiers phénomènes de pulvérisation ont été observés il y a plus de 150 ans avec l'érosion des cathodes dans les tubes à décharge électrique[32]. Il a alors fallu 100 ans pour clairement identifier l'origine de la pulvérisation[64] et 20 autres années pour que ce phénomène soit décrit de façon quantitative[26]. De nos jours l'étude de la pulvérisation intervient dans différents domaines allant des dépôts de couches minces à l'astrophysique en passant par la fusion nucléaire.

## 2.1 Étude expérimentale de la pulvérisation : état des connaissances

La pulvérisation de matériaux se traduit par différents phénomènes observables. Le rendement de pulvérisation  $Y$  correspond à la première caractéristique étudiée, il s'agit du rapport entre le nombre d'atomes éjectés de la surface,  $N_e$  et le nombre de particules incidentes  $N_i$  (équation 2.1). Au delà du simple rendement, il est possible de pousser l'observation en s'intéressant aux propriétés de l'éjecta. On peut, par exemple, se pencher sur la nature de ces éjectas, à savoir leurs charges, énergies, distributions angulaires et composition (de type

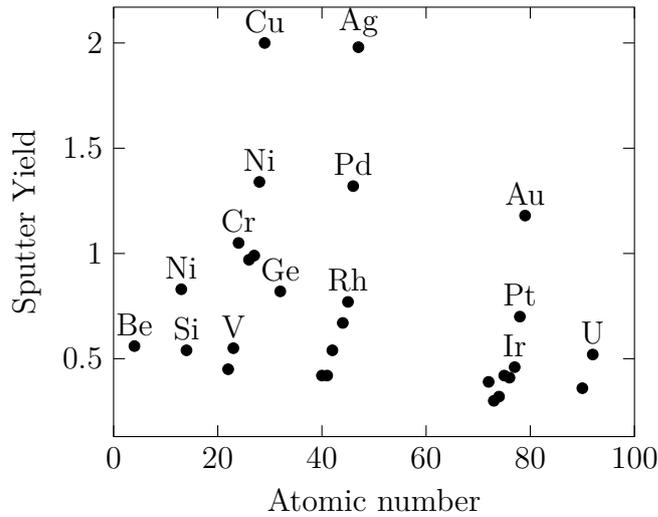


FIGURE 2.1 – Rendement de pulvérisation en fonction du numéro atomique de la cible, irradiation à l'aide de l'ion  $\text{Ne}^+$  à 600 eV[65].

monoatomique, moléculaire ou agrégats). On peut aussi s'intéresser aux modifications de la surface du matériau cible, où il peut être observé un polissage, des rugosités ou des nanostructures induites par les particules incidentes.

$$Y = \frac{N_e}{N_i} \quad (2.1)$$

Les observations des phénomènes de pulvérisation sont liées aux paramètres expérimentaux. Le matériau irradié joue un rôle majeur dans l'expression de la pulvérisation, en effet l'élément qui le compose intervient directement dans les mécanismes de collision et donc dans le rendement de pulvérisation. La figure 2.1 montre l'évolution de la pulvérisation en fonction du numéro atomique des atomes de la cible. En plus de sa composition, qui n'est d'ailleurs pas restreinte à un seul élément, la structure du matériau (cristallin, polycristallin ou amorphe) de la cible et sa topographie peuvent avoir un effet sur la pulvérisation. Les caractéristiques du projectile incident correspondent aussi à un important paramètre expérimental. Sa masse, sa charge et sa vitesse interviennent de façon significative dans les mécanismes d'éjections. L'angle d'incidence et la composition du projectile (élément simple, molécule ou agrégat), ou encore sa fluence jouent également un rôle non négligeable.

Différentes techniques d'analyse permettent l'étude de la pulvérisation. Chacune de ces techniques sont complémentaires car elles ne permettent pas l'observation de tous les phénomènes de pulvérisation. Elles peuvent être classées en deux catégories : les méthodes indirectes, où l'on observe la pulvérisation par

la perte de matière de la cible et les méthodes directes où l'éjecta est étudié.

Les méthodes indirectes correspondent aux premières méthodes employées dans l'étude de la pulvérisation. Il est possible de mesurer la perte de masse d'un échantillon suite à une irradiation, Hechtl *et al.*[66] ont, par exemple, étudié la pulvérisation du graphite à l'aide de balances. La précision de cette technique est toutefois à nuancer et nécessite un certain nombre de conditions. Il est ainsi indispensable que l'implantation ou le piégeage des ions du faisceau induise un gain en masse de la cible négligeable devant la perte de masse liée à la pulvérisation[67]. La pesée des échantillons ayant lieu à pression atmosphérique, il est également important de prendre en compte les phénomènes d'absorption de gaz lors de la remise à l'air[68]. Une seconde technique consiste en l'irradiation de couches minces, la pulvérisation se traduit alors par l'apparition du matériau substrat. Cette technique nécessite une zone d'irradiation homogène ainsi qu'une méthode d'analyse appropriée. On peut citer le travail de Papagno[69] qui a étudié la pulvérisation de cibles de cuivre recouvertes d'or par spectroscopie des électrons Auger. Une dernière méthode réside en l'utilisation de microbalances à quartz sur lesquelles est déposée une couche mince du matériau étudié. La perte de masse est alors obtenue par la variation de la fréquence de résonance du cristal. Cette méthode est très intéressante car elle permet une mesure dynamique des phénomènes de pulvérisation. On peut citer les travaux d'Aumayr *et al.*[70] concernant l'étude de matériaux liés à la fusion nucléaire. Cette technique d'analyse est cependant limitée à l'étude de matériaux sous forme de dépôts.

La seconde catégorie est l'analyse de la matière pulvérisée, on peut la classer en deux sous-catégories : l'une étant l'analyse par spectroscopie et l'autre l'utilisation de matériaux collecteurs. L'utilisation de la spectroscopie de masse est une technique très puissante qui permet la caractérisation précise et dynamique des particules émises. Il est en effet possible de mesurer la masse, la charge et l'énergie des éléments émis lors de la pulvérisation. Avec un détecteur sensible en temps et en position, comme celui présent sur le dispositif AODO du CIMAP[71], l'étude de la distribution en angle des particules émises devient parallèlement possible. Cette méthode comporte cependant un inconvénient majeur ; seules les particules chargées sont détectables, ce qui ne représente qu'une faible partie de la matière éjectée (<1%[40]). Il est possible d'ioniser le reste de la matière par impact électronique ou à l'aide de faisceau laser, mais l'efficacité d'ionisation n'est alors pas toujours connue et diffère d'un élément à l'autre.

La méthode dite de "collecteur" (*catcher method*) consiste en l'utilisation d'un second matériau placé en regard de la cible, la matière éjectée est alors recueillie puis analysée de manière quantitative. Cette technique permet l'étude

de tous les éléments pulvérisés (neutres comme chargés). La disposition géométrique du collecteur permet également la mesure de la distribution angulaire de la pulvérisation. Pour permettre une mesure du rendement total de pulvérisation, il est primordial que le collecteur recouvre la totalité de l'angle solide d'émission. Bien que certains dispositifs le permettent [72], il n'est généralement pas possible de mesurer la masse ou l'énergie des éjectas. Le choix du matériau collecteur est primordial. La probabilité de collage avec le matériau pulvérisé doit en effet être connue et si possible la plus proche de l'unité. Le couple de matériaux collecté/collecteur doit aussi satisfaire à l'analyse des collecteurs. Un grand nombre de techniques d'analyses des collecteurs est disponible, les plus courants étant : l'analyse par réaction nucléaire[73, 74], la spectroscopie par rétrodiffusion Rutherford[75], la détection de recul élastique (*elastic recoil detection analysis*, ERDA)[76], la spectroscopie des électrons Auger (*Auger electron spectroscopy*, AES)[77] ou encore l'ellipsométrie[78].

## 2.2 Conception d'un nouveau dispositif : PULSAR

Parmi toutes ces techniques d'analyses présentées précédemment nous avons opté pour la méthode collecteur analysé par spectroscopie des électrons Auger. Le collecteur est choisi de sorte qu'il couvre une partie significative de l'angle d'émission, ce qui permet d'obtenir la distribution angulaire du rendement de pulvérisation et, par intégration, son rendement total. Avec un seuil de détection pouvant atteindre 0.1% de mono-couche atomique[79], l'AES permet une analyse quantitative très sensible de la surface du collecteur. Son faible encombrement nous permet de l'intégrer au dispositif de pulvérisation ce qui crée toute son originalité permettant ainsi l'analyse *in situ* des collecteurs. Les problèmes liés à la pollution sont de ce fait fortement diminués rendant accessible l'étude de matériaux composé de carbone. C'est à partir de ces exigences que nous avons conçu et réalisé un dispositif d'analyse de la pulvérisation.

Le dispositif expérimental de mesure de distribution angulaire de pulvérisation a donc été conçu à partir des caractéristiques précédemment citées : la mesure par la méthode collecteur couvrant une part significative de l'angle d'émission, suivie d'une analyse *in situ* par spectroscopie des électrons Auger. Ces caractéristiques impliquent certaines contraintes dans la conception du dispositif.

La mesure de distribution angulaire contraint la forme géométrique du collecteur, celui-ci doit effectivement être dans le meilleur des cas hémisphérique. En supposant que la distribution angulaire de la pulvérisation soit de symé-

trie axiale avec la normale, on peut réduire la géométrie du collecteur à une simple bande de forme cylindrique couvrant un angle de  $90^\circ$  par rapport à la normale. Cette forme géométrique ne convient cependant pas à l'analyse du collecteur, le spectromètre Auger n'acceptant que les échantillons plans, il a donc été nécessaire de chercher à résoudre cette difficulté.

La spectroscopie Auger est une technique d'analyse très sensible, capable de mesurer l'extrême surface de la matière ce qui en fait son atout mais aussi son principal inconvénient. Toutes surfaces non préparées sous vide comportent une couche de pollution perturbant les mesures, sans un nettoyage sous vide, l'analyse quantitative est fortement compromise. Nous devons donc munir notre dispositif d'un système de nettoyage, à savoir un canon à ions.

À ceci s'ajoutent certaines contraintes supplémentaires notamment liées à la mesure de la pulvérisation d'éléments carbonés. Il est impératif que le collecteur ne présente aucune trace de pollution. Des hydrocarbures étant les polluants principaux des surfaces il devient impossible de discerner l'origine du carbone présent sur des collecteurs. Pour cela il est nécessaire de travailler sous ultra vide, à des pressions inférieures à  $10^{-9}$  mbar.

L'étude de composants de tokamak étant envisagée et que ces composants sont à la fois volumineux (plusieurs  $\text{cm}^3$ ) et non usinables, le dispositif doit donc être capable d'accueillir des cibles de dimension élevée par rapport à celles habituellement utilisées dans ce domaine de la recherche. Les dimensions du dispositif doivent aussi respecter l'encombrement lié au spectromètre Auger.

### 2.2.1 Conception mécanique

Le principal défi relevé lors de la conception mécanique est lié au collecteur, en effet il doit à la fois pouvoir entourer la cible lors de l'irradiation et être de forme plane devant le spectromètre Auger. Les actions sur le collecteur peuvent se résumer en trois mouvements mécaniques : une mise en forme du collecteur, un déplacement puis un balayage du collecteur devant le spectromètre et devant le canon à ion destiné au nettoyage. Un premier dispositif de ce type a été mis en place par Huang[80], mais nécessitant une série de manipulateurs sous vide pour effectuer les différents mouvements. Cette solution n'est donc pas envisageable sous ultra vide.

Nous proposons ici de traduire les trois mouvements élémentaires en une simple rotation. Pour cela, le collecteur est fixé à deux chaînes circulaires tendues par un ensemble de pignons. La figure 2.2 montre une représentation numérique de l'ensemble. La partie centrale (rouge) constitue le porte cible, les pignons de part et d'autre effectuent la flexion, les pignons extérieurs déploient le collecteur pour son analyse. Tous ces mouvements sont réalisables en entraînant un couple de pignons. La figure 2.3 montre le dispositif placé dans son

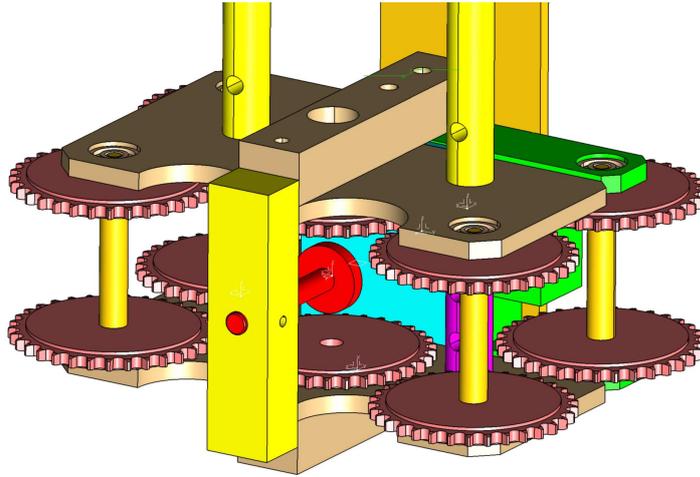


FIGURE 2.2 – Prototype de PULSAR utilisant une chaîne.

enceinte.

La conception a ensuite évolué, les chaînes et les pignons ont été remplacés par une courroie métallique et des poulies. Une seconde courroie a été adoptée pour déporter la transmission de la rotation. Le système de poulie, le manipulateur ainsi que le canon de nettoyage sont fixés sur une bride, ce qui permet la mise en place du dispositif dans l'enceinte en un seul bloc.

Les figures 2.4 et 2.5 montrent une vue en perspective du dispositif. Pour des soucis de visibilité, la courroie principale ainsi que le canon de nettoyage ne sont pas représentés.

### 2.2.2 Description du dispositif PULSAR

Ce paragraphe a pour but la description détaillée du dispositif PULSAR et de son usage. Nous nous intéresserons aux préparatifs de l'expérience ainsi qu'à son déroulement.

Le dispositif est fixé à l'enceinte sous vide qui est pompée à l'aide d'un groupe de pompage sec. Cet ensemble de pompes a la particularité d'être dépourvu d'huile ce qui limite la pollution du vide par des hydrocarbures. Il est composé d'une pompe primaire à spirale et de deux pompes turbo-moléculaires montées en tandem. Après étuvage à  $150^\circ$  de l'ensemble, la pression du vide résiduel est inférieure à  $5 \times 10^{-10}$  mbar. Les expériences peuvent alors débuter.

Le dispositif PULSAR permet d'exécuter les trois opérations nécessaires à la mesure du rendement angulaire de pulvérisation : le nettoyage sous vide des collecteurs, l'irradiation de la cible et l'analyse de la matière collectée. Ces

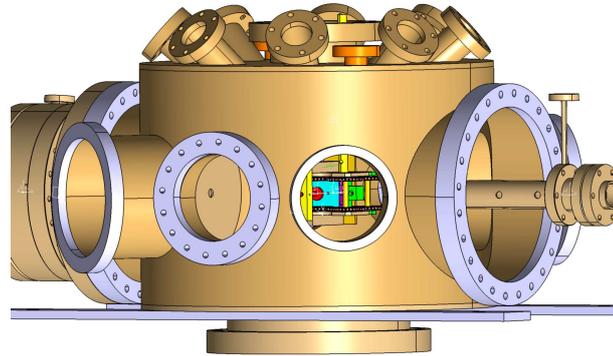


FIGURE 2.3 – Représentation numérique de l'enceinte sous vide du dispositif expérimental.

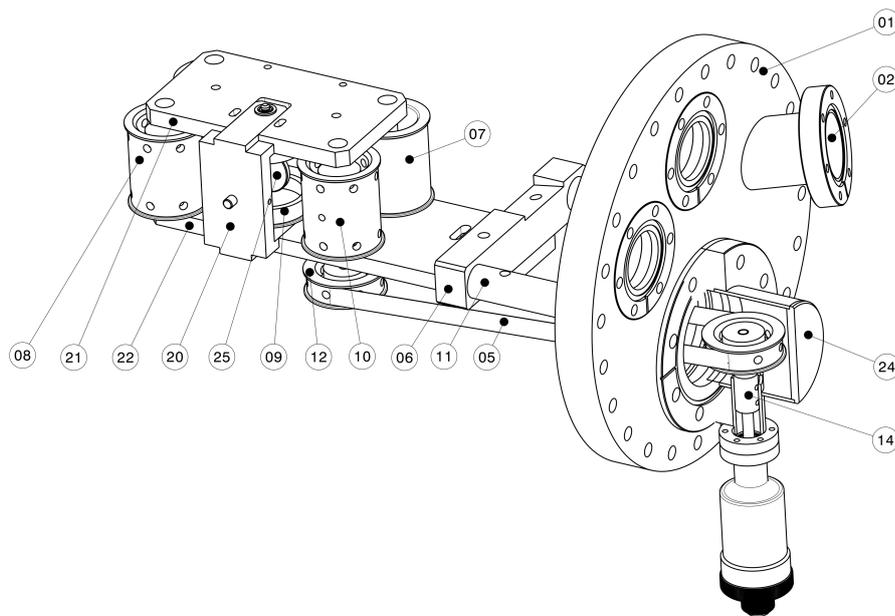


FIGURE 2.4 – Plan de PULSAR : (1) bride CF200, (2) bride pour le canon de nettoyage, (5) courroie de transmission, (6) système de réglage en position, (7) et (8) poulie, (9) poulie creuse, (10) et (12) poulies de transmission, (11) tige de maintien, (14) fixation de l'arbre du manipulateur, (20) étrier porte cible, (21) et (22) plaques de maintien, (24) chambre de fixation du manipulateur et (25) porte cible.

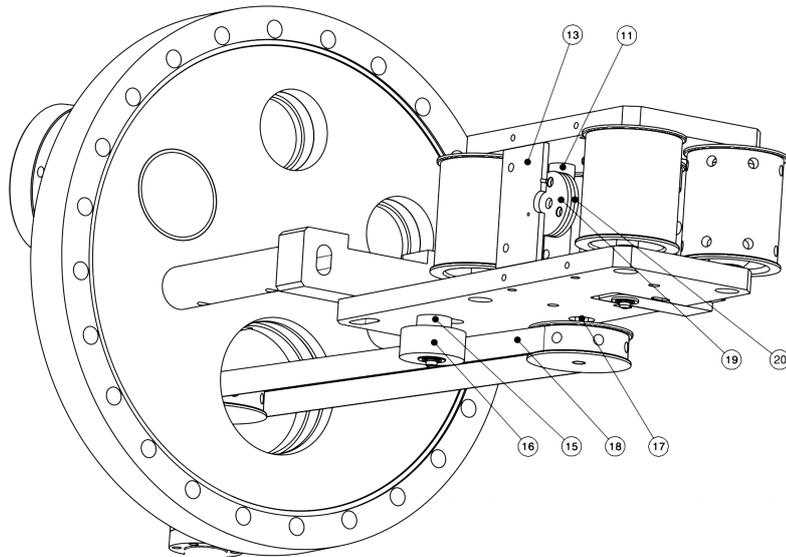


FIGURE 2.5 – Plan de PULSAR : (11) espaceur des plaques de maintien, (13) porte collimateurs, (15) et (16) système de tension de la courroie de transmission, (17) arbre de transmission, (18) courroie de transmission, (19) et (20) collimateurs.

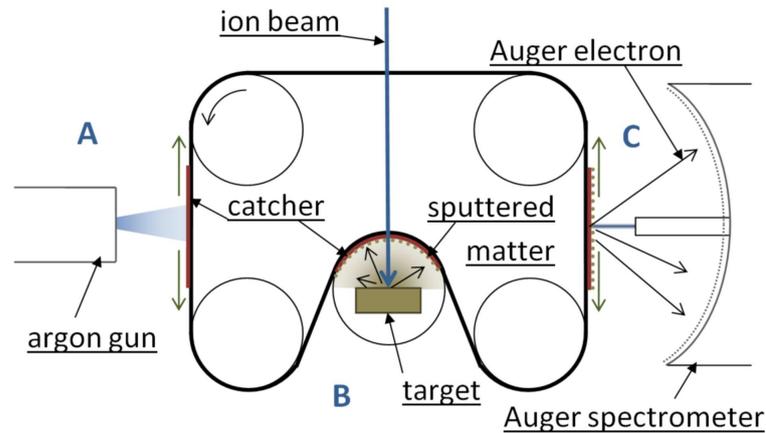


FIGURE 2.6 – Vue schématique de PULSAR. **A** zone de nettoyage des collecteurs, **B** zone d’irradiation et **C** zone d’analyse.

étapes sont schématisées en figure 2.6.

La première étape consiste au nettoyage sous vide des collecteurs, nous utilisons pour cela un canon à ions. Il est placé à environ 10 cm du collecteur avec un angle de  $22^\circ$  par rapport à sa normale, ce qui améliore son efficacité. Les ions émis sont des ions d’argon simplement chargés d’une énergie de 500 eV. Le faisceau, d’intensité  $0.1 \mu\text{A}$ , forme sur le collecteur un spot de largeur (FWHM) estimé à 1 cm. Le déplacement du catcher permet son nettoyage dans sa totalité, il est alors placé devant le spectromètre pour s’assurer que le nettoyage a été suffisant (absence de carbone en surface).

Le collecteur est ensuite placé en regard de la cible qui est irradiée par faisceau d’ions. Il est formé de morceaux de wafer de silicium d’environ  $5 \times 5 \text{ mm}^2$ . Il est également possible d’utiliser des bandes de wafer ultra minces (moins de  $40 \mu\text{m}$  d’épaisseur) capables de se tordre. Les morceaux peuvent alors atteindre une grande longueur ( $25 \times 5 \text{ mm}^2$ ), ce qui permet la collecte de l’éjecta sur une surface continue. Le collecteur est préalablement nettoyé par immersion d’une trentaine de minute dans une série de bains chimiques : un bain de trichloréthylène pour le dégraissage puis respectivement des bains d’acétone, de méthanol et d’eau pure pour dissoudre le solvant du bain précédent. Les morceaux sont ensuite collés à la courroie par de patchs ultra vide.

Les différentes productions de faisceaux d’ions sont décrites dans la section 2.3. Le faisceau traverse la courroie par deux orifices de diamètre 8 mm et 3 mm. Entre ceux-ci sont placés des collimateurs de 5 mm et 4 mm de diamètre, ils permettent de définir une émittance et de mesurer les variations d’intensité de faisceau. Avant le début d’une série d’expériences, la cible est nettoyée à

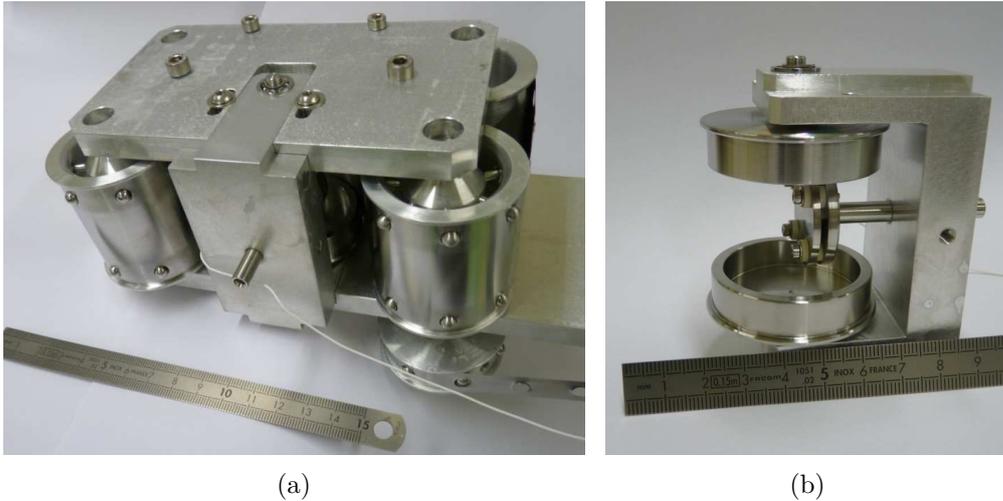


FIGURE 2.7 – Dispositif PULSAR : (a) vue du système de poulies, le faisceau d'ions arrivant par le haut de l'image.(b) porte cible fixé dans l'étrier.

l'éthanol (ou clivée pour les cibles comme le HOPG) puis placée sur le porte cible. Elle est fixée sur le porte cible grâce à des patches destinés à l'ultra vide (patches UHV). La cible est électriquement isolée ce qui permet la mesure du courant du faisceau d'ions ou encore la mesure des électrons secondaires (*cf.* section 2.2.2.b). Le porte cible est fixé dans l'étrier (figure 2.7(b)) qui, grâce à sa poulie creuse, courbe la courroie de façon cylindrique autour de la cible. L'étrier joue aussi un rôle dans la tension de la courroie, il est assemblé au reste du dispositif par des vis encastrées dans des trous de forme oblongue, ce qui permet l'ajustement de sa fixation (figure 2.7(a)).

Une fois que suffisamment de matière est collectée pour permettre sa quantification, la courroie est changée de position pour permettre l'analyse des collecteurs. Le spectromètre Auger (élément à droite de la Figure 2.8) est un analyseur à champ retardant à quatre grilles, sa description ainsi que le principe de l'analyse feront l'objet de la section 3.3. L'analyse du collecteur s'effectue sur toute sa longueur en déplaçant la courroie, le faisceau d'électrons étant positionné sur la partie étudiée. Le spot du faisceau d'électrons mesure moins de 1 mm de diamètre. Afin d'obtenir une position précise, le faisceau peut être placé sur un morceau de wafer de Si comportant une couche de 100 nm de silice. Cette couche scintille au niveau du spot électronique permettant ainsi une évaluation optique de sa position, laquelle est alors reportée sur le collecteur.

Une fois le collecteur analysé dans toute sa longueur, la quantité de matière collectée en chaque angle est déduite des spectres Auger (voir section 3.2). Pour définir au mieux la distribution angulaire et le rendement total de pulvérisation,

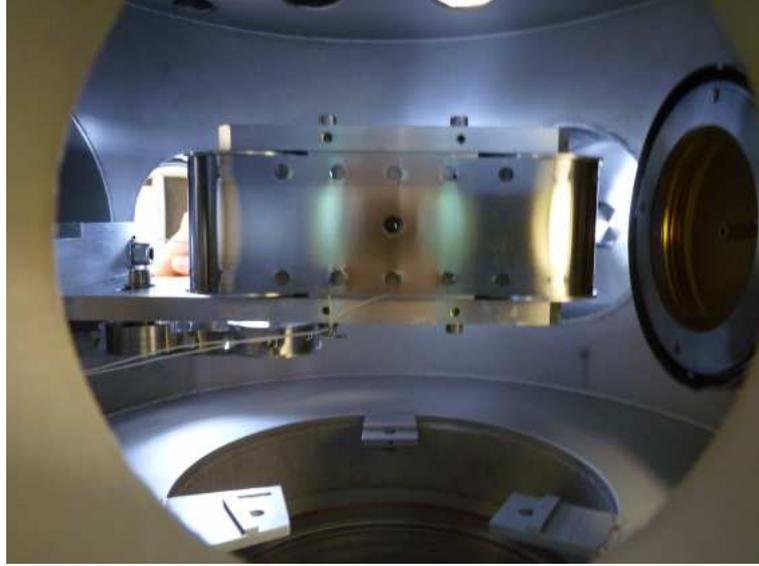


FIGURE 2.8 – Dispositif PULSAR installé dans l'enceinte UHV.

quelques corrections doivent être opérées. Tout d'abord la dose d'ions atteignant la cible est obtenue à l'aide de la mesure de courant intégré. Ce courant est, pour une part non négligeable, lié aux électrons secondaires. Une seconde correction a pour origine la forme du collecteur qui, pour les grands angles d'émission, ne peut être considéré comme cylindrique. Une fois ces corrections prises en compte les données obtenues peuvent être intégrées dans tout l'espace afin d'obtenir le rendement total de pulvérisation.

### 2.2.2.a Calcul du rendement de pulvérisation

La mesure du collecteur nous permet de déterminer le rendement de pulvérisation sur un plan. En intégrant sur la totalité de l'angle solide d'émission, on peut alors déterminer le rendement total de pulvérisation. La Figure 2.9 montre la sphère d'émission des particules pulvérisées, soit  $dN$  le nombre d'atomes collectés compris dans la surface  $dS$ . On pose la relation suivante :

$$dN = \frac{h(\theta, \phi)dS\rho N_A}{M} \quad (2.2)$$

avec  $h(\theta, \phi)$  l'épaisseur de matière pulvérisée déposée sur le collecteur,  $\rho$  et  $M$  respectivement la densité et la masse molaire de la matière pulvérisée,  $N_A$  le nombre d'Avogadro. Le nombre d'atomes collectés correspond alors à l'intégra-

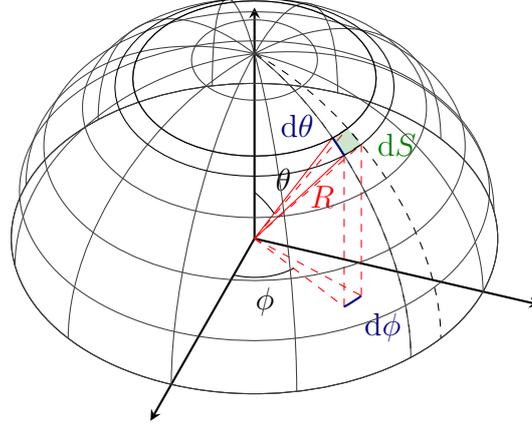


FIGURE 2.9 – Sphère d'émission des particules secondaires

tion sur la sphère d'émission :

$$N_{\text{atomes}} = \int_S \frac{h(\theta, \phi) \rho N_A}{M} dS \quad (2.3)$$

On décompose  $dS$  :

$$dS = R^2 \sin \theta d\theta d\phi \quad (2.4)$$

avec  $R$  le rayon de la sphère. En considérant la pulvérisation isotrope selon l'azimut, on a alors  $h(\theta, \phi)$  constant selon  $\phi$ . L'équation 2.3 devient alors :

$$N_{\text{atomes}} = \frac{\rho N_A}{M} 2\pi R^2 \int_0^{\pi/2} h(\theta) \sin \theta d\theta \quad (2.5)$$

A l'aide du coefficient de collage du matériau pulvérisé sur le collecteur, on détermine le nombre d'atomes éjectés. En le comparant au nombre d'ions incidents on obtient alors le rendement total de pulvérisation.

### 2.2.2.b Corrections liées aux mesures

#### Corrections liées aux électrons secondaires

Lors de l'irradiation, les ions incidents vont provoquer l'émission d'électrons secondaires. Cette fuite de charges négatives a pour conséquence la création d'un courant électrique se superposant au courant créé par les ions incidents, faussant ainsi sa mesure. Il est possible de quantifier, pour un matériau donné, le rendement d'émission d'électrons secondaires induit par un projectile, à un état de charge et à une énergie donnée. Dans ce domaine on peut citer les

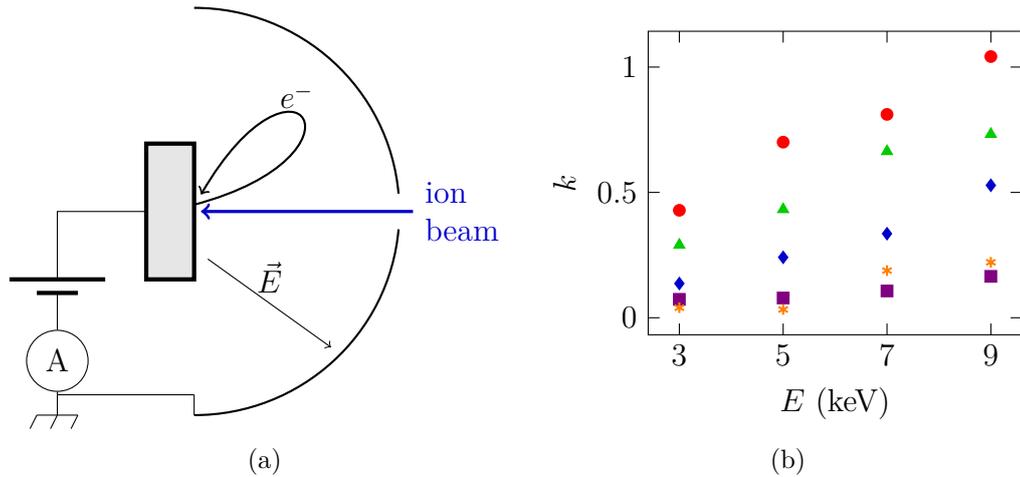


FIGURE 2.10 – Mesure du rendement d'émission électronique secondaire : (a) principe de mesure, (b) rendement d'émission du tungstène en fonction de l'ion et de l'énergie : ● He<sup>+</sup>, ▲ Ne<sup>+</sup>, ◆ Ar<sup>+</sup>, ■ Kr<sup>+</sup> et \* Xe<sup>+</sup>.

travaux de Kowarik[81] sur l'étude de l'émission d'électrons secondaires pour des matériaux d'intérêt pour la fusion.

Afin d'obtenir le rendement d'émission correspondant à nos paramètres expérimentaux nous créons un champ électrique entre la cible et le dispositif (Figure 2.10(a)). Ce champ repousse alors les électrons vers la cible, ce qui a pour effet d'annuler le courant induit. En comparant le courant de la cible obtenu avec celui en absence de champ, on obtient le courant électronique.

Pour créer ce champ, nous appliquons un potentiel positif sur la cible. Afin d'avoir une alimentation à la fois "flottante" et stable, nous utilisons des piles disposées en série. Ce dispositif permet d'obtenir une différence de potentiel d'environ 80 V, ce qui est suffisant pour repousser la totalité des électrons émis[82]. La figure 2.10(b) montre les données collectées pour une cible tungstène, on peut constater que le rendement de pulvérisation est relativement élevé, notamment pour l'ion He<sup>+</sup> à 9 keV, où il dépasse 1.

### Corrections liées à la courroie

La courroie n'étant pas tendue sur la totalité de la poulie creuse, le matériau collecteur n'est pas strictement cylindrique (Figure 2.11). Afin d'obtenir des résultats normalisés et de simplifier le calcul du rendement de pulvérisation, nous appliquons une correction concernant l'angle et la distance d'un point du collecteur.

D'après le schéma du dispositif PULSAR en Figure 2.12, on peut alors

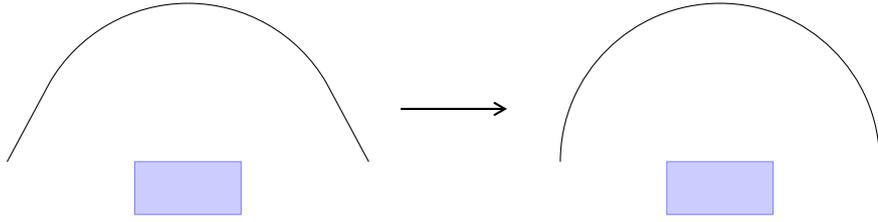


FIGURE 2.11 – Vue schématique de la courroie au niveau de la cible de pulvérisation

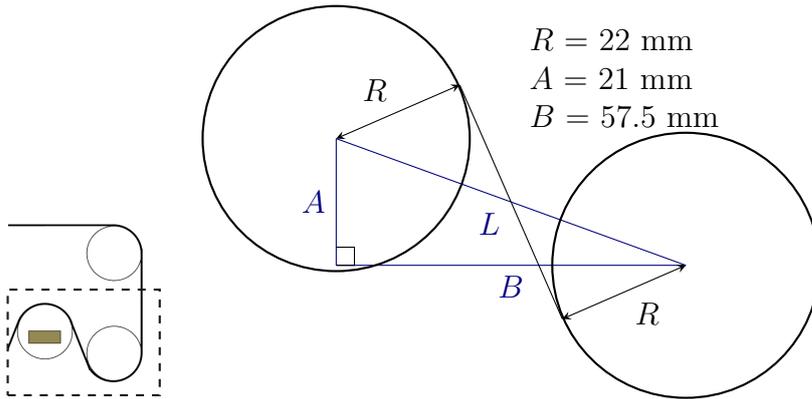


FIGURE 2.12 – Vue schématisée du dispositif PULSAR au niveau de la poulie creuse.

déterminer l'angle  $\alpha$  (Figure 2.13) à partir duquel la courroie quitte le contact de la poulie. Toutes mesures situées au delà de cet angle supérieur devra subir une correction. En exprimant  $\alpha$  en fonction des différents paramètres géométriques  $A$ ,  $B$ ,  $R$ , on obtient l'équation :

$$\alpha = \frac{\pi}{2} - \theta - \theta' = \frac{\pi}{2} - \arctan\left(\frac{A}{B}\right) - \arctan\left(\frac{2R}{\sqrt{A^2 + B^2}}\right) \quad (2.6)$$

On obtient alors un angle  $\alpha$  de  $66^\circ$ , ce qui équivaut à une distance  $d'$  entre le point du collecteur étudié et l'orifice de la courroie de 25 mm (Figure 2.13). Tout point du collecteur ayant une distance  $d$  supérieur à  $d'$ , a alors l'angle suivant :

$$\gamma = \alpha + \arctan\left(\frac{d - \alpha R}{R}\right) \quad (2.7)$$

La correction sur l'angle reste toutefois faible, ne dépassant pas le 2%.

La distance entre un point du collecteur situé à un angle supérieur à  $\alpha$  et le centre de la cible est différent de  $R$ ; l'épaisseur de matière collectée doit donc aussi être normalisée. La figure 2.14 illustre ce problème : soient  $S_1$  et  $S_2$

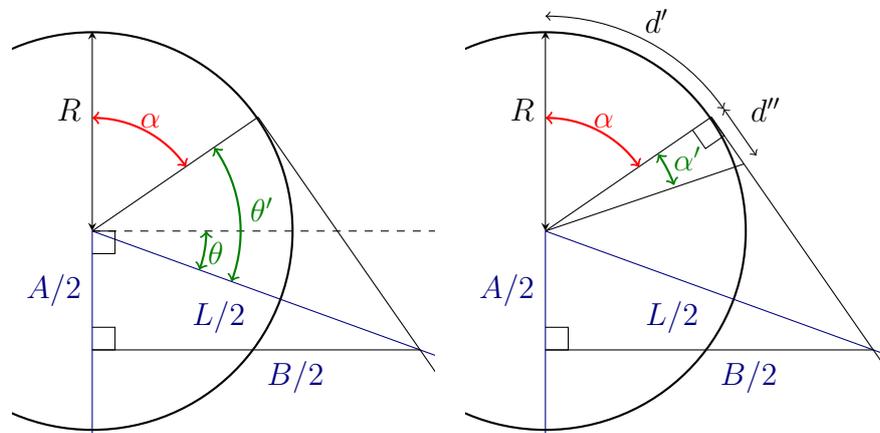
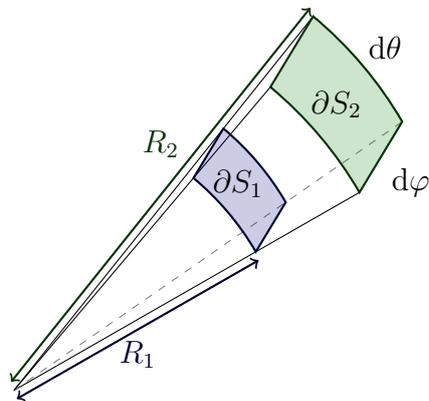
FIGURE 2.13 – Détermination des angles  $\alpha$  et  $\alpha'$ 

FIGURE 2.14 – Correction de l'épaisseur de matière déposée

deux surfaces respectivement situées à  $R_1$  et  $R_2$  de la cible. Si l'on considère une quantité de matière pulvérisée dans l'angle solide  $d\theta d\phi$ , on peut alors en déduire l'épaisseur de matière ( $h_1$  et  $h_2$ ) sur chacune des surfaces :

$$h_1 dS_1 = h_2 dS_2 \quad (2.8)$$

$$h_1 R_1 d\theta d\phi = h_2 R_2 d\theta d\phi \quad (2.9)$$

On peut alors écrire :

$$h_1 = K h_2 \quad (2.10)$$

avec  $K = R_2/R_1$ , qui vaut alors 1 pour  $\gamma < \alpha$  et  $\cos^{-1}(\gamma - \alpha)$  pour  $\gamma > \alpha$ . Pour l'angle maximum l'erreur liée au décalage de la courroie vaut 10%, ce qui est non négligeable.

## 2.3 Production de faisceaux d'ions

### 2.3.1 Ligne très basse énergie

La ligne très basse énergie (LTBE) est une ligne permettant la production de faisceaux d'ions multichargés de très basse énergie cinétique (jusqu'à quelques électron-Volts par charge[83]). Par sa capacité à produire des ions de même énergie que ceux présents dans les réacteurs de fusion, cette ligne présente un grand intérêt pour notre étude. Nous avons donc entrepris des études préliminaires afin de prouver la faisabilité de nos expériences sur cette ligne.

La LTBE est composée d'une source d'ions multichargés à résonance électronique cyclotronique, d'un dipôle d'analyse et d'un système de décélération.

#### 2.3.1.a Source ECR

Les sources d'ions à résonance électronique cyclotronique (*electron cyclotron resonance ion source*, ECR ion source) sont des sources principalement utilisées pour la production d'ions en grande quantité ou multichargés. Il s'agit d'une chambre où règne un champ magnétique intense créé à l'aide d'aimants permanents ou de bobines électriques, ce qui permet à la fois le confinement d'un plasma, d'où sont extraits les ions, et la résonance des électrons qui le composent.

Le principe de fonctionnement est le suivant : dans la chambre plasma, un gaz ainsi qu'une onde haute fréquence sont injectés. Sous l'effet de l'onde, des électrons libres sont accélérés. La force de Lorentz, induite par la présence du champ magnétique, dévie les électrons qui effectuent alors des cycles à une

fréquence donnée. La fréquence de l'onde étant proche de cette fréquence, les électrons sont accélérés<sup>1</sup>. Ce phénomène de résonance permet aux électrons d'atteindre de très grandes énergies cinétiques (jusqu'à plusieurs centaines de keV[84]). Lors de l'impact avec des particules de gaz, les atomes sont ionisés, fournissant alors de nouveaux électrons au plasma. Si l'énergie des électrons est suffisante, leur collision avec des ions du plasma permet de nouvelles pertes d'électrons, entraînant ainsi la production d'ions multichargés. La source utilisée par la LTBE est la source appelée CAPRICE[85]. Son champ magnétique est formé par deux bobines électriques (et des aimants permanents pour le confinement radial), sa fréquence ECR est de 14.5 GHz.

### 2.3.1.b La ligne de décélération

Les ions produits par la source ECR sont accélérés par une différence de potentiel d'une dizaine de kilovolts, puis le faisceau traverse un dipôle d'analyse. En sortie du dipôle se trouve une série d'électrodes qui constituent deux lentilles électrostatiques. Ces lentilles ont la capacité, en plus de focaliser le faisceau, de le ralentir. Afin que la zone d'expérience reste à la masse pour des raisons pratiques, le potentiel de la source doit être au potentiel correspondant à l'énergie finale des ions. Pour permettre cela, tout en ayant une énergie de transport dans la ligne de plusieurs kilovolts, une partie de la ligne est placée sur une plateforme portée à un potentiel négatif.

### 2.3.1.c Mesures de fluence

Les mesures de fluence ont montré que l'intensité des faisceaux en sortie de la LTBE sont trop faibles (quelques dizaine de  $\mu A$ ) pour envisager une série d'expériences. Les caractéristiques obtenues étaient bien loin de celles attendues pour cette ligne, nous avons donc tenté de déceler les éventuels problèmes. La figure 2.15 montre une de ces tentatives, elle consiste en la mesure de la dispersion en énergie des ions du faisceau à l'aide d'un analyseur à champ retardant. Cette étude n'a pas permis de mettre en évidence un quelconque dysfonctionnement.

Nous avons donc remis en cause l'utilisation de la LTBE pour nos expériences de pulvérisation. Cependant l'identification récente de deux problèmes sur la ligne nous conforte dans la possibilité d'utiliser, dans un futur proche, des ions d'énergies relatives à la fusion nucléaire. En effet, des mesures ont récemment mis en évidence un défaut d'alignement de la ligne. Il a aussi été

---

1. Il s'agit d'un chauffage stochastique qui, statistiquement, induit un gain en énergie des électrons.

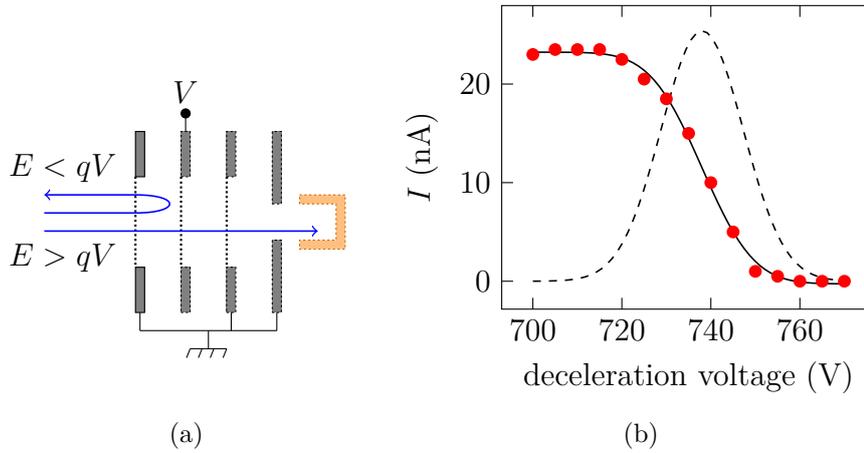


FIGURE 2.15 – Mesure de dispersion en énergie : (a) schéma de la coupelle de faraday munie d'un analyseur à champ retardant. (b) Mesure de la dispersion en énergie d'un faisceau de  $\text{Ar}^{8+}$  décéléré de 7 keV/q à 700 eV/q (• données expérimentales, --- distribution en énergie).

remarqué une erreur dans la publication relative à la LTBE [83], ce qui induisait de mauvais réglages des lentilles de décélération.

### 2.3.2 Source à filament

Dans un premier temps les ions utilisés lors de nos expériences sont fournis par une source à filament. Cette source présente l'avantage d'être compacte et facile à mettre en œuvre. Il est de plus possible de rapprocher la source au plus près du dispositif, permettant alors l'emploi de faisceaux d'ions de faible énergie. Cependant cette source ne produit qu'une faible gamme d'ions. En effet, le filament peut réagir avec certains éléments utilisés ce qui limite son utilisation aux gaz rares.

La source utilisée est un canon à argon fourni par la société Varian (modèle 981-2043) initialement utilisé comme source de nettoyage de surface ou comme source d'ions pour des expériences sur le guidage par capillaires de verre[86]. La figure 2.16 schématise son principe de fonctionnement. Un gaz, typiquement de l'argon, est introduit dans la chambre sous vide contenant le canon. Par chauffage résistif, un filament (présent en deux exemplaires) est porté à une température d'émission thermoïonique, émettant alors des électrons. Une différence de potentiel de 75 V est appliquée entre le filament et une grille cylindrique, appelée la chambre d'ionisation. Les électrons, accélérés par le champs électrique produit, rentrent en collision avec les atomes de gaz et les ionisent[87].

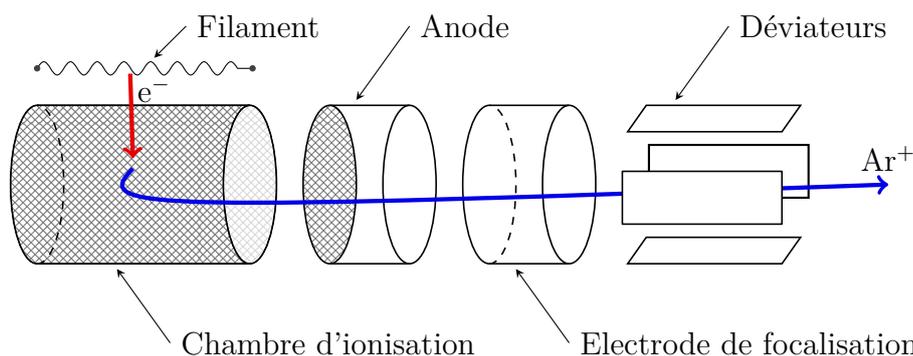


FIGURE 2.16 – Principe de fonctionnement de la source à filament

La chambre d'ionisation est, elle, portée à un potentiel correspondant à l'énergie d'accélération. Le champ électrique crée entre la chambre et l'anode à la masse accélère des ions formés. Une électrode de focalisation règle la mise au point du faisceau d'ions en jouant le rôle d'électrode centrale d'une lentille d'insel, les électrodes extérieures sont alors l'anode et des déviateurs électrostatiques. Des déviateurs permettent le balayage du faisceau selon deux axes ce qui permet, pour les applications de nettoyage de surface, d'obtenir un nettoyage plus uniforme.

La source d'ions à filament produit des faisceaux d'ions monochargés de faible énergie (de 100 eV à 2.8 keV) à partir de gaz rares (*e.i.* de l'hélium au xénon). Cependant les intensités suffisantes pour les expériences de pulvérisation (de l'ordre du  $\mu A$ ) ne sont obtenues que pour l'énergie maximale. De plus, le mode d'injection du gaz (dans la totalité de la chambre sous vide) ne permet pas l'introduction de gaz que nous avons en petite quantité telle que le néon ou le krypton. Quant à l'hélium, l'énergie d'ionisation plus élevée ne permet pas d'obtenir des intensités convenables (plusieurs  $\mu A$ ). Nous limitons donc son utilisation au faisceau d' $Ar^+$  à 2.8 keV.

Notons que plusieurs réparations sur le canon ont été nécessaires tout au long de ce travail : Les filaments ainsi que la chambre d'ionisation ont été endommagés lors d'une inondation au GANIL qui a causé une coupure générale de courant, éteignant alors le système de pompage. Lors de la remise sous tension le canon a redémarré sans que le vide n'ait été assez poussé. L'oxygène alors présent a endommagé le filament qui est rentré en contact avec la grille de la chambre d'ionisation, l'endommageant à son tour : il a alors fallu construire une chambre d'ionisation de toute pièce. Les filaments ont été remplacés, de bonnes caractéristiques ont été obtenues pour du fil de tungstène thorié de 0.1 mm de diamètre.

Nous avons profité de ces réparations pour changer la grille de l'anode qui,

par la pulvérisation engendrée par le faisceau d'ions, comportait un trou en son centre. La première grille de remplacement était en nickel, ce qui a eu pour effet la pollution au nickel lors du nettoyage des collecteurs.

### 2.3.3 Ligne de faisceau intense

La majorité de nos expériences a été réalisée sur la ligne de faisceau intense (Figure 2.17). Il s'agit d'une ligne comportant une source d'ions à résonance électronique cyclotronique (Mono1000) délivrant des faisceaux de haute intensité (jusqu'à quelques mA pour  $\text{He}^+$  à 18 keV [88]). Elle comporte un système d'extraction à trois électrodes (dont deux mobiles) ainsi que des lentilles électrostatiques (lentille de einzel) et un filtre d'analyse (filtre de Wien) (Figure 2.18).

Cette ligne a démarré dans le cadre d'un projet ANR PIBALE (Plateforme d'Irradiation de Biomolécules et d'Agrégats Libres et Environnés) coordonné par l'équipe AMA du CIMAP (Atomes, Molécules et Agrégats). L'objectif de ce projet est la construction d'une plateforme permettant d'étudier la fragmentation et la stabilité de systèmes complexes (biomolécules, agrégats de biomolécules, etc.) suite à une collision avec des ions (monochargés ou multichargés). Les fragments obtenus lors de cette collision seront analysés en masse à l'aide d'un spectromètre temps de vol. La forte intensité des faisceaux produits par la source Mono1000 permettra, entre autres, l'étude et l'amélioration du dispositif pour permettre le passage à des faisceaux d'ions multichargés de plus faible intensité (faisceaux de ARIBE).

Les faisceaux intenses d'ions monochargés de basse énergie (inférieur à 20 keV) représentant un grand intérêt pour nos expériences de pulvérisation, nous avons pris part au développement de cette ligne. Nous avons pris en charge la gestion du montage mécanique et électrique, ainsi que le contrôle informatisé de la source. Enfin, suite à la certification électrique de la source, nous avons produit les premiers faisceaux d'ions et effectué quelques correctifs par rapport à la conception initiale.

#### 2.3.3.a Source Mono1000

La source Mono1000 est une source ECR développée par le GANIL[89] dédiée à la production d'ions monochargés en grande quantité. Elle se compose d'une chambre plasma en cuivre de  $1000 \text{ cm}^3$  entourée de deux couronnes d'aimants permanents, distants de 80 mm et de rayon interne 50 mm. Le champ magnétique, de symétrie de révolution axiale, peut atteindre par endroits une valeur de 2300 gauss. La fréquence de résonance cyclotronique est de 2.45 GHz pour une puissance limitée à 200W[88].



FIGURE 2.17 – Ligne de faisceau intense

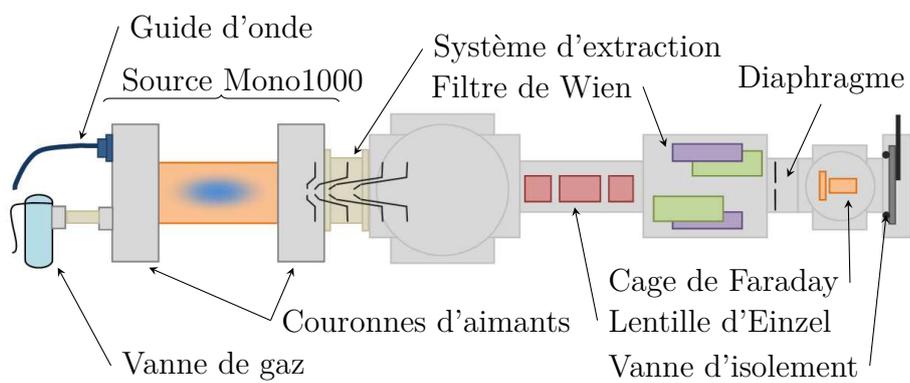


FIGURE 2.18 – Schéma de la ligne de faisceau intense

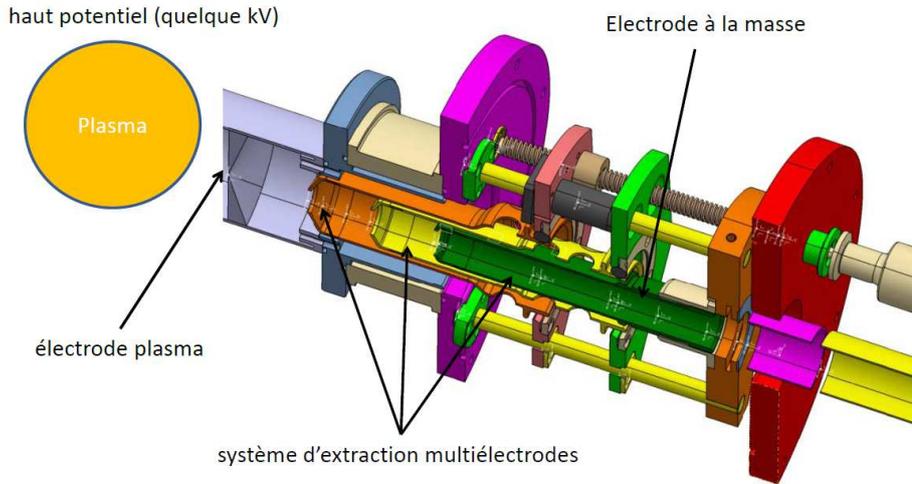


FIGURE 2.19 – Ensemble d'extraction de la source Mono1000[90]

### 2.3.3.b Extraction et systèmes optiques

Les ions produits par la source Mono1000 sont extraits du plasma par un champ électrique créé entre des électrodes. Ces électrodes sont au minimum deux : une première, l'électrode plasma, est au potentiel électrique de la source, c'est-à-dire au potentiel d'accélération des ions, son rôle est de définir un orifice dans lequel sont puisés les ions. L'électrode finale, dite de masse, est au potentiel de la ligne de faisceau (généralement la terre). Ce système simple est appelé système "monogap" en référence à l'unique espacement entre les deux électrodes.

Le système d'extraction peut être complété en ajoutant une série d'électrodes entre l'électrode plasma et l'électrode de masse, le système devient alors "multigap". En jouant sur les potentiels des électrodes intermédiaires, il est possible d'accélérer ou de décélérer le faisceau, variant alors sa focalisation. Un paramètre de réglage supplémentaire peut être ajouté, permettant la variation de l'espacement des électrodes.

Le système d'extraction de la source Mono1000 est de type "multigap" de quatre électrodes comprenant deux électrodes intermédiaires amovibles. Il a été conçu par R. Maisonny[90] en collaboration avec le groupe source du GANIL. La Figure 2.19 montre une coupe du dispositif, on peut y remarquer les électrodes amovibles comprises entre les électrodes de masse et plasma.

En sortie du dispositif d'extraction, le faisceau d'ions entre dans une lentille d'insel. Cette lentille électrostatique permet de focaliser le faisceau afin de pénétrer le plus parallèlement possible dans le filtre de Wien (décrit dans le paragraphe suivant). Il s'agit de trois électrodes tubulaires, un potentiel est

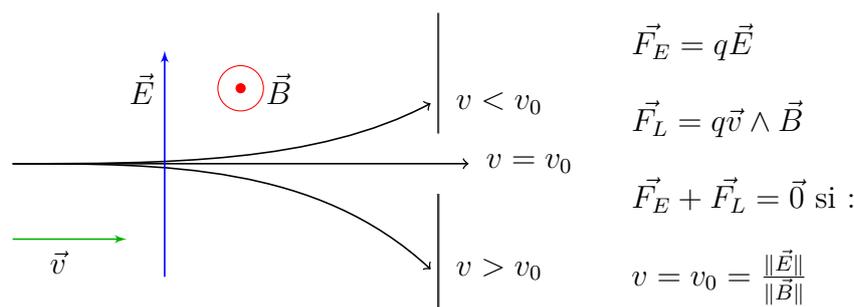


FIGURE 2.20 – Principe de fonctionnement du filtre de Wien

appliqué sur l'électrode centrale, les électrodes extérieures restant à la masse. Les lignes de champ électrique créées à l'interface entre des électrodes voisines dévient localement les ions, influant alors sur la forme de faisceau.

### 2.3.3.c Filtre de Wien

Le faisceau d'ions en sortie d'extraction contient l'élément désiré ainsi que les polluants présents dans le plasma. Ces polluants sont généralement des ions composés d'oxygène et d'azote présents dans le vide résiduel. Afin d'être purifié, le faisceau passe dans un spectromètre de masse. Pour l'analyse des faisceaux d'ions, les spectromètres de masse sont principalement formés d'un dipôle magnétique. Ces dipôles étant trop encombrants sur la ligne de faisceau, ils sont remplacés par un filtre de Wien de moins bonne résolution mais plus compact.

Le filtre de Wien consiste en la superposition d'un champ électrique  $\vec{E}$  et magnétique  $\vec{B}$  orthogonaux (figure 2.20). Lorsqu'un ion de vitesse  $v$  arrive perpendiculairement aux deux champs, il subit la force électrostatique  $F_E$  et la force de Lorentz  $F_L$ . Il existe alors une vitesse  $v_0$ , telle que les deux forces se compensent, la trajectoire de l'ion étant alors rectiligne. Pour des vitesses différentes de  $v_0$  les ions sont déviés, un diaphragme en sortie de filtre stoppe leur progression. Le filtre de Wien est donc, à strictement parler, un analyseur en vitesse. Les ions produits par la source étant accélérés à l'aide d'un même champ électrique d'extraction, leurs vitesses varient alors en fonction de la racine carrée de leur masse, ce qui permet leur séparation. On peut donc noter que ce type d'analyseur est plus efficace pour l'analyse de faible masse.

Le filtre de Wien de la ligne de faisceau intense est un dispositif commercial de la société Peabody Scientific. Il est composé de deux aimants permanents formant un champ magnétique d'intensité 2000 Gauss. Le faisceau est analysé en variant le champ électrique généré par deux électrodes. Pour cela un potentiel symétriquement opposé est appliqué sur chacune d'elle de sorte que le

potentiel au centre du dispositif soit le même que le reste de la ligne. La sortie du filtre de Wien comporte un diaphragme formé par un iris réglable permettant d'ajuster le diamètre de sortie. Derrière la sortie se trouve une coupelle de Faraday escamotable qui permet la mesure de l'intensité du faisceau en sortie. Celle-ci est reliée à la terre par une résistance, le courant des ions est alors déterminé à partir de la tension à ses bornes.

### 2.3.3.d Démarrage de la ligne

Notre rôle dans le développement de la ligne de faisceau intense a consisté en la gestion de la fin du projet et la production de premiers faisceaux d'ions. Nous avons coordonné, en simultané, les tâches suivantes : la fin du montage mécanique, la conception et la réalisation du montage électrique (coffret et installation haute tension), ainsi que la finalisation du contrôle commande. A la fin du montage, un ensemble de certifications (électrique, sécurité et radioprotection) a validé l'installation.

Suite à la production de premiers faisceaux, nous avons commencé la caractérisation de la ligne afin d'en obtenir les meilleurs réglages. Les paragraphes suivants décrivent les différents problèmes rencontrés ainsi que, le cas échéant, leurs solutions. Notre démarche a été de régler les différents paramètres de la ligne en partant de la source vers le dispositif PULSAR.

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés au fonctionnement de la source ECR. Les paramètres de réglage de la source sont l'injection de gaz et la puissance de l'onde haute fréquence. Concernant l'injection de gaz, la vanne microfuite (Figure 2.18) n'était pas assez stable, causant à son tour une instabilité du plasma, a été remplacée par un modèle plus stable. Concernant l'onde haute fréquence, celle-ci est transportée vers la source via un guide d'onde et se couple alors avec le plasma, augmentant sa température. Suivant les paramètres du plasma, une partie de l'onde peut être réfléchi et retourner vers l'émetteur, ceci pouvant alors l'endommager. La puissance réfléchi maximale étant de 40 W nous avons, en conséquence, limité la puissance injectée. Il est cependant possible d'améliorer le couplage de l'onde en réglant sa phase, ce qui permet alors d'obtenir de meilleures performances. C'est dans ce but qu'un système d'accord de phase a été commandé et sera installé lors des expériences de faisceaux croisés PIBALE.

Après les réglages de la source, nous nous sommes penchés sur l'extraction. Nous avons tout d'abord constaté des problèmes de décharges plasma au niveau des électrodes dues à un trop faible espacement entre les pièces sous tension, les champs électriques créés permettent l'ionisation du gaz résiduel. Afin de limiter ces décharges et d'éviter d'éventuels claquages néfastes aux alimentations électriques, nous limitons la tension d'accélération et la différence de potentiel

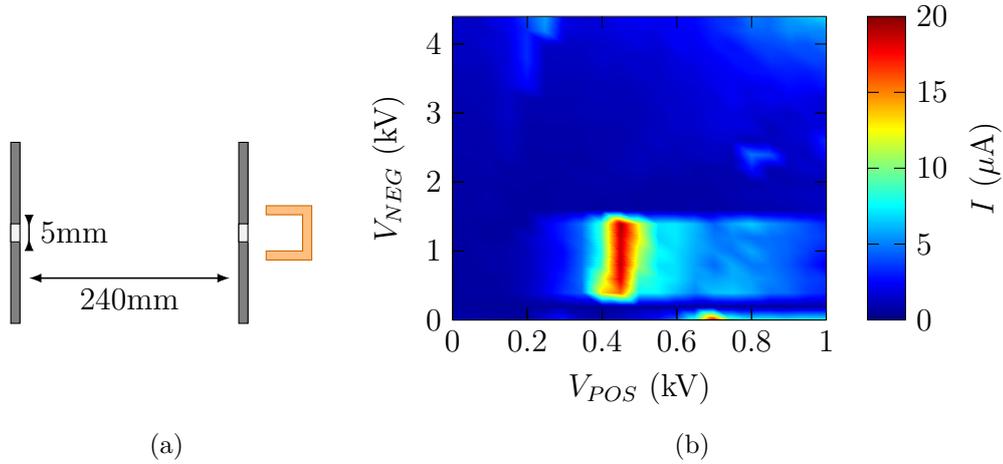


FIGURE 2.21 – Réglage des électrodes d'extraction : (a) schéma de la coupelle de faraday munie d'un système de définition d'émission. (b) Intensité d'un faisceau de  $\text{He}^+$  à 5 keV lors du balayage des potentiels d'extraction.

entre deux électrodes à 10 kV.

Afin de définir les paramètres de réglage pour l'obtention d'un faisceau parallèle en entrée du filtre de Wien(2.22(a)), nous avons installé une cage de Faraday munie de collimateurs (Figure 2.21(a)) définissant une émission parallèle (divergence 21 mrad). En balayant les alimentations électriques, des points de fonctionnement peuvent être déterminés (Figure 2.21(b)). Ces données ont alors servi au réglage du filtre de Wien.

Une fois le faisceau réglé de façon parallèle nous avons pu l'analyser à l'aide du filtre de Wien. La Figure 2.23(a) montre un exemple de spectre d'un faisceau de krypton : on peut y voir le pic de l'ion  $\text{Kr}^+$  ainsi que celui des polluants. Après plusieurs utilisations les polluants ont peu à peu disparu, ce qui a permis la production de faisceaux  $\text{Ne}^+$ . En analysant les données de spectres de différents faisceaux on peut comparer les champs électriques du filtre de Wien avec la vitesse des ions (2.22(b)). On obtient alors la relation de proportionnalité précédemment énoncée (paragraphe 2.20).

Afin de remédier à une légère divergence du faisceau mesurée nous avons placé une seconde lentille d'insel derrière le diaphragme. Les faisceaux obtenus ont alors eu une intensité suffisante pour envisager la connexion avec le dispositif PULSAR.

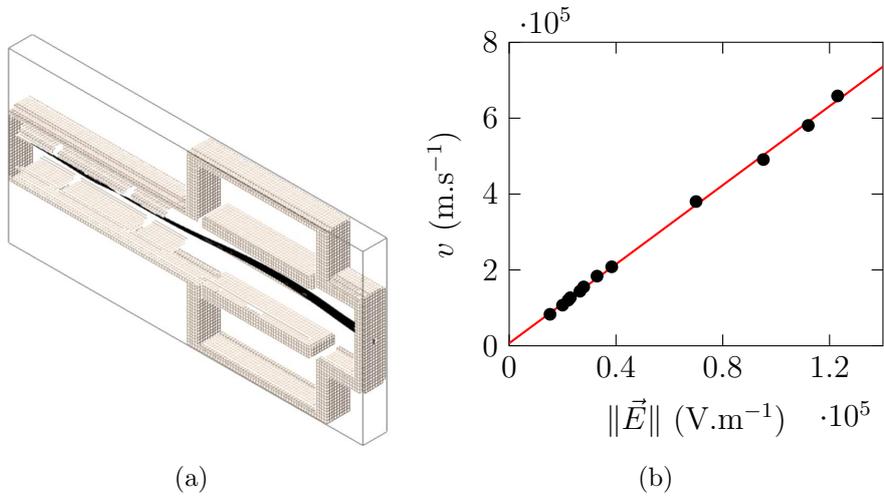


FIGURE 2.22 – (a) Résultat d’une simulation du filtre de Wien et de la lentille d’insel à l’aide du logiciel Simion. (b) Calibration du filtre de Wien : ● mesures expérimentales, — régression linéaire des données.

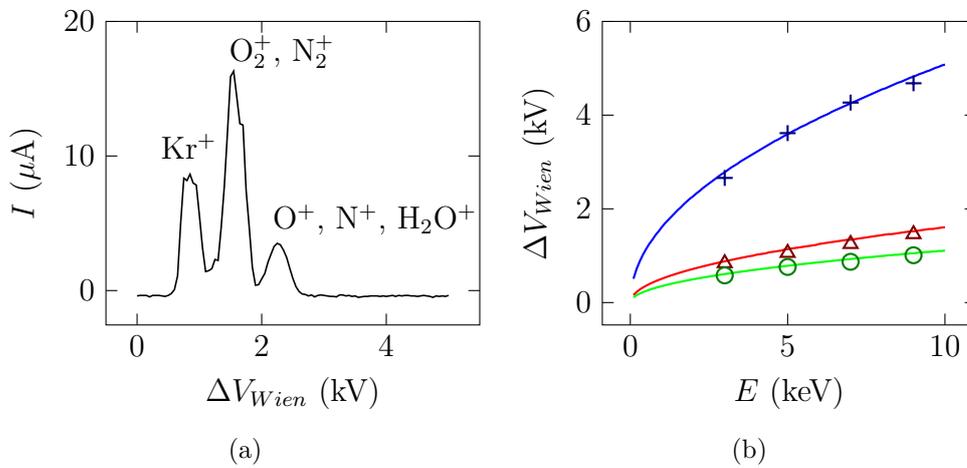


FIGURE 2.23 – Caractéristiques du filtre de Wien : (a) Spectre de masse pour un faisceau de  $\text{Kr}^+$  à 7 keV mesuré au niveau de la cage de Faraday. (b) Réglage théorique et expérimental du filtre de Wien en fonction de l’ion et de son énergie :  $\text{He}^+$  (théorie —, exp. +),  $\text{Ar}^+$  (théorie —, exp.  $\Delta$ ),  $\text{Kr}^+$  (théorie —, exp.  $\circ$ ).

TABLEAU 2.1 – Intensité délivrée par la ligne de faisceau intense

Ion	E = 3 keV	E = 5 keV	E = 7 keV	E = 9 keV
He <sup>+</sup>	1.56	1.09	5.76	0.95
Ne <sup>+</sup>	1.44	2.63	8.25	3.18
Ar <sup>+</sup>	1.26	1.80	5.84	0.87
Kr <sup>+</sup>	1.36	2.70	4.68	1.08
Xe <sup>+</sup>	1.24	1.36	4.66	2.06

Intensité en  $\mu\text{A}$  du faisceau d'ion sur la cible du dispositif PULSAR après soustraction des électrons secondaires.

### 2.3.3.e Raccordement au dispositif PULSAR

Après l'alignement des dispositifs, la ligne de faisceau intense et le dispositif PULSAR ont été reliés par un soufflet. Un collimateur tubulaire assure le passage de faisceau entre les dispositifs tout en gardant la qualité du vide présent dans l'enceinte de PULSAR. Les premières mesures d'intensité de faisceau sur la coupelle de Faraday de PULSAR ont mis en évidence la difficulté à transporter le faisceau jusqu'à la cible (perte de la quasi-totalité du faisceau). Nous avons remédié à cela en raccourcissant la ligne par le retrait de la vanne d'isolement et la chambre contenant la coupelle de Faraday de la ligne (partie à droite du diaphragme sur le schéma de la Figure 2.18).

La suppression de la vanne a eu pour conséquence une augmentation de la pression au sein de PULSAR rendant impossible la réalisation d'expériences de pulvérisation de matériaux carbonés. Nous limitons donc l'utilisation de la ligne de faisceau à l'étude de la pulvérisation de cible tungstène.

Le tableau 2.1 présente les intensités des différents faisceaux d'ions obtenues. On peut remarquer que l'intensité augmente avec l'énergie de l'ion, cette tendance était attendue, le transport des ions étant plus facile à haute énergie. On peut néanmoins constater que l'intensité chute pour les faisceaux d'énergie 9 keV. Ceci est dû au problème de décharge électrique cité précédemment, la forte tension appliquée sur la source ne nous permet pas d'appliquer des tensions suffisantes sur les électrodes d'extraction.



## CHAPITRE

### 3

# ANALYSE DES COLLECTEURS PAR SPECTROSCOPIE AUGER

## 3.1 Principe de la spectroscopie des électrons Auger

La spectroscopie des électrons Auger (*Auger electron spectroscopy*, AES) consiste en l'analyse des électrons, primaires et secondaires, émis par la surface lors d'une irradiation à l'aide d'un faisceau électronique primaire. Cette méthode, sondant uniquement les premiers nanomètres des matériaux, est la méthode d'analyse de surfaces par excellence.

Un spectre des électrons Auger est schématisé, sur la Figure 3.1, les différentes surfaces sous la courbe représentent la contribution d'électrons provenant de différents processus d'émissions (Figure 3.2). Un grand nombre d'électrons provient de la cascade de collisions produite par les électrons sondes (ou électrons primaires), leur énergie est faible mais suffisante pour s'échapper de la surface.

À une énergie élevée on retrouve les électrons sondes rétrodiffusés sous différentes formes : les électrons n'ayant subi que des chocs élastiques, qui ont, de ce fait, la même énergie qu'à leur entrée dans le matériau, les électrons primaires peuvent aussi échanger une quantité d'énergie définie avec les plasmons de surface. Sur le spectre Auger, cela se traduit par l'apparition de pics voisins du pic des électrons élastiques, l'écart entre eux étant alors un multiple de l'énergie

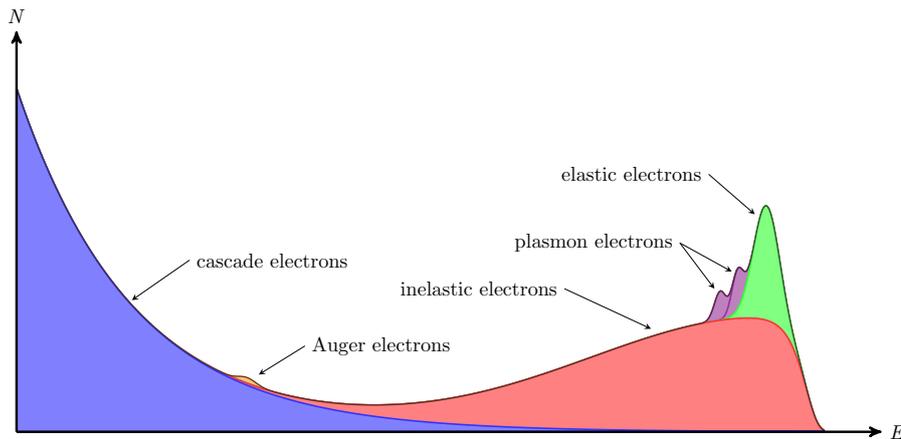


FIGURE 3.1 – Nombre d'électrons  $N$  en fonction de leurs énergies  $E$

échangée. Les électrons sondes peuvent enfin ressortir de la surface après une ou plusieurs collisions inélastiques, leur énergie varie entre l'énergie des électrons sondes et celle de sortie de surface.

Le spectre Auger comporte également des pics de faible intensité et d'énergie propres au matériau irradié. Les électrons, appelés électrons Auger, proviennent de la désexcitation des atomes ionisés par le passage des électrons primaires. Les électrons Auger s'échappent de la surface par des mécanismes identiques à ceux des électrons primaires, par chocs élastiques, inélastiques et par interaction avec les plasmons de surface. Cependant la faible intensité des pics Auger rend rarement ces deux derniers phénomènes observables.

Dans les sections suivantes nous poserons les bases théoriques de l'émission des électrons Auger, ceci dans le but d'avoir le bagage nécessaire à la compréhension de l'analyse quantitative par spectroscopie Auger.

### 3.1.1 Émission Auger d'un atome isolé

On peut distinguer l'émission Auger provenant d'un atome isolé de celle d'un atome au sein d'une matrice atomique. Bien que notre étude porte sur cette dernière, des précisions doivent être apportées sur l'émission Auger d'atomes en phase gaz.

L'électron Auger correspond à un électron émis lors de la désexcitation d'un atome. Ce type d'électron a été observé en 1922 par L. Meitner, puis étudié par P. Auger en 1925 qui expliqua l'origine du phénomène.

Dans un atome isolé excité où l'une des couches électroniques internes serait inoccupée, un phénomène de recombinaison par un électron des couches externes s'effectue rapidement (entre  $10^{-17}$ s et  $10^{-12}$ s[91]). L'énergie est alors

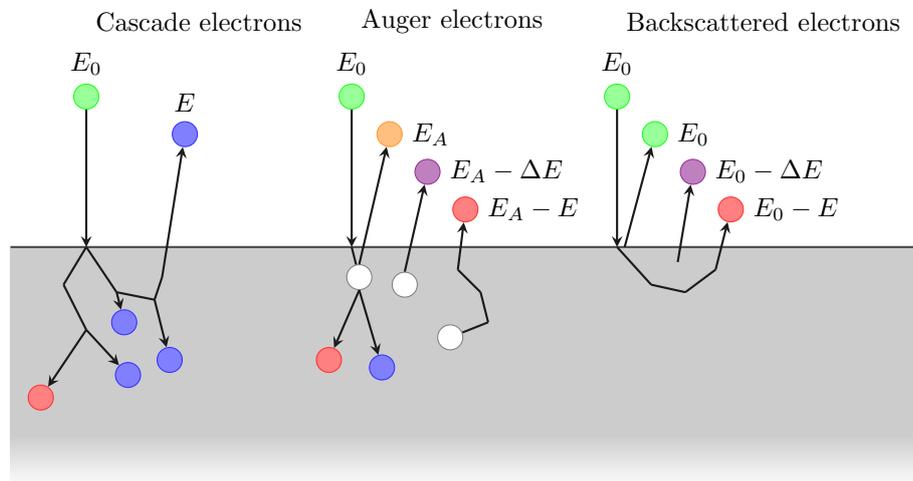


FIGURE 3.2 – Différents Processus d'émissions d'électrons de la surface

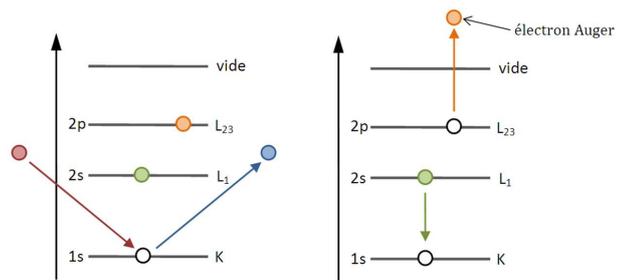


FIGURE 3.3 – Représentation schématique de l'émission Auger d'un atome isolé.

libérée sous forme radiative par l'émission d'un photon ou bien transférée à un électron de l'atome qui pourra alors être éjecté (Figure 3.3). Ce dernier constitue l'électron Auger, son énergie cinétique peut être déterminée à l'aide du bilan énergétique suivant :

$$E_{ijk} = E_i(Z) - E_j(Z) - E_k(Z + \Delta Z) \quad (3.1)$$

où  $E_{ijk}$  correspond à l'énergie de l'électron Auger émis,  $E_i(Z)$  et  $E_j(Z)$  correspondent respectivement aux niveaux d'énergies initiale et finale occupés par l'électron jouant un rôle lors de la désexcitation et  $E_k(Z + \Delta Z)$  correspond à l'énergie de liaison de l'électron Auger. L'électron Auger s'échappant d'un atome ionisé, l'énergie de sortie est plus élevée que dans un atome neutre. Cette variation est introduite en ajoutant un terme  $\Delta Z$  à la charge initiale du noyau  $Z$ , compris entre 0.5 et 1 en fonction de l'élément étudié[92].

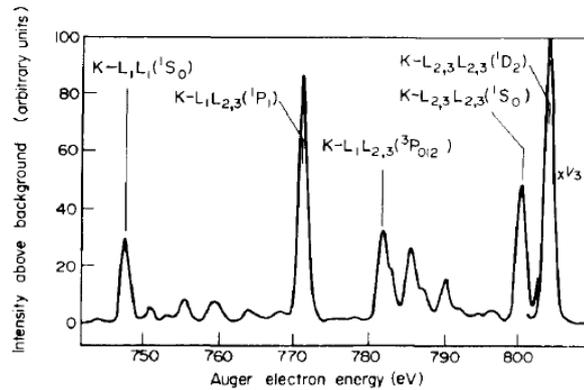
Afin de nommer une transition Auger, l'utilisation de la notation relative aux émissions de rayon X est communément employée. Ainsi pour un électron émis d'un niveau d'énergie  $k$ , suite à la relaxation d'un électron de niveau  $j$  vers le niveau  $i$ , la transition est notée transition  $IJK$ , avec  $I$ ,  $J$  et  $K$  prenant pour valeur  $K$ ,  $L$ ,  $M$ , etc. Bien que rarement utilisée, la provenance des sous couches électroniques peut être indiquée en ajoutant un indice à la notation. Le tableau 3.1 développe les premiers indices de la notation.

TABLEAU 3.1 – Système de notation des transitions Auger

$n$	$l$	$s$	$j$	notation
1	0	-1/2, +1/2	1/2	K
2	0	-1/2, +1/2	1/2	L <sub>1</sub>
2	1	-1/2	1/2	L <sub>2</sub>
2	1	+1/2	3/2	L <sub>3</sub>
3	0	-1/2, +1/2	1/2	M <sub>1</sub>
3	1	-1/2	1/2	M <sub>2</sub>
3	1	+1/2	3/2	M <sub>3</sub>
3	2	-1/2	3/2	M <sub>4</sub>
3	2	+1/2	5/2	M <sub>5</sub>
				etc.

$n$  : le nombre quantique principal,  
 $l$  : le nombre quantique secondaire,  
 $s$  : le nombre de spin,  
 $j$  : le moment angulaire total ( $j = l + s$ )

Une transition Auger particulière est appelée transition Coster-Kronig. Il s'agit d'une transition mettant en jeu des niveaux d'énergie  $i$  et  $j$  provenant de

FIGURE 3.4 – Spectre des électrons Auger  $KLL$  du néon[91].

la même couche. Cette transition est notamment intense pour les transitions de type  $I = J = L$  et  $I = J = M$ [93].

La Figure 3.4 montre différentes émissions d'électrons Auger de la transition  $KLL$  du néon. Les différents pics correspondent à des ionisations différentes des sous couches  $L$ . Nous pouvons donc différencier trois de ces pics :  $K-L_1L_1$ ,  $K-L_1L_{2,3}$  et  $K-L_{2,3}L_{2,3}$ . On remarque aussi des pics satellites moins intenses correspondant aux transitions Auger provenant d'atomes doublement et triplement ionisés. On peut également remarquer la différence d'intensité entre les différents pics Auger. Ces différences entre les pics sont liées à la probabilité d'émission des électrons Auger, celle-ci dépend de plusieurs paramètres.

Tout d'abord cette probabilité résulte de la capacité de l'élément étudié à émettre un électron Auger au lieu d'un photon  $X$ . Cette tendance dépend du numéro atomique de l'élément, les éléments légers étant plus susceptibles de relaxer sous forme non radiative. La probabilité d'émission d'électron Auger pour les couches  $K$  et  $L$  en fonction du numéro atomique est présentée en Figure 3.5. Les énergies d'ionisation y sont également représentées.

La probabilité d'émission d'électrons Auger est également dépendante de l'efficacité d'ionisation de l'élément. Ainsi pour le cas de la spectroscopie Auger où l'ionisation s'obtient à l'aide d'un faisceau électronique, cette probabilité dépend de l'énergie des électrons. La Figure 3.6 montre l'évolution de la section efficace d'ionisation d'un atome pour un niveau d'énergie  $E_W$  en fonction de l'énergie du faisceau primaire  $E_0$ . On peut remarquer le maximum d'ionisation pour un rapport  $E_0/E_W$  compris entre 2 et 3.

Si l'on combine les informations précédentes, à savoir la probabilité de créer une lacune sur une couche donnée à l'aide d'un faisceau primaire déterminé et la probabilité que la recombinaison se traduise par l'émission d'un électron Auger, il devient alors possible de déterminer la probabilité d'émission Auger.

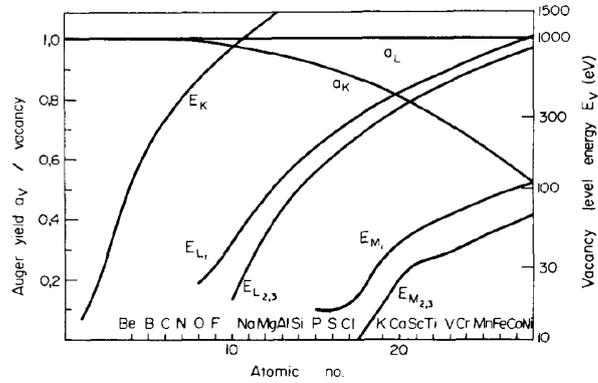


FIGURE 3.5 – Energie de liaison  $E_K$ ,  $E_{L_{1,2,3}}$ ,  $E_{M_{1,2,3}}$  et probabilité d'émission Auger  $a_K$ ,  $a_L$  en fonction de  $Z$ [91].

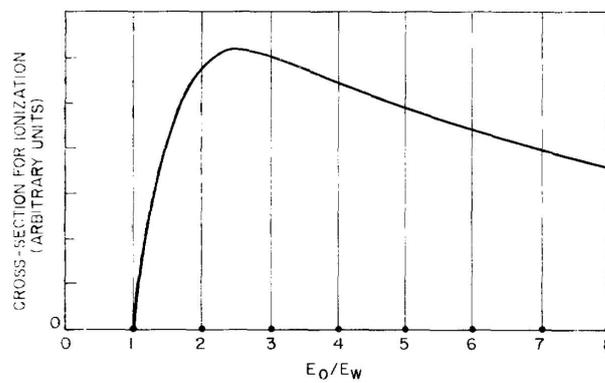
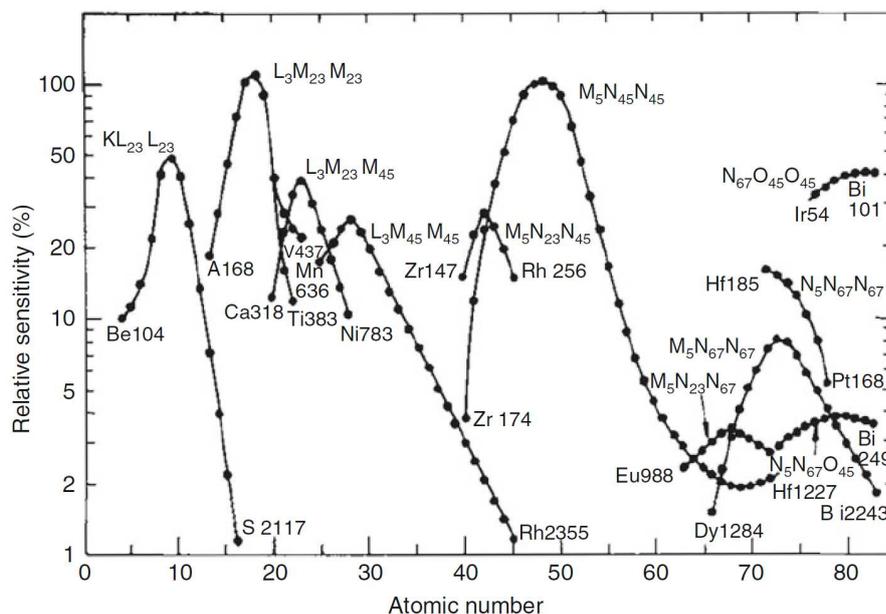


FIGURE 3.6 – Evolution de la section efficace d'ionisation en fonction de l'énergie du faisceau primaire[93].

FIGURE 3.7 – Probabilité relative d'émission Auger en fonction de  $Z$ [79]

La Figure 3.7 représente cette probabilité en fonction du nombre atomique pour un faisceau primaire d'énergie 5 keV.

### 3.1.2 Émission Auger d'un atome dans un matériau

L'émission d'électrons Auger provenant d'atomes à l'état solide ou sous forme de molécule est très similaire à celui d'un atome isolé. On peut cependant noter quelques changements dans l'énergie et la probabilité d'émission des transitions Auger, de nouvelles transitions peuvent aussi apparaître.

À la différence d'un atome isolé, les niveaux d'énergies électroniques d'un atome dans un cristal peuvent se présenter sous forme de bande continue. Ainsi il existe une multitude de transitions Auger à partir de ces continums, leur probabilité dépendant du peuplement de la bande. La Figure 3.8(a) montre la transition d'un électron de valence vers un niveau d'énergie de la bande  $L$  induisant l'émission d'un électron de valence. La Figure 3.8(b) montre la forme du pic correspondant à cette transition, celle-ci est dénommée transition  $LVV$ , la lettre  $V$  permettant de nommer la bande de valence.

Les niveaux d'énergie d'un atome peuvent également varier avec son environnement chimique. Les niveaux d'énergie sont modifiés par les atomes voisins, ce qui change l'énergie d'apparition du pic ainsi que son intensité. La Figure 3.9 montre le décalage en énergie de la transition  $Sb_{MNN}$  en fonction de la présence

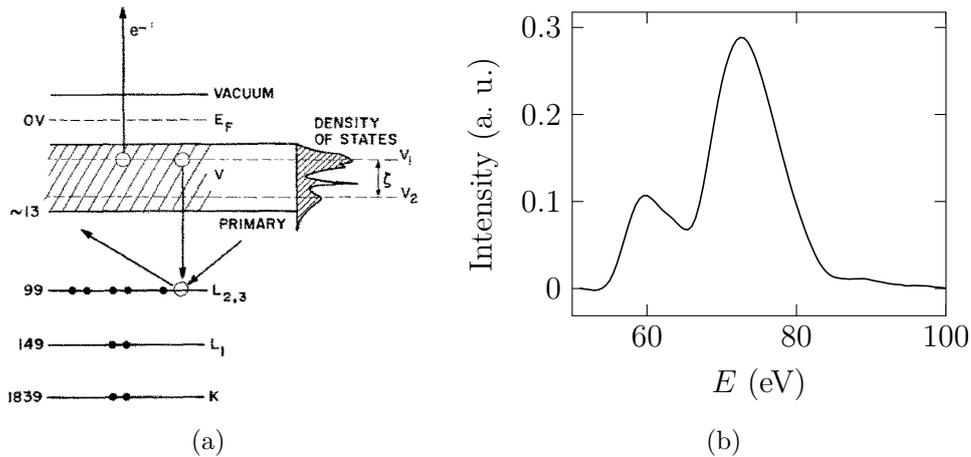


FIGURE 3.8 – (a) Emission Auger  $L_{2,3}VV$  du silicium[93]. (b) Double pic  $Si_{L_{2,3}VV}$  émis depuis une matrice de  $SiO_2$

d'oxygène sous différentes formes (implanté ou sous forme d'oxyde). Ce phénomène peut causer de graves difficultés lors de l'analyse quantitative; l'intensité des électrons Auger ne pouvant plus être uniquement attribuée à une concentration d'éléments.

La forme et l'orientation cristalline du solide peuvent parallèlement avoir une influence sur l'intensité du courant Auger. Les électrons primaires incidents subissent des effets de canalisation qui leur permettent de pénétrer plus ou moins loin dans la matière. L'ionisation des atomes s'en trouve de ce fait modifiée. De leur côté, les électrons Auger peuvent subir une diffraction qui oriente leur angles de sortie. Si le détecteur utilisé ne couvre pas la majorité de l'angle solide d'émission Auger, ce changement d'angle aura des répercussions sur la détection.

## 3.2 Analyse quantitative d'un dépôt de matière

L'étude des spectres Auger peut permettre des mesures quantitatives, l'analyse de la concentration d'éléments présents dans un matériau est l'une des techniques d'analyse couramment employée. Dans ce travail, nous mesurons la quantité de matière déposée sur un substrat qui constitue le collecteur. Nous devons alors émettre différentes hypothèses relatives aux caractéristiques du dépôt collecté.

La matière collectée peut être considérée comme une couche condensat d'élé-

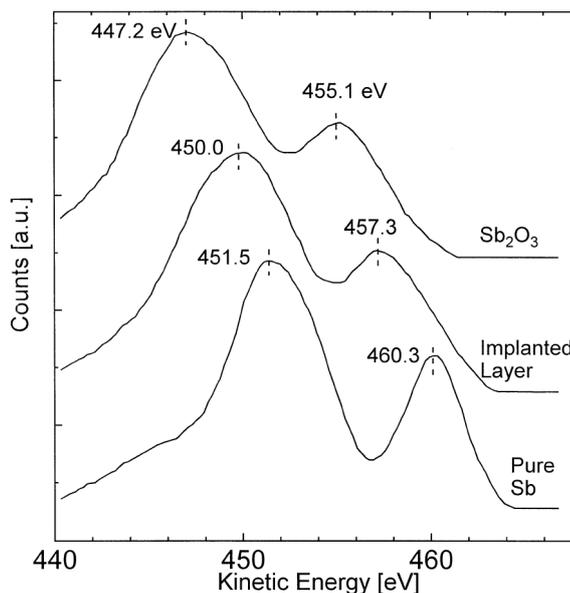


FIGURE 3.9 – Effet de l’environnement chimique sur la transition  $MN$  du Sb[94]

ment  $A$  présent sur un substrat d’élément  $B$ . La frontière entre les deux éléments est considérée comme nette ; les phénomènes d’interdiffusion sont alors considérés comme négligeables. Nous employons des modèles considérant les couches déposées comme lisses et uniformes. Ces modèles ne sont donc pas adaptés pour les croissances de couche de type Volmer-Weber ou Stranski-Kratanov[95, 96]. Ils semblent cependant bien adaptés à nos différentes expériences (voir les sections 3.4 et 3.5 sur la calibration des différents éléments étudiés).

La série de modèles théoriques présentés ci-dessous correspond à une description progressive des phénomènes de transport des électrons dans un matériau hétérogène. Le point de départ de la construction d’un modèle approprié à notre étude est le modèle de Gallon[97]. Celui-ci est implémenté afin d’inclure des phénomènes jouant un rôle significatif. Les différents modèles utilisent les principes de libre parcours moyen inélastique, de longueur effective d’atténuation et de coefficient correctif de rétrodiffusion qu’il convient de formuler préalablement.

### 3.2.1 Parcours des électrons dans la matière

Avant de s’échapper de la surface d’un matériau, un électron de type Auger ou élastique peut subir un certain nombre de collisions. Lorsque ces collisions sont inélastiques, l’électron transfère une partie de son énergie au milieu, son énergie cinétique diminue. Si cette énergie est caractéristique, l’électron devient

alors indiscernable parmi les nombreux électrons de cascades, il devient alors difficile de déterminer l'origine d'un électron ayant subi un choc inélastique. La plupart des analyses Auger ne prennent donc en compte que les électrons ayant conservé leur énergie initiale.

Si le matériau est amorphe ou fortement polycristallin, les phénomènes de diffraction et de canalisation sont négligeables. Il est alors possible d'établir une analogie entre le comportement des électrons Auger et l'absorption optique décrite par la loi Beer-Lambert. Une population d'électrons traversant un matériau subit une "absorption" liée aux collisions inélastiques le long de son parcours. Celles-ci apparaissent de façon aléatoire avec une probabilité liée au milieu traversé, la population décroît alors selon l'équation :

$$I(x) = I_0 \exp(-x/\alpha) \quad (3.2)$$

avec  $I_0$  et  $I(x)$  l'intensité de la population à l'origine et à une distance  $x$  parcourue,  $\alpha$  étant un terme caractérisant la décroissance de la population dans le milieu.

Dans un premier temps, la communauté scientifique étudiant la propagation des électrons dans la matière a identifié ce terme comme la distance moyenne à laquelle intervient une collision inélastique. Cette grandeur est nommée "libre parcours moyen inélastique" (*inelastic mean free path*, imfp) et varie en fonction du matériau parcouru et de l'énergie des électrons. La Figure 3.10(a) montre l'évolution de l'imfp des électrons en fonction de leur énergie, la dispersion des points traduit l'influence du matériau. Seah et Dench [98] ont compilé les valeurs d'imfp pour différents matériaux et on proposé une courbe universelle dont l'expression est :

$$\lambda = AE^{-2} + BE^{1/2} \quad (3.3)$$

avec  $\lambda$  l'imfp exprimé en nm,  $E$  l'énergie de l'électron en eV,  $A$  et  $B$  des paramètres empiriques. Pour les matériaux composés d'un élément unique, les constantes sont :  $A = 641$  et  $B = 0.096$ . Cette fonction ne permet cependant qu'une estimation fiable à 50%[99], pour une meilleure précision, d'autres modèles existent, tels que le modèle de Tamuna[100] ou encore celui de Gries[101].

La distance parcourue par un électron Auger entre son émission et la surface varie en fonction de son angle d'émission  $\theta$  (Figure 3.10(b)). On définit la profondeur moyenne d'évasion (*Mean Escape Depth*,  $\lambda_{MED}$ ) comme la profondeur moyenne à laquelle il se produira une collision inélastique. Cette distance dépend de  $\theta$  et est exprimée par l'équation :

$$\lambda_{MED} = \lambda \cos \theta \quad (3.4)$$

Les détecteurs d'électrons ont un angle solide de détection défini, l'équation 3.4 doit être intégrée afin de tenir compte de leurs caractéristiques.

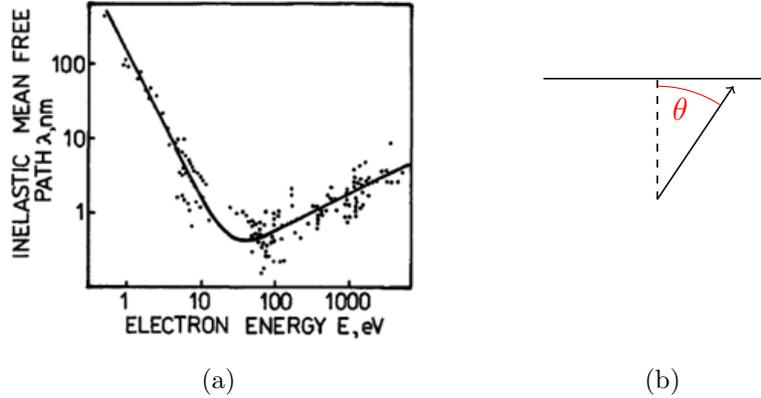


FIGURE 3.10 – (a) Courbe universelle du libre parcours moyen[98]. (b) Angle  $\theta$  d'émission.

L'utilisation du libre parcours moyen inélastique néglige l'effet des collisions élastiques, le parcours des électrons est alors supposé linéaire. Les électrons ayant un transport erratique dans la matière, cette hypothèse n'est cependant pas vérifiée. Pour une distance effective linéaire traversée dans un matériau, un électron parcourt une distance légèrement plus longue. On définit la longueur d'atténuation (*Attenuation Length*,  $\lambda_{AL}$ ) comme la longueur linéaire moyenne à laquelle intervient une collision inélastique, prenant en compte la diffusion des électrons, on peut souligner le fait que, par définition,  $\lambda_{AL} < \lambda$ . De nombreuses publications font l'amalgame entre  $\lambda_{in}$  et longueur d'atténuation notamment lors de déterminations expérimentales de ces grandeurs[79].

La prise en compte des collisions élastiques rend invalide l'équation 3.4. Powel et Jablonski[102] proposent les relations empiriques suivantes :

$$\lambda_{AL} = \lambda (1 - A\omega) \quad (3.5)$$

$$\lambda_{MED} = \lambda_{AL} \cos \theta \quad (3.6)$$

avec  $A$  et  $\omega$  des facteurs dépendant respectivement de l'angle d'émission et du matériau. Ces relations restent valables uniquement pour des angles inférieurs à  $60^\circ$ .

Afin de simplifier les calculs, Powel et Jablonski[103] ont introduit le terme de longueur effective d'atténuation (*Effective Attenuation Length*, EAL) qui prend en compte les collisions élastiques ainsi que l'angle d'émission. Pour des angles d'émission compris entre  $0^\circ$  et  $65^\circ$ [104], l'EAL peut être considérée comme constante, ce qui facilite les calculs de prise en compte d'angles solides des détecteurs.

Avant Powel et Jablonski, Seah[105] a constaté une relation linéaire entre l'imfp et l'EAL (bien que non définie en ce terme), celle-ci est donnée par :

$$\Lambda = k\lambda \quad (3.7)$$

avec  $\Lambda$  la longueur effective d'atténuation et  $k$  un coefficient dépendant de la géométrie du détecteur et de la configuration expérimentale. Pour notre détecteur (décrit en section 3.3), il a été expérimentalement déterminé que  $k = 0.74$ . Notons que pour les matériaux ayant un fort pouvoir de diffusion élastique des électrons, il est préférable d'utiliser la base de données théoriques NIST EAL [106].

### 3.2.2 Modèles théoriques

Un premier modèle simple a été présenté par Gallon en 1969[97], il permet de décrire l'évolution des courants d'électrons Auger émis par le condensat  $A$  et le substrat  $B$  en fonction de l'épaisseur de la couche  $d$ .

Dans un matériau  $M$ , d'épaisseur  $l$ , irradié par un faisceau d'électrons sonde, une partie des atomes est ionisée et se désexcite par l'émission d'électrons Auger. L'intensité du faisceau sonde est supposée constante le long de son parcours, l'émission d'Auger est donc la même sur toute la profondeur du matériau. Soit la profondeur  $x$  d'où sont émis des électrons Auger, leur courant mesuré  $dI$  de cette portion de profondeur  $dx$  émis à la surface est alors défini par :

$$dI = A_{E_0} I_0 \exp(-x/\Lambda_{M,E}) dx \quad (3.8)$$

avec  $I_0$  le courant du faisceau sonde,  $A_{E_0}$  la probabilité d'ionisation et d'émission d'un électron Auger pour un électron primaire d'énergie  $E_0$ , et  $\Lambda_{M,E}$  l'EAL d'un électron d'énergie  $E$  dans le matériau  $M$ . En intégrant sur toute la profondeur, on obtient le courant Auger total émis par la surface :

$$I_l = \int_0^l A_{E_0} I_0 \exp(-x/\Lambda_{M,E}) dx \quad (3.9)$$

Pour le condensat  $A$ ,  $l = d$ . Le courant Auger mesuré  $I_A$  est alors :

$$I_A = k_A I_0 [1 - \exp(-d/\Lambda_{A,E})] \quad (3.10)$$

avec la constante  $k_A$  comprenant  $A$ ,  $\Lambda_{A,E}$  et  $I_0$  mais aussi l'efficacité du détecteur.

Pour le substrat  $B$ ,  $l = \infty$ . D'après l'équation 3.9, le courant à la sortie du matériau  $B$  vaut  $A\Lambda_{B,E}I_0$ . Il est alors atténué par le passage dans la couche de condensat, on obtient :

$$I_B = k_B I_0 \exp(-d/\Lambda_{A,E}) \quad (3.11)$$

avec  $k_B$  l'équivalent de  $k_A$  pour les électrons Auger émis par le matériau  $B$ . Ce modèle est approprié pour l'étude de couches relativement minces. Les matériaux présents doivent également avoir des coefficients de rétrodiffusion des électrons primaires proches[105]. Dans le cas contraire, une correction doit être prise en compte.

En effet, lorsqu'un matériau massif est irradié par un faisceau primaire, les atomes se trouvent ionisés par les électrons incidents ainsi que ceux rétrodiffusés. Dans un matériau sous forme de couche mince, les électrons rétrodiffusés proviennent du substrat. Dans le cas où celui-ci a une probabilité de rétrodiffusion différente, la probabilité d'ionisation des atomes condensat se trouve modifiée et de ce fait la probabilité d'émission Auger est modifiée.

Pour prendre en compte ce phénomène, on introduit les termes  $r_A$  et  $r_B$ , les coefficients respectifs de rétrodiffusion des électrons primaires dans les matériaux  $A$  et  $B$ . L'évolution du courant Auger du matériau condensat peut alors s'exprimer de la façon suivante :

$$I_A = k_A I_0 \frac{1 + r_B}{1 + r_A} \left[ 1 - \exp\left(\frac{-d}{\Lambda_{A,E}}\right) \right] \quad (3.12)$$

Ce modèle théorique est uniquement valable pour des couches ne dépassant pas quelques mono-couches atomiques. Dans le cas contraire, les électrons rétrodiffusés par le substrat sont atténués par le matériau condensat. On introduit alors la longueur de décroissance moyenne de rétrodiffusion effective (*mean effective backscattering decay length*, MEBDL)[79], notée  $L$ . Ce terme peut aussi comprendre l'atténuation du faisceau sonde. L'équation 3.12 devient alors :

$$I_A = k_A I_0 \left[ 1 - \exp\left(\frac{-d}{\Lambda_{A,E}}\right) \right] \left\{ 1 + \left( \frac{1 + r_B}{1 + r_A} - 1 \right) \exp\left(\frac{-d}{L}\right) \right\} \quad (3.13)$$

La figure 3.11 montre des mesures de courant Auger d'un matériau condensat. Les courbes en pointillés et trait continu correspondent respectivement à la modélisation à l'aide des équations 3.10 et 3.13. On peut constater que ce dernier modèle est le mieux adapté pour décrire le comportement de matériaux lourds.

Il est aussi possible de décrire l'évolution de l'intensité du courant d'électrons élastiques. À la différence des électrons Auger, les électrons primaires sont rétrodiffusés à la fois par le matériau substrat et par le condensat. Le courant des électrons élastiques  $I_{PE}$  peut alors se diviser en deux contributions :

$$I_{PE} = I_{PE,A} + I_{PE,B} \quad (3.14)$$

avec  $I_{PE,A}$  et  $I_{PE,B}$  les contributions respectives du matériau  $A$  et  $B$ , pouvant être décrites à partir des modèles énoncés précédemment. La rétrodiffusion des

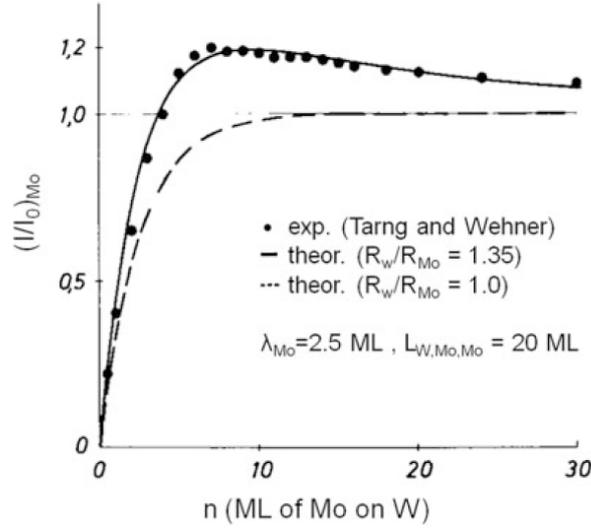


FIGURE 3.11 – Évolution du courant Auger  $Mo_{N\bar{V}V}$  d'une couche de Mo déposée sur W en fonction de son épaisseur exprimée en monocouche[107].

électrons sondes est en effet comparable à la production des électrons Auger. La probabilité de rétrodiffusion varie selon le matériau, la population d'électrons s'atténue de la même manière selon l'EAL. Les équations 3.10 et 3.11 deviennent alors :

$$I_{PE,A} = k_{EP} I_0 R_A (1 - \exp(-2d/\Lambda_{A,E})) \quad (3.15)$$

$$I_{PE,B} = k_{EP} I_0 R_B \exp(-2d/\Lambda_{A,E}) \quad (3.16)$$

avec  $R_A$  et  $R_B$  les probabilités de rétrodiffusion des électrons élastiques dans les matériaux massifs  $A$  et  $B$  et  $k_{EP}$  l'efficacité de détection. On peut noter la présence d'un facteur 2 correspondant à l'aller-retour des électrons dans la matière. L'équation 3.14 devient alors :

$$I_{PE} = k_{EP} I_0 [R_A + (R_B - R_A) \exp(-2d/\Lambda_{A,E})] \quad (3.17)$$

Les différents modèles cités permettent l'étude des cas considérés dans ce travail. Il est cependant possible d'affiner ces modèles, en effet la prise en compte du mécanisme de croissance de couche[79] ou encore les effets de matrice peuvent se révéler incontournables pour l'étude de certains matériaux. Ces modèles utilisent d'une part, des données intrinsèques aux matériaux étudiés et d'autre part des données liées au dispositif de mesure. Ces dernières nécessitent une connaissance approfondie du spectromètre et sont déterminées de façon empirique, ceci sera abordé dans les parties suivantes (sections 3.3, 3.4 et 3.5).

### 3.3 Fonctionnement du spectromètre Auger

Les spectromètres Auger sont constitués de deux éléments principaux : un canon à électrons et un analyseur en énergie d'électrons. L'analyseur est la partie primordiale du détecteur, il en existe de différentes géométries influençant sur la résolution en énergie, l'angle d'acceptance des électrons ou encore la surface de l'échantillon à étudier. La totalité des analyseurs utilise des champs électrostatiques afin de mesurer l'énergie des électrons[79]. On peut toutefois les classer en deux catégories : les premiers utilisant un champ électrostatique pour dévier les électrons et ceux utilisant un champ électrostatique pour les stopper.

Les premiers permettent de sélectionner, puis de détecter les électrons ayant une énergie précise. Le spectre des électrons émis ou rétrodiffusés de la surface est obtenu en balayant l'énergie de l'analyseur. Ces analyseurs à champ déviant sont les plus répandus, on peut citer : l'analyseur hémisphérique concentrique (*concentric hemispherical analyzer*) et l'analyseur à miroir cylindrique (*cylindrical mirror analyzer*).

La seconde catégorie d'analyseurs utilise un champ électrique colinéaire à la direction d'émission des électrons et sont appelés analyseurs à champ retardant (*retarding field analyzer*, RFA). Ces derniers agissent comme un passe-haut en énergie et nécessitent un traitement électronique pour obtenir un spectre Auger. La détection d'un grand nombre d'électrons induit un bruit important, ce qui restreint souvent ce type de détecteurs à une analyse qualitative[108]. Son grand angle d'acceptance présente cependant un avantage lors de l'étude des électrons rétrodiffusés[109].

Lors de nos expériences nous avons utilisé un spectromètre Auger avec un analyseur de type RFA. Il s'agit d'un modèle commercial du fournisseur Omicron (SpectraLEED). Le détecteur, présenté en Figure 3.12, dispose d'un écran phosphorescent permettant l'analyse de la diffraction des électrons lents (LEED), son angle d'acceptance est de  $102^\circ$ .

Le principe de fonctionnement de l'analyseur est schématisé en Figure 3.13. L'échantillon étudié est placé au centre de grilles semi-hémisphériques, généralement au nombre de quatre, permettant une amélioration de la résolution[110]. Les grilles centrales sont polarisées de sorte à former un champ électrique  $\vec{E}$  colinéaire à la trajectoire des électrons provenant de la surface de l'échantillon. Seuls les électrons d'énergie supérieure à  $q\|\vec{E}\|$  franchissent le champ électrique et sont détectés. Pour un potentiel de grilles  $E_C$  le signal détecté  $S(E_C)$  vaut :

$$S(E_C) = \int_{E_C}^{\infty} I(E)T(E)dE \quad (3.18)$$

avec  $I(E)$  le courant d'électrons d'énergie  $E$  et  $T(E)$  la fonction de transfert

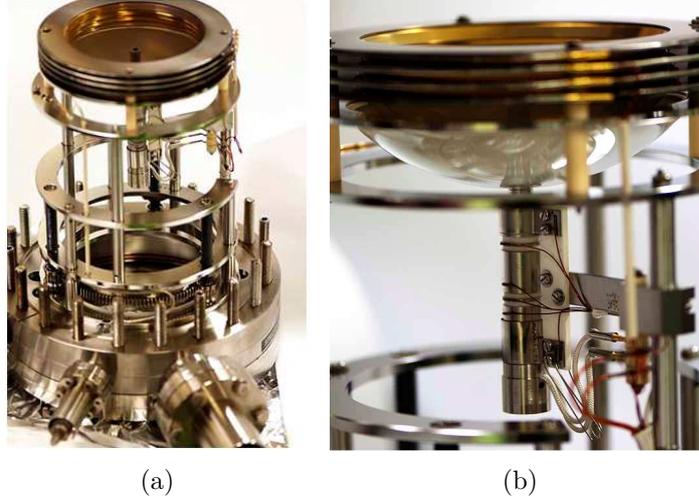


FIGURE 3.12 – LEED-Auger utilisé pour les mesures du collecteur : (a) vue d'ensemble, (b) canon à électrons et grilles hémisphériques.

du détecteur (généralement supposée constante sur le domaine de mesure[111]). En balayant  $E_C$  on obtient le spectre intégré des électrons émis par la surface. La mesure de nombreux électrons sur une grande gamme d'énergie rendrait ce spectre trop bruité pour être exploitable, pour remédier à cela le détecteur est muni d'un amplificateur à détection synchrone.

### 3.3.1 Analyseur à champ retardant

La Figure 3.14 schématise le principe de fonctionnement de la détection synchrone, une perturbation sinusoïdale est ajoutée au potentiel des grilles. Ce potentiel  $\tilde{E}_C$  devient alors :

$$\tilde{E}_C = E_C + \Delta\tilde{E}_C = E_C + k \sin(\omega t) \quad (3.19)$$

Si cette perturbation est suffisamment petite, l'équation 3.18 peut être développée selon une série de Taylor :

$$S(\tilde{E}_C) = S(E_C) + S'(E_C)\Delta\tilde{E}_C + \frac{1}{2}S''(E_C)(\Delta\tilde{E}_C)^2 + \dots \quad (3.20)$$

En regroupant les termes de même fréquence, on obtient :

$$S(\tilde{E}_C) = S(E_C) + k \left[ S'(E_C) + \frac{k^2}{8}S'''(E_C) + \dots \right] \sin(\omega t) - \frac{k^2}{4} \left[ S''(E_C) + \frac{k^2}{12}S''''(E_C) + \dots \right] \cos(2\omega t) + \dots \quad (3.21)$$

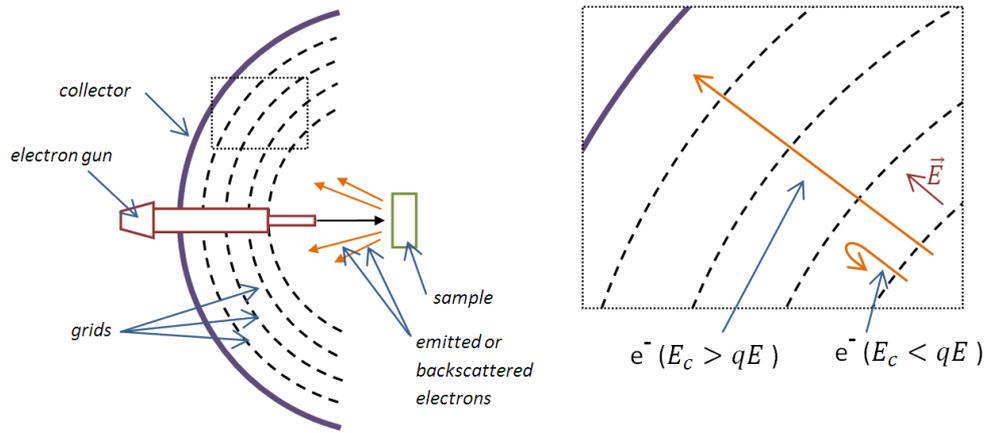


FIGURE 3.13 – Principe de fonctionnement de l'analyseur à champ retardant

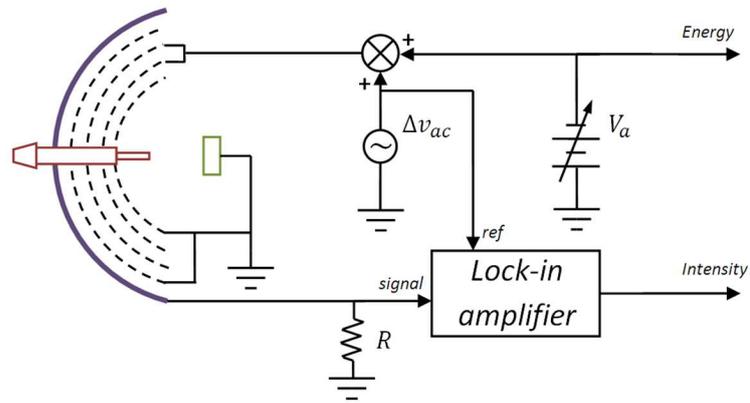


FIGURE 3.14 – Principe de fonctionnement de la détection synchrone

Pour des valeurs de  $k^3$  négligeables, on a :

$$S(\tilde{E}_C) \approx S(E_C) + kS'(E_C) \sin(\omega t) - \frac{k^2}{4} S''(E_C) \cos(2\omega t) \quad (3.22)$$

Le signal obtenu est composé d'une partie constante, d'une partie modulée à une fréquence  $\omega$  et d'une autre modulée à une fréquence  $2\omega$ . Si les valeurs de  $k^3$  ne sont pas négligeables, la partie modulée à  $2\omega$  reste valable pour des valeurs de  $k^4$  négligeables.

Le choix d'une fréquence de modulation suffisamment élevée (plusieurs kHz) permet d'éloigner les composantes modulées de bruit basse fréquence tel que le bruit de *flicker*[112].

Un filtre fréquentiel permet de sélectionner la partie du signal souhaité. Ceci est généralement obtenu en modulant à nouveau le signal par un signal sinusoïdal à une fréquence précise. Pour des fréquences égales à  $\omega$  et  $2\omega$  on obtient des signaux ayant respectivement une composante continue proportionnelle à  $S'(E_C)$  et  $S''(E_C)$ . Cette composante est extraite à l'aide d'un filtre intégrateur jouant le rôle de filtre passe-bas.

En faisant varier  $E_C$ , on obtient le spectre  $S'(E)$  qui, si la fonction de transfert de l'analyseur est constante sur la gamme d'énergie, correspond au spectre Auger tel que décrit dans la section 3.1.  $S''(E_C)$  correspond à la dérivée du spectre Auger, communément utilisée dans le domaine de la spectroscopie Auger.

L'utilisation du spectre Auger dérivé au lieu du spectre réel comporte en effet plusieurs avantages. Tout d'abord, il permet une amélioration du rapport signal/bruit. Une partie du bruit provient du couplage capacitif entre le potentiel oscillant des grilles et la chaîne d'acquisition[93], ce potentiel est de fréquence  $\omega$  et de même phase que le signal, le bruit ne peut donc pas être soustrait lors de la détection synchrone du signal  $S'(E)$ .

La dérivation permet également d'atténuer les parties non utiles du spectre, à savoir la contribution des électrons de cascade et ceux ayant subi des chocs inélastiques. La variation de cette contribution étant faible par rapport à l'énergie, la dérivée joue un rôle de "passe haut" qui supprime cette contribution. Le spectre dérivé ne comprend alors que les variations liées aux pics Auger et au pic élastique.

Un dernier intérêt de l'utilisation du spectre Auger dérivé, et qui explique son emploi généralisé, est lié à la mesure quantitative. En effet, pour mesurer un courant d'électrons Auger, il convient d'intégrer le pic du spectre en prenant soin de soustraire le fond. Pour le cas de pics de forme gaussienne, l'intégrale peut être estimée à partir de l'amplitude du pic dérivé[113].

Nous utilisons donc les spectres dérivés pour les calibrations du détecteur et la mesure quantitative des collecteurs.

## 3.4 Calibrations pour les couches de carbone

La calibration du spectromètre Auger est une étape indispensable dans nos travaux, elle permet tout d'abord de s'assurer du bon fonctionnement de l'appareil. L'objectif de cette calibration est de déterminer l'influence des réglages sur le résultat et de fixer les paramètres optimaux. Elle permet enfin de valider le choix du modèle théorique et d'avoir une estimation de l'incertitude de mesure.

Dans un premier temps la calibration relative à la pulvérisation de matériaux carbonés a été effectuée. Pour cela nous avons étudié les spectres de couches minces de carbone déposées sur un substrat de  $\text{SiO}_2$  (couche d'oxyde native sur les wafers de silicium). La calibration a été réalisée à l'aide de la chambre de préparation du dispositif expérimental "AODO" conçu au CIMAP[71].

### 3.4.1 Dispositif de calibration

Le dispositif AODO est un instrument dédié à l'étude de la pulvérisation ionique d'échantillons préparés *in situ*. Il est composé de deux chambres UHV séparées hermétiquement par une vanne. La première chambre est dédiée à la préparation et à la caractérisation de la surface d'échantillons (Figure 3.15). Elle dispose d'un canon à argon pour le nettoyage des surfaces, un emplacement permet l'installation du spectromètre Auger, enfin une zone est munie d'un évaporateur de matière, d'une balance à quartz rétractable et d'un système de chauffage. Une seconde constitue la chambre d'irradiation, munie d'un spectromètre à temps de vol[114], est dédiée à l'étude des ions secondaires. Une anode à lignes à retard permet la localisation spatiale des ions. Des cannes de transfert permettent le déplacement de l'échantillon face aux différents instruments.

Nous avons utilisé la première chambre pour la réalisation de couches minces de carbone amorphe sur un substrat de silice. Pour cela, nous avons utilisé l'évaporateur muni d'une tige de graphite, les dépôts ont été contrôlés à l'aide de la balance à quartz.

L'évaporateur est présenté en Figure 3.16. Son principe de fonctionnement est le suivant : un filament de tungstène est porté à incandescence à l'aide d'un courant électrique. Par effet thermoïonique, celui-ci émet des électrons attirés vers une tige de graphite portée à un potentiel  $U$ . Les électrons délivrent alors leur énergie à la tige, qui chauffe et se sublime. Les particules de carbone sont partiellement chargées, une lecture du courant en sortie de l'évaporateur permet d'avoir une indication sur les variations de ce flux de matière et un obturateur permet sa coupure.

Le flux de matière sublimée est orienté vers l'échantillon. Lors de la phase

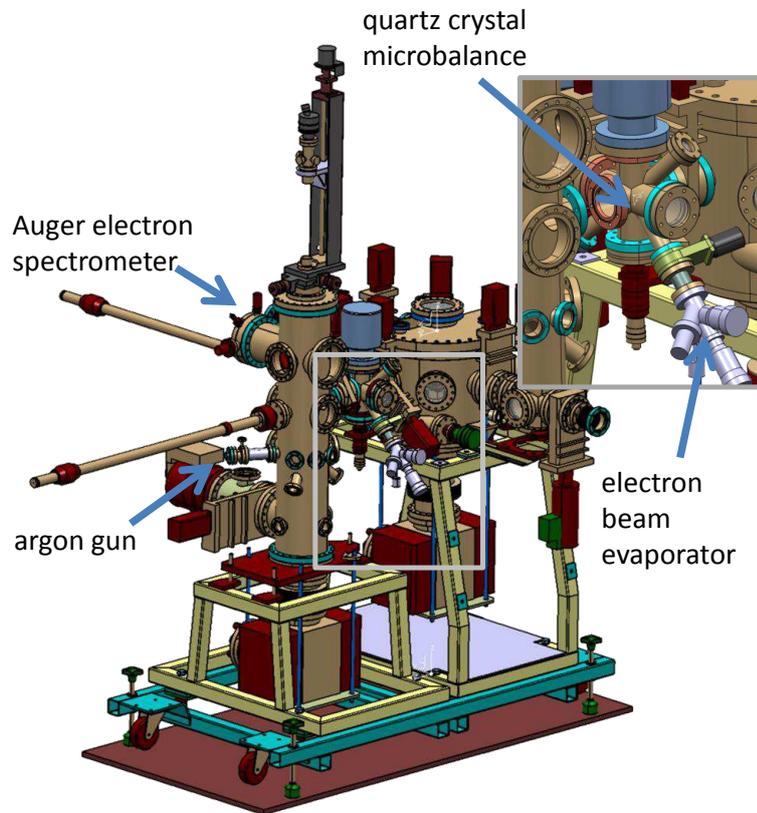


FIGURE 3.15 – Représentation du dispositif X.Y.TOF.SIMS AODO avec la chambre de préparation et la chambre d'irradiation.

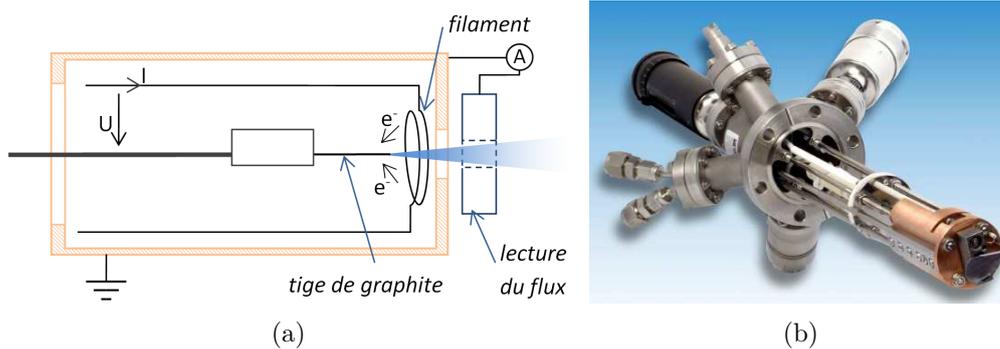


FIGURE 3.16 – Évaporateur de carbone : (a) principe de fonctionnement, (b) photo du dispositif.

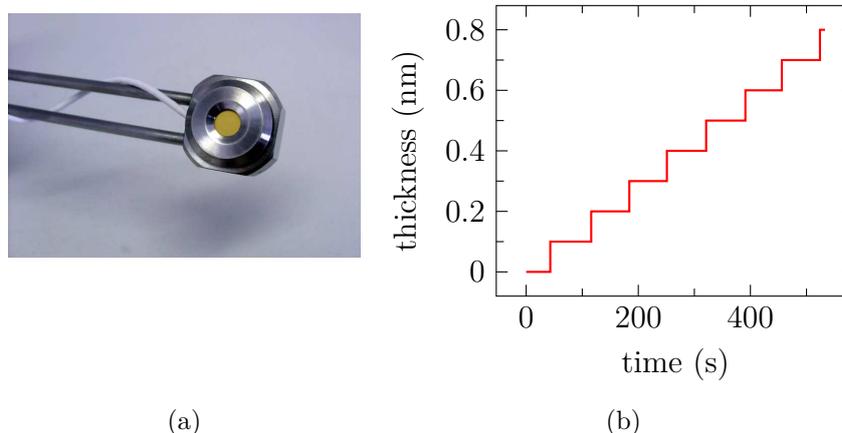


FIGURE 3.17 – (a) Photo de la balance à quartz, (b) croissance de couche de carbone mesurée au cours du temps.

de réglage de l'évaporateur, celui-ci peut être remplacé par la balance à quartz (Figure 3.17(a)). Celle-ci est composée d'un quartz plan avec une électrode sur ses deux faces. La caractéristique piézoélectrique du quartz permet sa vibration et un dispositif électronique assure la mesure de sa fréquence propre de résonance. Lorsqu'un matériau est déposé sur la balance, le changement de masse de l'ensemble modifie la fréquence de résonance, la mesure de cette déviation permet la détermination de la masse de matière déposée. En considérant le dépôt uniforme et sa densité connue, l'épaisseur de la couche mince est estimée avec une précision de 0.1 nm. À partir de la mesure de l'épaisseur de la couche au cours du temps (Figure 3.17(b)), la balance à quartz permet la mesure de la vitesse de dépôt et de la stabilité du flux de carbone. Afin d'obtenir une stabilité de mesure, la balance est en permanence refroidie par une circulation d'eau régulée en température.

### 3.4.2 Protocole de calibration

La calibration consiste en la mesure de couches minces étalons. Afin d'obtenir la précision nécessaire il a fallu préalablement s'assurer qu'aucune pollution ne vienne perturber les mesures. Des échantillons ont été nettoyés jusqu'à ce qu'aucune pollution ne soit plus détectable par le spectromètre Auger. Nous avons aussi vérifié qu'aucune autre pollution que l'évaporation de carbone n'apparaisse lors des étapes de calibration.

L'obtention de surface atomiquement "propre" n'est pas anodine ; afin de diminuer ce temps de nettoyage, celui-ci est scindé en deux étapes. Un premier nettoyage chimique puis un second par pulvérisation ionique sous vide. Avant

l'introduction de l'échantillon sous vide, nous dissolvons les hydrocarbures, le polluant majeur, à l'aide de trichloréthylène. Après un rapide rinçage à l'eau bidistillée, les échantillons y sont plongés pendant une durée de trente minutes. Ils sont alors plongés pour la même durée dans des bains successifs d'acétone, de méthanol et d'eau ultra pure. Ces étapes ont pour but la dissolution du solvant utilisé précédemment. Les échantillons sont ensuite rapidement (quelques minutes) introduits dans le dispositif sous vide. On procède alors à la dernière étape de nettoyage sous vide à l'aide d'ions argon simplement chargés d'une énergie de 500 eV. Ce faisceau, d'une intensité de quelque dixième de  $\mu\text{A}$ , est produit à l'aide d'un canon à argon à ionisation par collision électronique dont le fonctionnement est relativement similaire à celui présenté en section 2.3.2. Le nettoyage sous vide est répété jusqu'à ce qu'aucun polluant ne soit plus détecté sur les spectres Auger. Si une faible trace de carbone persiste, elle n'a été estimée qu'à une épaisseur de 0.2 nm.

Une fois une surface propre obtenue, nous nous sommes assurés que celle-ci ne se pollue pas au cours du temps de la calibration. Le moment critique de la calibration est la phase de réglage de l'évaporateur. Durant cette phase, la pression dans l'enceinte passe de  $1 \times 10^{-8}$  mbar à  $1 \times 10^{-6}$  mbar et des particules carbonées sont émises. Nous avons effectué toutes les étapes nécessaires à la calibration à l'exception du dépôt de carbone. Aucune détection de polluants n'est alors apparue.

Comme aucun problème lié à la pollution au cours des dépôts n'a été relevé, nous avons pu procéder à la calibration. Le dépôt de couches minces s'effectue en plusieurs étapes. Pendant l'allumage et le réglage de l'évaporateur, l'échantillon, préalablement nettoyé, est fixé sur la canne de transfert face cachée, le faisceau de matière évaporée est mesuré à l'aide de la balance à quartz. Une fois la vitesse de dépôt stabilisée, l'obturateur bloque le flux de matière et la balance à quartz est rétractée. La stabilité du flux est suivie à l'aide de la lecture d'intensité en sortie d'évaporateur. L'échantillon est ensuite positionné à la place de la balance, l'obturateur est alors ouvert pendant un temps déterminé par l'épaisseur de couche souhaitée. Le flux est ensuite coupé, et l'échantillon est remplacé sur la canne de transfert. Une seconde mesure de flux est alors effectuée pour s'assurer de la stabilité du flux de matière. L'échantillon est placé devant le spectromètre Auger où il est analysé en plusieurs points.

Plusieurs couches sont successivement déposées et analysées à plusieurs endroits des échantillons. On obtient l'évolution du signal Auger en fonction de l'épaisseur de carbone.

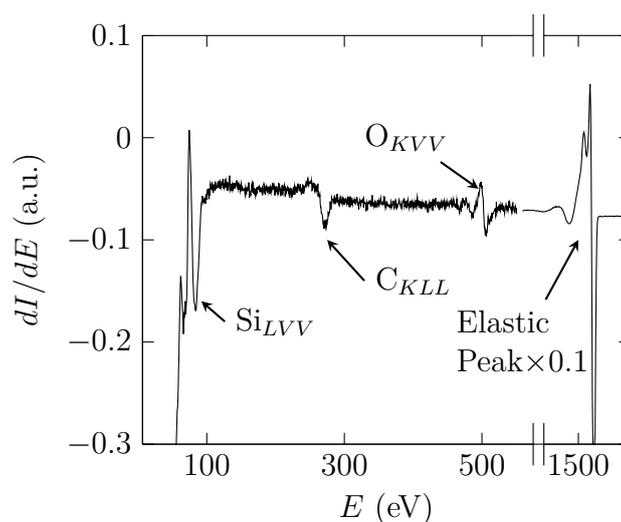


FIGURE 3.18 – Spectre Auger d'un échantillon de  $\text{SiO}_2$  recouvert d'une couche de carbone amorphe.

### 3.4.3 Spectroscopie Auger de couches minces de carbone

La Figure 3.18 montre un spectre Auger dérivé obtenu à partir d'un échantillon de  $\text{SiO}_2$  recouvert de carbone amorphe. On peut constater le pic Auger (dérivé) du Si dans une matrice de silice à une énergie comprise entre 60 eV et 100 eV ( $\text{Si}_{LVV}$ ), celui du carbone à 272 eV ( $\text{C}_{KLL}$ ) et celui de l'oxygène présent dans l'oxyde à 510 eV ( $\text{O}_{KVV}$ ). Le pic élastique est présent à une énergie de 1500 eV, on peut également y remarquer la présence de pics plasmon satellites.

L'énergie du faisceau d'électrons primaires a été augmentée pour pouvoir observer le pic  $\text{Si}_{LMM}$  (1600 eV). Ce pic n'ayant pas pu être observé, nous avons fixé l'énergie du faisceau primaire à 1500 eV. Les premiers spectres ont aussi permis de déterminer les paramètres de réglage de l'amplificateur à détection synchrone. La Figure 3.19(a) montre l'effet de l'amplitude de modulation sur la forme du pic élastique. Pour une plus grande visibilité les pics ont une amplitude normée, bien que celle-ci soit proportionnelle à l'amplitude de modulation, Plus elle est élevée, plus le signal est grand. En revanche l'amplitude ne doit pas dépasser la largeur d'un pic sous peine de perdre en résolution. On peut, par exemple, constater que les pics plasmon ne sont plus discernables dans le spectre à 10 V d'amplitude de modulation.

L'amplitude de modulation de la calibration a été fixée à 5 V. Afin de pouvoir appliquer la calibration à des mesures ayant une amplitude de modulation différente, nous avons mesuré la déviation du signal sous différentes conditions (Figure 3.19(b)). Les autres paramètres de la détection synchrone sont fixés. La

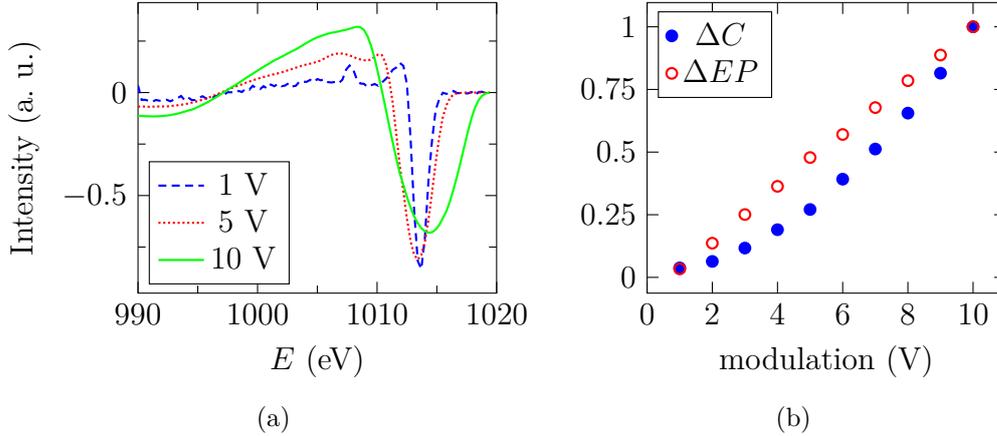


FIGURE 3.19 – Effet de l’amplitude de modulation de l’amplificateur à détection synchrone : (a) Pic élastique normalisé d’un faisceau d’électron d’énergie 1 keV, (b) évolution de l’amplitude normalisée de  $\Delta C$  et de  $\Delta EP$  en fonction de l’amplitude de modulation.

fréquence de modulation est de 4.75 kHz, le déphasage entre le signal modulé et le signal de référence est de  $69^\circ$ , la constante du filtre intégrateur est de 1 s et enfin la sensibilité de l’amplificateur est réglée en fonction de l’intensité des pics étudiés.

L’intensité des pics est mesurée avec l’amplitude des pics dérivés, la Figure 3.20 montre la mesure pour le pic Auger  $C_{KLL}$  et le pic élastique. La mesure du pic Auger s’effectue en prenant en compte la ligne de base. Les pics Auger  $O_{KVV}$  et  $Si_{LVV}$  ne sont pas utilisés pour la calibration, le premier est de trop faible intensité, le second de trop faible énergie (EAL trop faible) et change de forme avec la présence de carbone[115].

Les spectres Auger de couches minces de carbone sur silice ont été collectés pour des épaisseurs allant de 0 à 2.7 nm. L’évolution de l’amplitude des pics mesurés de carbone et des pics élastiques, en fonction de l’épaisseur, est présentée en Figures 3.21 et 3.22. La courbe en pointillé présente la modélisation à l’aide des modèles présentés précédemment (équations 3.10 et 3.17). Les paramètres de modélisation sont les suivants :  $\Lambda_{C,C} = k\lambda_{C,C}$  et  $\Lambda_{C,EP} = k\lambda_{C,EP}$  avec  $k = 0.74$ ,  $\lambda_{C,C} = 0.75$  nm[116],  $\lambda_{C,EP} = 2.09$  nm,  $R_C = 1.7 \times 10^{-4}$  et  $R_{Si} = 5 \times 10^{-4}$  [109].

L’erreur sur l’épaisseur de la couche de carbone est estimée à partir des vitesses de dépôt et vaut 2 %. L’incertitude sur l’amplitude des pics est obtenue statistiquement, à partir de l’écart-type corrigé par un coefficient de Student correspondant à un intervalle de confiance de 70% [117].

Les modèles utilisés en Figures 3.21 et 3.22 supposent un courant de faisceau

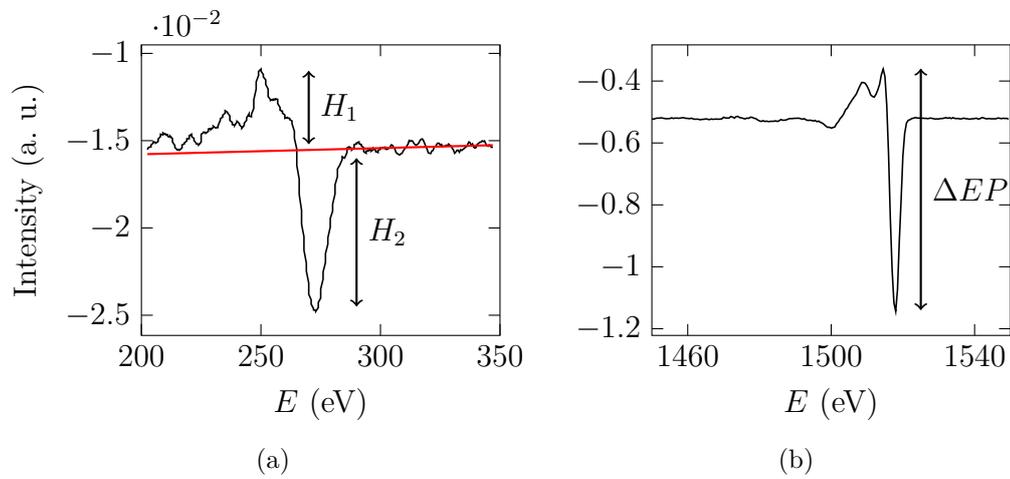


FIGURE 3.20 – Amplitude  $\Delta C = H_1 + H_2$  et  $\Delta EP$  des pics Auger  $C_{KLL}$  (a) et du pic élastique (b).

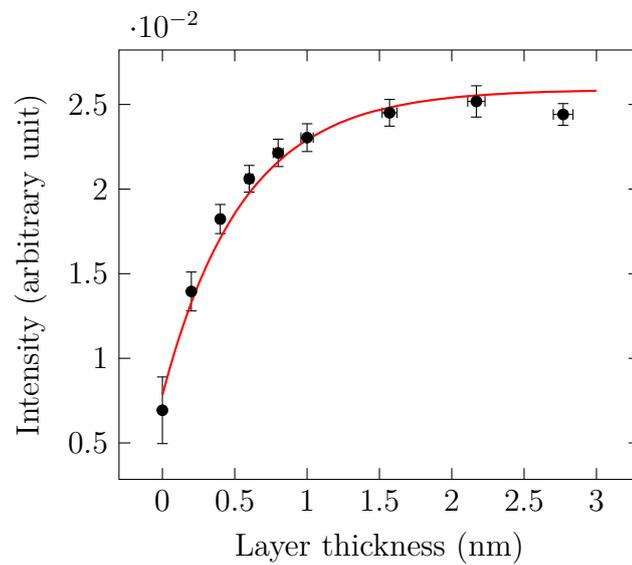


FIGURE 3.21 – Évolution de l'intensité du pic Auger  $C_{KLL}$  en fonction de l'épaisseur de carbone déposé. (●) points expérimentaux, (—) modèle théorique.

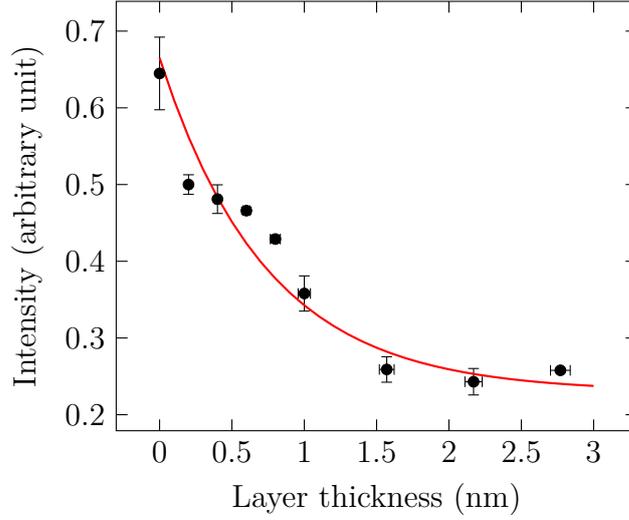


FIGURE 3.22 – Évolution de l'intensité du pic élastique en fonction de l'épaisseur de carbone déposé. (●) points expérimentaux, (—) modèle théorique.

primaire  $I_0$  constant, étant donné que ce courant ne peut être mesuré par le dispositif PULSAR, il est possible d'écarter cette hypothèse en faisant le rapport des intensités de pics. À partir des équations 3.10 et 3.17 on obtient :

$$\frac{I_C}{I_{EP}} = \alpha \frac{1 - \exp(-d/\Lambda_{C,C})}{R_C + (R_{Si} - R_C) \exp(-2d/\Lambda_{C,EP})} \quad (3.23)$$

avec  $\alpha = k_C/k_{EP} = 2 \times 10^{-5}$ .

La Figure 3.23 montre la modélisation du rapport des amplitudes, on peut y constater une plus grande précision. On peut en conclure que la dispersion sur l'amplitude des pics est, en grande partie, due aux variations d'intensité du faisceau primaire. L'étendue mesurable par cette technique est estimée de 0 à 1.5 nm.

Pour finir, il est possible de faire des remarques sur les courbes de calibration. On peut, tout d'abord, noter une légère déviation entre le modèle et le dernier point expérimental de la Figure 3.21. L'utilisation du modèle incluant le coefficient de rétrodiffusion et son atténuation n'est cependant pas primordiale car il multiplierait le nombre de paramètres.

Une autre remarque concerne les points expérimentaux de la Figure 3.22 et leur modélisation. Une déviation intervient aux alentours de 0.6 nm, soit vers le passage à deux monocouches atomiques. On peut alors supposer que le mécanisme de croissance n'est pas totalement régulier, la formation d'îlots pouvant être à l'origine de cette variation. Notons enfin que des résultats similaires ont

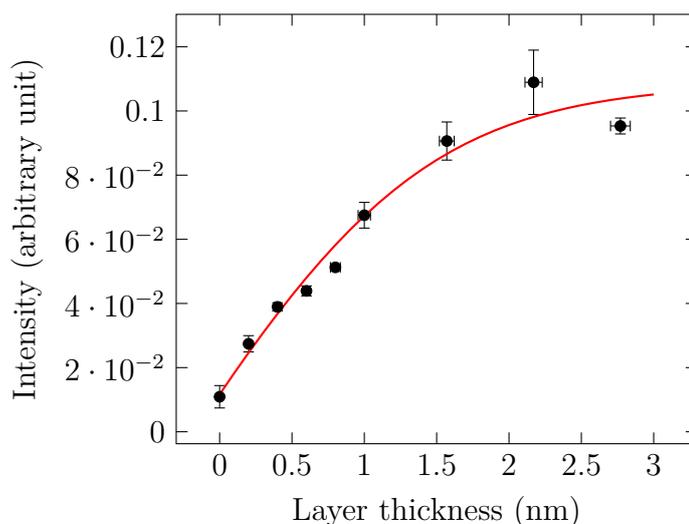


FIGURE 3.23 – Rapport d'intensité  $C_{KLL} / PE$  en fonction de l'épaisseur de carbone déposée. (•) points expérimentaux, (—) modèle théorique.

été remarqués dans l'étude de couches minces de cuivre déposées sur du carbone amorphe[118].

### 3.5 Calibrations pour les couches de tungstène

La calibration du spectromètre Auger pour des couches de tungstène sur substrat silicium est différente de celle des couches de carbone sur silice. N'étant pas en mesure de fabriquer des couches minces de tungstène, une solution a dû être trouvée pour valider le choix des modèles théoriques. Pour réaliser cette expérience, nous avons utilisé le dispositif PULSAR couplé à la ligne de faisceau intense (décrite en section 2.3.3).

Une cible de tungstène a été pulvérisée par un faisceau d'argon monochargé d'énergie 7 keV et un collecteur de Si, de largeur 5 mm, placé à un angle défini. En supposant les coefficients de collage du tungstène sur le silicium et sur le tungstène égaux et le rendement de pulvérisation stable au cours du temps, il est possible d'établir un relation de proportionnalité entre la dose  $f$  d'ions sur la cible et l'épaisseur  $d$  de tungstène sur le collecteur. On a alors  $d = \alpha f$ , avec  $\alpha$  une constante déterminée par le rendement de la pulvérisation, sa distribution angulaire et le coefficient de collage du tungstène (bien qu'inconnue, cette constante est la même pour chacun des pics étudiés dans le spectre).

Nous utilisons donc les pics Auger et le pic élastique disponibles pour affiner la calibration. L'utilisation de la ligne de faisceau intense nous permet le

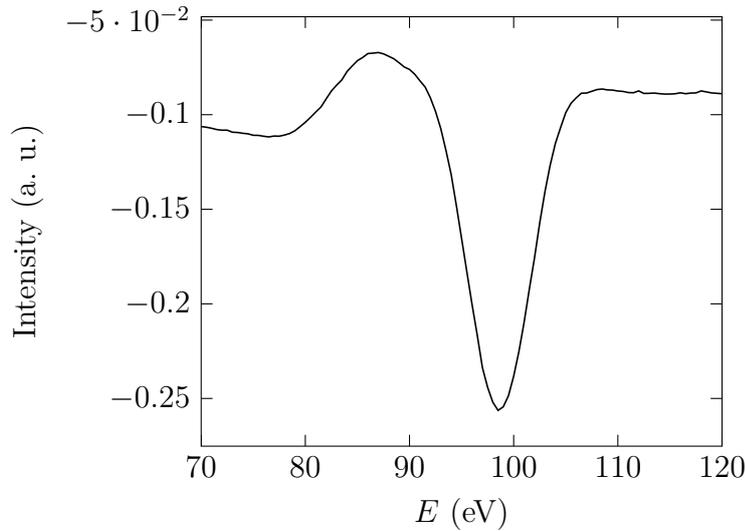


FIGURE 3.24 – Spectre Auger du silicium, pic  $\text{Si}_{LVV}$  du silicium dans une matrice de silicium.

décapage de la couche d'oxyde présent sur le collecteur, ce qui rend plus précise la mesure du pic  $\text{Si}_{LVV}$  (Figure 3.24). L'utilisation de matériaux purs nous permet la détermination des conditions limites de nos modèles. La Figure 3.25 montre le spectre dérivé d'un échantillon de tungstène pur aux alentours du pic  $\text{W}_{NVV}$  (180 eV). On peut remarquer des traces de carbone manifestées par le pic  $\text{C}_{KLL}$  (272 eV) ainsi que la présence du pic  $\text{Ar}_{LMM}$  (215 eV) provenant de l'implantation d'argon lors du nettoyage.

La calibration liée au tungstène étant indirecte, elle nécessite une vigilance dans le choix des longueurs d'atténuation utilisées.

### 3.5.1 Protocole et choix des constantes

La calibration consiste en une série d'irradiations d'une cible de tungstène préalablement nettoyée à l'aide du même faisceau d'ions. Le collecteur est analysé à différentes doses allant de 0 à  $3.9 \times 10^{17}$  ions.

Le tungstène étant un élément lourd, le comportement d'électrons traversant ce matériau est sensiblement différent de celui correspondant au carbone. Pour cela nous devons prendre en compte le faible parcours des électrons, ainsi que la présence forte de phénomènes de rétro-diffusion. Les modèles théoriques utilisés nécessitent des constantes comme le libre parcours inélastique moyen (imfp) ou la longueur effective d'atténuation (EAL). Le tableau ci-dessous présente quatre séries de constantes déterminées de façon théorique [101, 100, 119, 120].

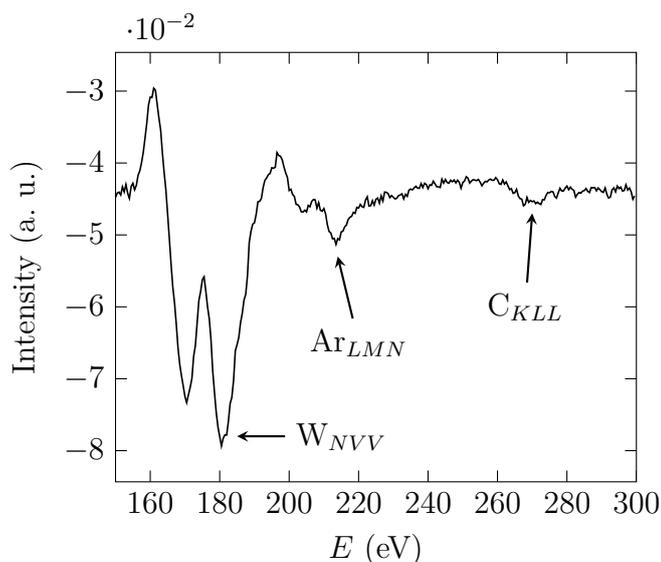


FIGURE 3.25 – Spectre Auger d'un échantillon de tungstène pur.

TABLEAU 3.2 – Libre parcours inélastique moyen et longueur d'atténuation des électrons Auger  $Si_{LVV}$ ,  $W_{NVV}$  et du pic élastique exprimés en nanomètre.

Source	$\lambda_{Si,W}$	$\Lambda_{Si,W}$	$\lambda_{W,W}$	$\Lambda_{W,W}$	$\lambda_{PE,W}$	$\Lambda_{PE,W}$
Gries[101]			0.494 <sup>a</sup>	0.423 <sup>a</sup>	1.828	1.443
Tamuna[100]	0.412	0.330	0.480	0.416	1.797	1.423
Lesiak[119]					1.066	0.913
Golek[120]			0.473 <sup>b</sup>	0.377 <sup>b</sup>	1653	1.328

<sup>a</sup> constantes obtenues pour une énergie de 200 eV

<sup>b</sup> constantes obtenues pour une énergie de 250 eV

On peut remarquer que le rapport entre l'imfp et l'EAL diffère de 0.74 pour les électrons Auger  $W_{NVV}$ . La simplification effectuée lors de la calibration avec le carbone n'est donc pas valable, nous utiliserons alors uniquement les EAL dans nos modèles.

Les constantes fournies par Tamuna[100] sont disponibles pour l'ensemble des électrons étudiés, nous utilisons donc ces données par la suite.

### 3.5.2 Spectroscopie des couches de tungstène

L'évolution de l'amplitude du pic élastique en fonction de la dose est illustrée par la Figure 3.26. La courbe représente la modélisation avec l'équation dérivée

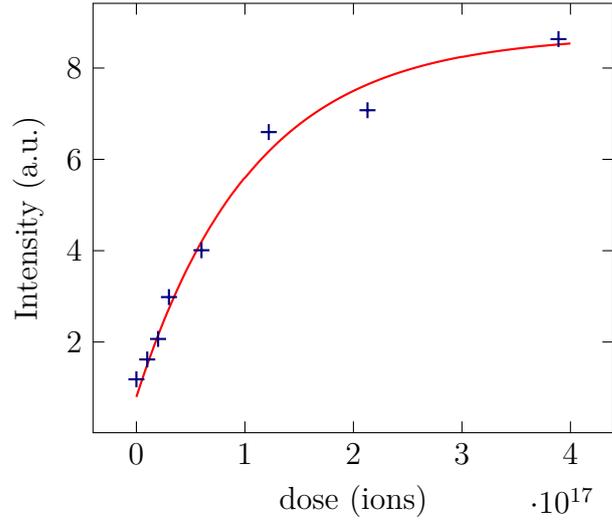


FIGURE 3.26 – Données expérimentales et modélisation de l'intensité du pic élastique en fonction de la dose d'ions. (+) points expérimentaux, (—) modèle théorique.

de l'équation 3.17 :

$$I_{PE}(d) = I_{PE,W} - (I_{PE,W} - I_{PE,Si}) \exp[-\alpha f / \Lambda_{PE,W}] \quad (3.24)$$

avec  $I_{PE,W}$  et  $I_{PE,Si}$  l'intensité du pic élastique mesuré respectivement pour du tungstène et du silicium massifs,  $\Lambda_{PE,W}$  correspond à l'EAL donnée par Tamuna, avec les valeurs mesurées  $I_{PE,W} = 8.73$  u.a. (en volt) et  $I_{PE,Si} = 0.80$  u.a., on obtient alors  $\alpha = (6.64 \pm 0.44) \times 10^{-18}$  nm/ions.

La variation de l'intensité du pic Auger  $Si_{LVV}$  (92eV) est représentée en Figure 3.27. En utilisant le modèle décrit par l'équation 3.11 on obtient la courbe continue. La couche de condensat étant en tungstène, le faisceau primaire est susceptible d'être absorbé de manière significative. Ce phénomène peut être pris en compte en utilisant le modèle correspondant à la courbe en pointillés et suivant l'équation :

$$I_{Si}(d) = I_{Si}^{\infty} \exp[-\alpha f / \Lambda_{Si,W}] \exp[-\alpha f / \Lambda_{PE,W}] \quad (3.25)$$

avec  $I_{Si}^{\infty} = 0.31$  u.a., l'intensité du pic Auger  $Si_{LVV}$  pour un matériau massif, le terme  $\alpha$  obtenu est  $(7.58 \pm 0.75) \times 10^{-18}$  nm/ions.

La modélisation de l'intensité du pic Auger  $W_{NVV}$  (180eV) nécessite la prise en compte de nombreux phénomènes comme l'utilisation des coefficients de rétrodiffusion et de leur atténuation. Pour cela on utilise le modèle dérivé

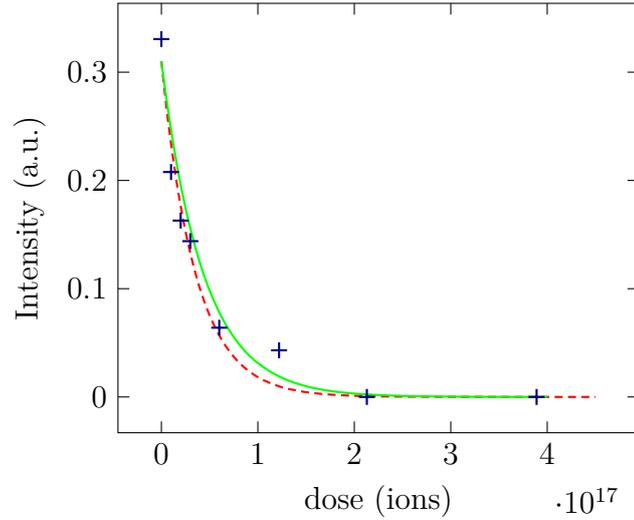


FIGURE 3.27 – Données expérimentales et modélisations de l’intensité du pic Auger  $\text{Si}_{L_{VV}}$  en fonction de la dose d’ions. (+) points expérimentaux, (—) modèle théorique adapté aux couches minces, (---) modèle théorique prenant en compte l’atténuation du faisceau sonde.

de celui décrit par l’équation 3.13 :

$$I_W(d) = I_W^\infty \left( 1 - \exp \left[ \frac{-\alpha f}{\Lambda_{W,W}} \right] \right) \left\{ 1 + \left( \frac{1 + r_{W,Si}}{1 + r_{W,W}} - 1 \right) \exp \left[ \frac{-\alpha f}{L} \right] \right\} \quad (3.26)$$

avec  $I_W^\infty = 40$  mV, l’intensité du pic Auger  $\text{W}_{L_{VV}}$  pour un matériau massif, les constantes  $r_{W,Si}$  et  $r_{W,W}$  correspondent respectivement aux coefficients de correction de rétrodiffusion. Le terme  $L$  englobe l’atténuation du faisceau sonde et de l’effet de la rétrodiffusion (MEBDL décrit en section 3.2.1). Sa valeur absente de la littérature, est déterminée à partir de la modélisation des données expérimentales, pour cela nous devons fixer  $\alpha$  à la valeur obtenue lors de la modélisation de pic élastique.

Ce modèle est présenté par la courbe en pointillés rouges en Figure 3.28, la courbe continue montre le domaine de couches monoatomiques dans lequel la décroissance de l’effet de rétrodiffusion peut être négligée ( $L = \infty$ ). Pour des couches nanométriques, la prise en compte de la MEBDL (courbe verte) permet de bien modéliser l’ensemble des données, on obtient alors  $L = 2.54 \pm 0.44$  nm et  $(1 + r_{W,Si}) / (1 + r_{W,W}) = 0.312 \pm 0.056$ .

À l’aide des trois modèles présentés, il devient possible de comparer l’épaisseur de tungstène déposée déduite à partir de différents pics étudiés (Figure 3.29). La régression linéaire nous donne un paramètre  $\alpha = 7.4 \times 10^{-18}$  nm/ions. On peut constater que le pic Auger du silicium, limitant une calibration à de faibles

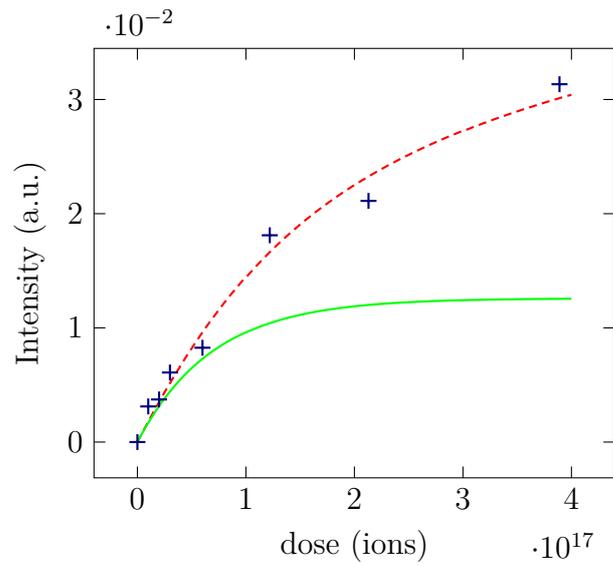


FIGURE 3.28 – Données expérimentales et modélisations de l'intensité du pic Auger  $W_{N_{VV}}$  en fonction de la dose d'ions. (+) points expérimentaux, (—) modèle théorique prenant en compte la rétrodiffusion, (---) modèle théorique prenant en compte l'atténuation du faisceau sonde et de la rétrodiffusion.

épaisseurs de tungstène ( $d < 0.5$  nm), ne sera pas pris en compte lors de l'analyse des données.

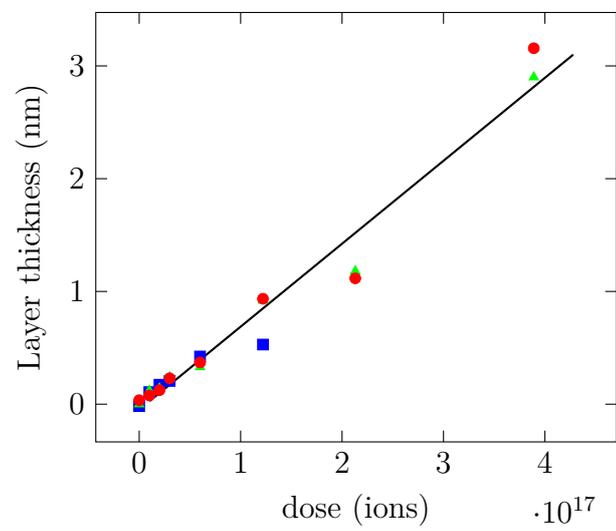


FIGURE 3.29 – Comparaison des différents modèles utilisant les pics élastiques (●), Si<sub>LVV</sub> (■) et W<sub>NVV</sub> (▲).



## CHAPITRE

### 4

# RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX ET DISCUSSIONS

## 4.1 Pulvérisation du carbone

Le carbone est un élément très représenté dans les réacteurs de fusion. Il est principalement présent sous forme de fibres dans des matériaux composites. Pour l'étude de pulvérisation nous utilisons du carbone sous forme de HOPG. Le carbone est l'unique élément de ce matériau constitué de microcristaux de graphite. Ces cristaux, de taille d'une dizaine de  $\mu\text{m}$ [121], ont une orientation préférentielle selon un axe. Les feuillets de graphène qui les composent sont parallèles à ceux de leurs voisins, l'orientation des cristaux est donc la même à une rotation près. Cette forte anisotropie est à l'origine de nombreuses propriétés du matériau (facilité de clivage, création de surface lisse et inerte chimiquement).

### 4.1.1 Protocole expérimental

La cible de HOPG étudiée présente une surface parallèle aux feuillets de graphène. Pour obtenir une surface la plus propre possible, la cible a été clivée avec du ruban adhésif, puis introduite très rapidement sous vide[122, 123]. Le collecteur était composé de 10 morceaux d'environ 5 mm de large découpés d'un wafer de silicium. Le wafer utilisé comporte une couche de silice de 100 nm d'épaisseur, ce qui lui donne la particularité de scintiller sous le faisceau d'électrons du spectromètre Auger, facilitant le positionnement de la zone étudiée.

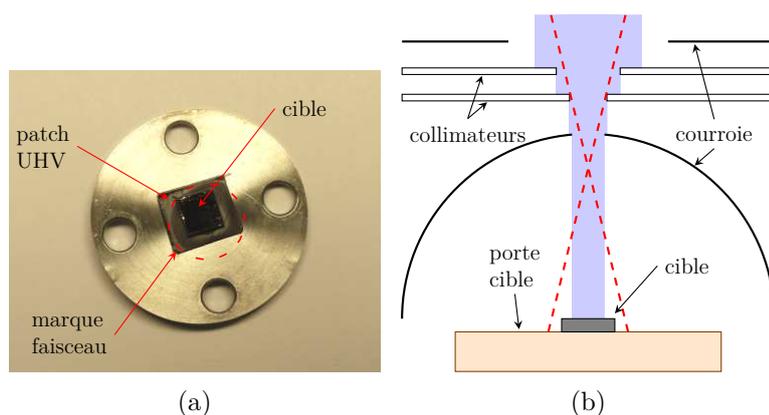


FIGURE 4.1 – (a) photographie du porte cible après le run 1, (b) trajectoire du faisceau d'ion avec (pointillés) ou sans (plein) application d'un potentiel au niveau des collimateurs.

Les différents morceaux de Si qui compose le collecteur ont été nettoyés suivant les méthodes utilisées lors de la calibration (section 3.4) et fixés à la courroie à l'aide de patches UHV. Trois morceaux de wafer supplémentaires ont été placés sur la courroie dans des zones n'étant pas en regard de la cible afin de servir de témoins pour mesurer la pollution.

L'enceinte a été mise sous vide puis étuvée jusqu'à obtenir une pression résiduelle de  $5 \times 10^{-10}$  mbar. Le collecteur ainsi que la cible ont été nettoyés par pulvérisation induite par un faisceau d'ions de  $\text{Ar}^+$  d'énergie 2.8 keV. Cette étape a permis la mesure des électrons secondaires, nous mesurons une contribution au courant totale de 10.8%.

Une fois le nettoyage achevé, le collecteur a été mis en regard de la cible pour l'irradiation. Lors d'une première expérience dénommée "run 1", il a été décidé de polariser un des collimateurs à un potentiel d'une centaine de volts. Cela a eu pour effet de focaliser le faisceau et d'augmenter le courant sur la cible d'un facteur deux. Après observation de la cible (Figure 4.1) il s'est avéré que le faisceau était défocalisé au niveau de la cible et avait une surface d'impact bien supérieure à celle-ci. Les résultats relatifs au run 1 ne sont donc présentés qu'à titre indicatif.

Pour la seconde expérience "run 2", les collimateurs ont été reliés à la masse. L'intensité du faisceau était de  $1 \mu\text{A}$  et un total de  $1.91 \times 10^{18}$  ions a été appliquée sur la cible. Le collecteur a ensuite été analysé au centre de chacun des morceaux de Si le constituant. Les résultats de la calibration ont permis la détermination de l'épaisseur de matière collectée sur chacune des parties du collecteur.

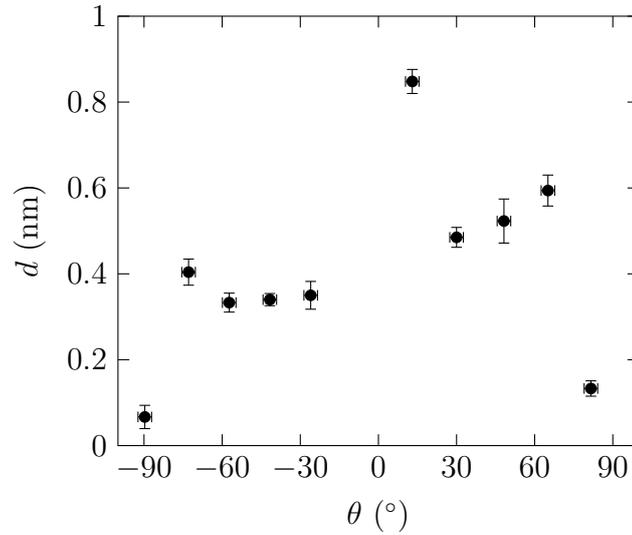


FIGURE 4.2 – Mesure de l'épaisseur de carbone pulvérisé en fonction de l'angle  $\theta$  par rapport à la normale à la surface.

#### 4.1.2 Résultats et discussion

L'épaisseur de carbone mesurée sur le collecteur est présentée sur la Figure 4.2. L'angle  $0^\circ$  correspond à la normale de la surface qui est aussi l'angle d'incidence du faisceau. On peut observer le maximum à  $13^\circ$  correspondant à un dépôt d'environ  $8.5 \text{ \AA}$ . On peut aussi constater la présence de deux épaulements à un angle de  $70^\circ$ , ces derniers ont également été observés lors du run 1 (Figure 4.3). La distribution angulaire de pulvérisation est intégrée sur tout l'angle solide d'émissions par la méthode des trapèzes, le rendement total de pulvérisation obtenu, par la méthode décrite en section 2.2.2.a, est de  $6.73 \times 10^{-2}$ .

Les distributions angulaires mesurées sont différentes de celles communément rencontrées pour des irradiations en incidence normale aux énergies supérieures à 1 keV[124], pour lesquelles on constate des distributions ne comportant qu'un unique maximum et souvent approximées par une fonction  $f(\theta) \propto \cos^n \theta$ . Pour expliquer les distributions observées, nous nous basons sur différentes expériences antérieures ainsi que sur leurs interprétations.

Une série d'expériences et de simulations a été réalisée par Eckstein associé à une équipe russe[125]. Il s'agit de la pulvérisation d'une cible carbonée irradiée à différents angles d'incidence par des ions argon simplement chargés d'énergie 30 keV. La matière pulvérisée est recueillie à l'aide d'un collecteur cylindrique. L'ensemble des paramètres expérimentaux n'est que très peu détaillé[126]. Bien

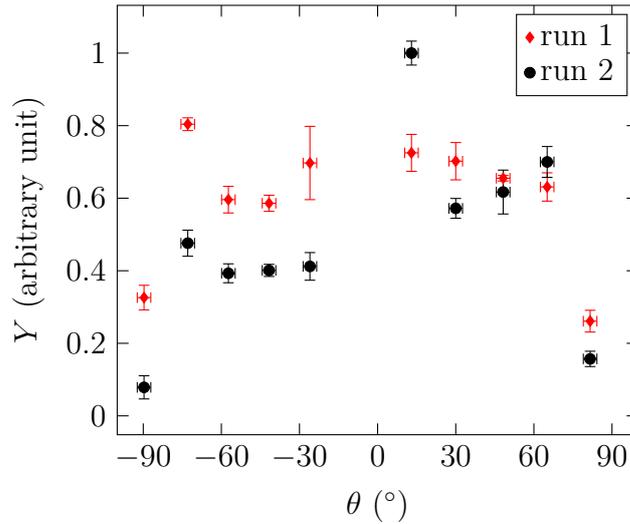


FIGURE 4.3 – Rendement de pulvérisation du HOPG, comparaison entre le run 1 et 2.

que, ni la nature cristalline de la cible, ni la méthode d’analyse du collecteur ne soient renseignées, nous pouvons néanmoins constater des similitudes avec nos résultats. Les distributions angulaires de pulvérisation pour des angles d’incidences compris entre  $60^\circ$  et  $90^\circ$  par rapport à la surface sont présentées en Figure 4.4. Pour l’irradiation à incidence normale, on peut remarquer un épaulement aux alentours de  $70^\circ$ . À la différence de nos résultats, la distribution angulaire ne comprend pas de maximum central.

Les résultats sont interprétés à l’aide de simulations numériques effectuées à l’aide du code TRIM.SP[25], utilisant la méthode de Monte Carlo pour simuler les collisions atomiques et la pulvérisation dans des cibles amorphes. Le résultat de la simulation est présenté en Figure 4.5, la contribution des atomes éjectés lors des premières collisions (*primary knock-ons atoms*, PKA) est différenciée du reste de la pulvérisation (dont les atomes issus de la cascade de collision), cette contribution semble être à l’origine de la forme de la distribution. Pour une irradiation en incidence normale, on observe une tendance de type under-cosine observable lors d’irradiations à basse énergie (inférieur à 1 keV)[124, 127]. Le maximum de pulvérisation est de  $50^\circ$  soit une différence de  $20^\circ$  par rapport à l’expérimentation.

D’autres expériences expliquent la présence de préférence angulaire due au caractère cristallin de la cible. Cela a, pour la première fois, été observé par Wehner[44] dans les années 1950. Différents travaux tentent d’expliquer les mécanismes en jeu : dès 1957, Silsbee [45] a interprété le phénomène par la présence de séquence de collisions préférentielles (*focused collision sequence, focussons*).

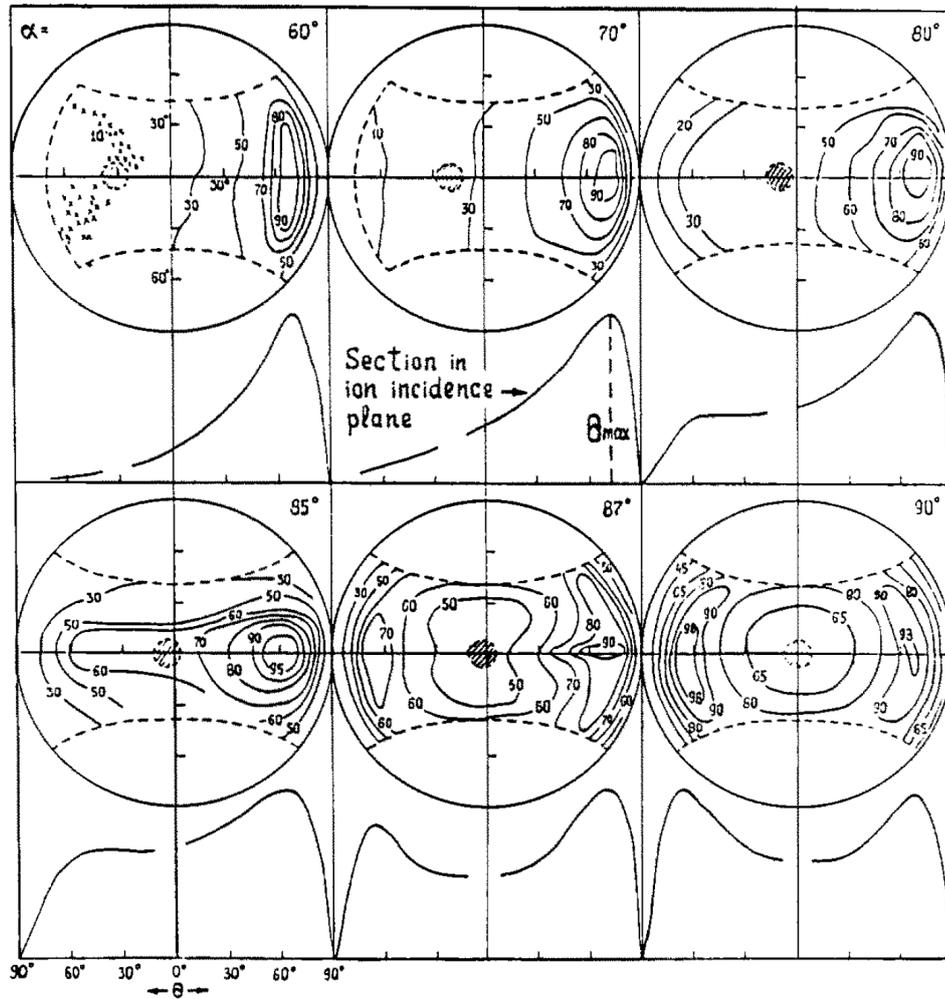


FIGURE 4.4 – Mesure de pulvérisation angulaire de graphite par un faisceau de  $\text{Ar}^+$  à 30 keV à différents angles d'incidence[125].

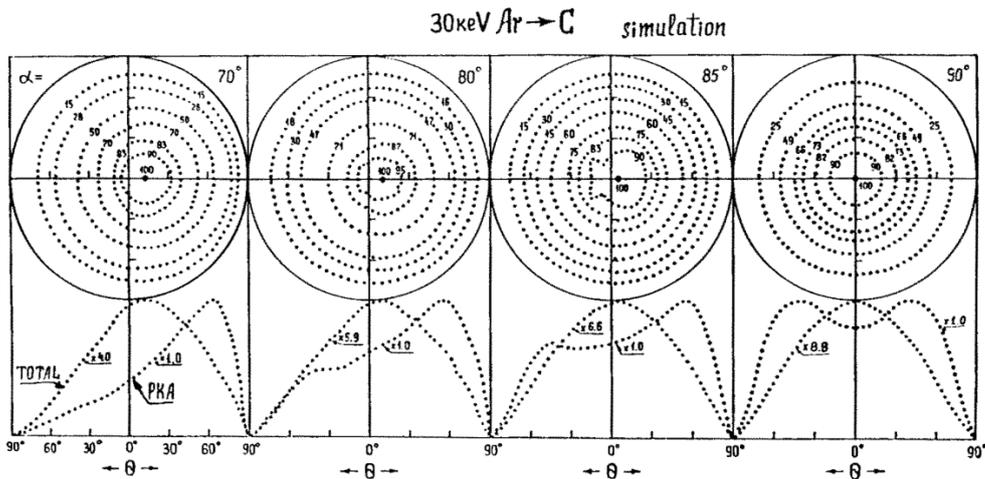


FIGURE 4.5 – Simulation de pulvérisation de graphite par un faisceau de  $\text{Ar}^+$  à 30 keV à différents angles d'incidence[125].

Lehmann et Sigmund[52] proposent une approche différente en mettant uniquement en cause les deux premières couches du matériau. Des effets de canalisation, de potentiels de surface et d'écrantage par des atomes peuvent enfin jouer un rôle dans l'éjection d'atomes provenant de la profondeur du matériau. Ces mécanismes complémentaires permettent d'expliquer les observations de spots de pulvérisation, communément appelés spots de Wehner.

Par ailleurs, des expériences de pulvérisation ont été réalisées à haute énergie (ions d'or à 120 MeV)[76, 128] sur des cibles de HOPG et de carbone amorphe (Figure 4.6). Un angle préférentiel de pulvérisation a été mesuré à  $53^\circ$  pour la cible cristalline. En changeant l'angle d'incidence des ions, il a été observé que l'angle préférentiel se déplaçait de la même valeur, ce qui renforce l'hypothèse d'une origine cristalline. Celle-ci est également confirmée lors de l'irradiation de carbone amorphe où aucun effet de pulvérisation préférentielle n'a été observé. L'irradiation ayant eu lieu à haute énergie, il est difficile de comparer ces résultats avec les nôtres. Il s'agit en effet de pulvérisation électronique, à notre connaissance aucune mesure de pulvérisation angulaire n'a été effectuée dans un régime de pulvérisation nucléaire.

Nous pouvons néanmoins comparer nos résultats à ceux obtenus lors d'irradiations à basse énergie de cibles cristallines de réseau hexagonal d'orientation [001]. Ce type d'expérience a été effectué sur des cibles de Mg, Zn, Zr et Cd irradiées par des ions argon simplement chargés à des énergies comprises entre 4 keV et 5 keV[129]. La Figure 4.7 montre la similitude entre les différents résultats d'expérience. On peut remarquer la présence d'un pic central entouré de pics satellites secondaires (et tertiaires pour le cas de zinc). Les angles des plans

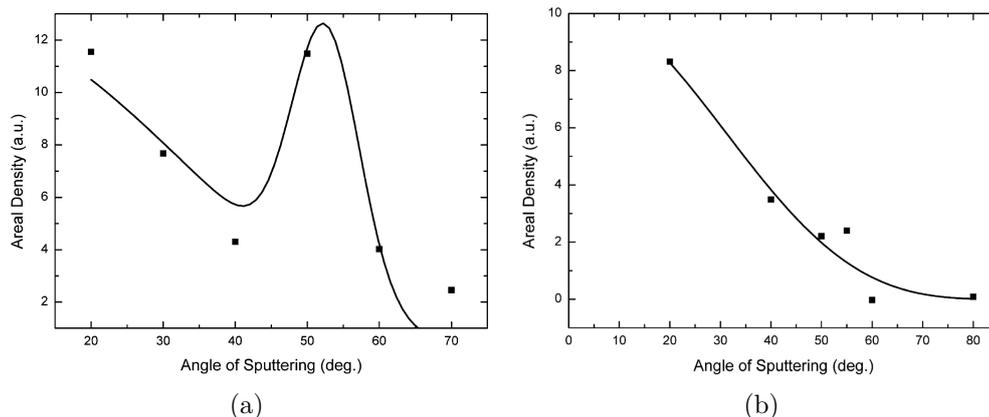


FIGURE 4.6 – Distribution angulaire de pulvérisation de carbone sous forme HOPG (a) et amorphe (b) sous irradiation à des ions d’or d’énergie 120 MeV[128]

cristallins y sont également reportés, on peut constater une certaine corrélation avec l’angle des spots, ce qui validerait la présence d’un mécanisme d’éjection de type focussions.

Les angles cristallins par rapport à l’orientation  $[001]$  pour différents éléments cristallisés en structure hexagonale sont présentés sur le tableau 4.1. Dans le cas du graphite on peut noter que les grands angles peuvent correspondre aux angles préférentiels d’éjection. Dans notre cas, la structure polycristalline du HOPG nous permet de prévoir une distribution angulaire de la pulvérisation selon des cercles concentriques à des angles donnés.

TABLEAU 4.1 – Angle des plans cristallins par rapport à la direction  $[001]$

Element	paramètres de maille		angle du plan		
	$a = b$ (Å)	$c$ (Å)	$\langle 20\bar{2}3 \rangle$	$\langle 40\bar{4}3 \rangle$	$\langle 6\bar{4}\bar{2}3 \rangle$
Zn	2.665	4.947	$36^\circ$	$55^\circ$	$62^\circ$
Zr	3.232	5.147	$32^\circ$	$51^\circ$	$58^\circ$
Mg	3.209	5.21	$32^\circ$	$51^\circ$	$59^\circ$
Cd	2.98	5.618	$36^\circ$	$55^\circ$	$62^\circ$
C	2.46	6.79	$47^\circ$	$65^\circ$	$70^\circ$

Références : Zn, Zr, Mg et Cd[130], C [131].

Un étude récente sur la pulvérisation du nitrure de bore par simulation est présentée par Yurasova *et al*[132]. Ce matériau a un forme cristalline très proche de celle du graphite (Figure 4.8(a)), avec des paramètres de mailles

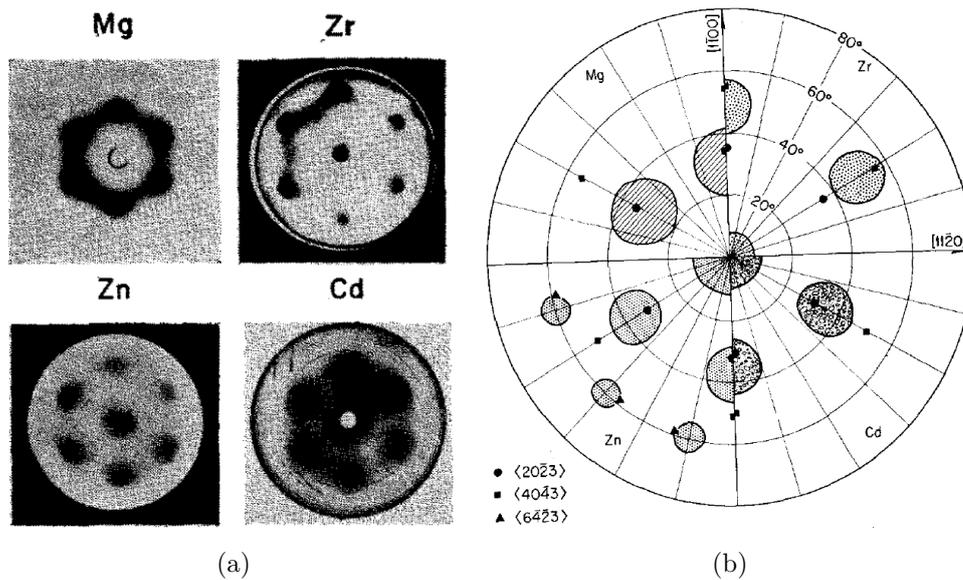


FIGURE 4.7 – Distribution angulaire de monocristaux de Mg, Zn, Zr et Cd irradiées par des faisceaux  $\text{Ar}^+$  d'énergies comprises 4 keV et 5 keV[129]. (a) analyses des collecteurs correspondant à l'irradiation des différents matériaux, (b) comparaison des différents spots de pulvérisation.

$a = b = 2.51 \text{ \AA}$  et  $c = 6.69 \text{ \AA}$ [133] la structure de ce matériau est quasi identique à celle du graphite. La Figure 4.8(b) présente les résultats de la pulvérisation par simulation de la dynamique moléculaire. On peut constater la présence d'un spot central entouré de six spots secondaires placés à un angle de  $55^\circ$  par rapport à la normale. Une étude comparative avec la structure rhomboédrique du nitrure de bore a permis de mettre en évidence l'origine du mécanisme de pulvérisation : la direction préférentielle est attribuée à la structure cristalline de la couche atomique supérieure du matériau, les couches suivantes n'ayant que très peu d'effet sur la distribution.

Cette étude numérique nous apporte également quelques informations utiles à la compréhension des phénomènes précédemment cités. En effet, il y est fait mention du spot central présent, uniquement, dans le cas d'irradiations d'énergies inférieures à 5 keV. Cette observation expliquerait l'absence de ce pic dans l'étude d'Eckstein dont l'énergie étaient de 30 keV.

Les rendements de pulvérisation obtenus pour le nitrure de bore cristallin sont nettement plus faibles que pour la forme amorphe. Ceci s'explique par la présence d'écrantage et peut être à l'origine du faible rendement de pulvérisation relevé lors de nos expériences. En effet, ce rendement, bien que sous-évalué car obtenu par intégration par méthode des trapèzes, est relativement faible par

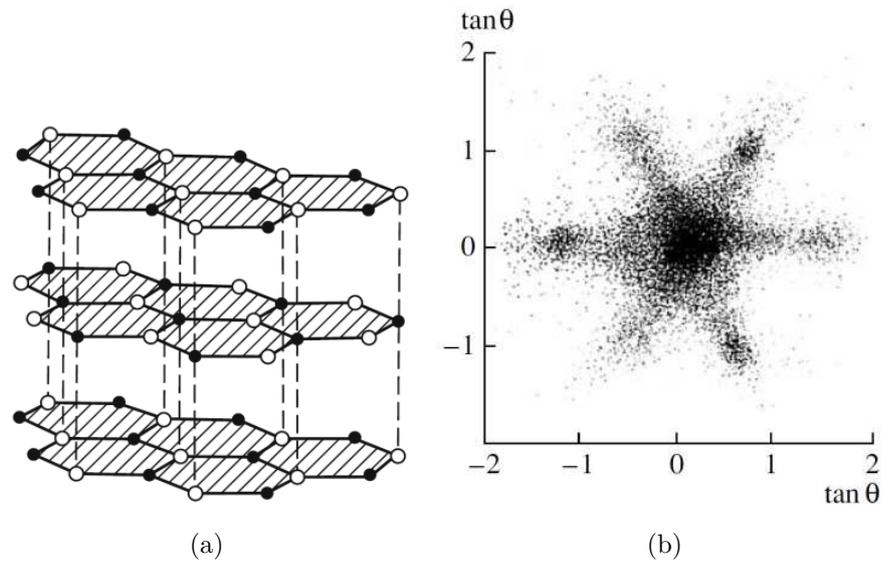


FIGURE 4.8 – (a) structure cristalline du nitrure de bore, (b) résultat de la simulation de la pulvérisation d'une structure BN de direction  $[001]$  par des ions  $\text{Ar}^+$  d'énergie 300 eV et d'incidence normale : distribution spatiale de la matière collectée (B et N) sur un collecteur plan[132].

rapport aux expériences sur du carbone amorphe. Hechtl et Bohdansky[66] ont, par exemple, mesuré à une énergie similaire (3 keV) un rendement supérieur d'un facteur dix. Cette tendance a également été observée par Roth[134] sur du graphite pyrolytique irradié sous les mêmes conditions ( $\text{He}^+$  à 3 keV), un rendement de pulvérisation ( $Y = 6 \times 10^{-2}$ ) similaire à nos résultats a été obtenu.

### 4.1.3 Conclusion

Par cette expérience, nous avons pu montrer les capacités de notre dispositif à mesurer la distribution angulaire de pulvérisation de matériaux carbonés. Les résultats obtenus sont compatibles avec ceux présents dans la littérature. Le phénomène d'angle préférentiel de pulvérisation est interprété par différentes théories, dont celle prenant en compte le caractère cristallin de la cible.

Afin de valider cette hypothèse, une expérience de pulvérisation d'une cible de carbone amorphe sera nécessaire par la suite.

## 4.2 Pulvérisation du tungstène

### 4.2.1 Protocole expérimental

Pour les expériences de pulvérisation du tungstène nous avons utilisé un collecteur de Si ne comportant qu'une couche d'oxyde native (contrairement au cas des expériences sur le HOPG) découpé en 12 morceaux de 5 mm de large. Afin de rester dans les mêmes conditions de calibration (section 3.5), cette couche d'oxyde a été retirée par pulvérisation. Des morceaux de wafer comportant une couche de 100 nm d'oxyde ont également été placés de part et d'autre du collecteur, ceci dans le but de localiser précisément le faisceau d'électrons du spectromètre Auger. La procédure de nettoyage et de fixation du collecteur sont identiques à celles présentées précédemment. La même cible de tungstène a été utilisée pour l'ensemble des expériences, un nettoyage de la cible à l'aide d'un faisceau d'ions  $\text{Ar}^+$  à 7 keV a été effectué avant chacune des irradiations. L'intensité du courant sur la cible était d'environ  $7 \mu\text{A}$  pendant trente minutes. Ce même faisceau d'ions a permis le nettoyage du collecteur. L'absence de vanne entre la ligne de faisceau et le dispositif PULSAR limite la pression à  $2 \times 10^{-8}$  mbar.

Un ensemble d'expériences a été effectué à l'aide de la ligne de faisceau intense. Le tableau 4.2 présente les différents paramètres expérimentaux.

TABLEAU 4.2 – Paramètres expérimentaux

ion	E (keV)	dose mesurée <sup>a</sup>	k <sup>b</sup>	dose réelle (ions)
$\text{He}^+$	7	$2.10 \times 10^{18}$	1.81	$1.16 \times 10^{18}$
$\text{Ne}^+$	7	$8.40 \times 10^{16}$	1.66	$5.05 \times 10^{16}$
$\text{Ar}^+$	3	$4.00 \times 10^{16}$	1.14	$3.52 \times 10^{16}$
$\text{Ar}^+$	5	$4.00 \times 10^{16}$	1.24	$3.22 \times 10^{16}$
$\text{Ar}^+$	7	$4.00 \times 10^{16}$	1.34	$3.00 \times 10^{16}$
$\text{Ar}^+$	9	$4.00 \times 10^{16}$	1.53	$2.62 \times 10^{16}$
$\text{Kr}^+$	3	$4.70 \times 10^{16}$	1.07	$4.38 \times 10^{16}$
$\text{Kr}^+$	5	$4.10 \times 10^{16}$	1.08	$3.80 \times 10^{16}$
$\text{Kr}^+$	7	$4.00 \times 10^{16}$	1.11	$3.61 \times 10^{16}$
$\text{Kr}^+$	9	$4.30 \times 10^{16}$	1.17	$3.69 \times 10^{16}$
$\text{Xe}^+$	7	$4.30 \times 10^{16}$	1.19	$3.62 \times 10^{16}$

<sup>a</sup> dose majorée du fait des électrons secondaires.

<sup>b</sup> coefficient d'émission des électrons secondaires.

### 4.2.2 Résultats et discussion

Les différentes distributions obtenues pour les irradiations par des ions argon et krypton à des énergies allant de 3 keV à 9 keV sont présentées en Figures 4.9 et 4.10. La Figure 4.11 présente les résultats obtenus dans le cas d'irradiation aux ions  $He^+$ ,  $Ne^+$ ,  $Ar^+$ ,  $Kr^+$  et  $Xe^+$  à énergie constante égale à 7 keV. Sur chacune des distributions, la modélisation par une fonction  $f(\theta) \propto \cos^n \theta$  est représentée. Cette fonction permet de décrire la tendance des distributions, on peut cependant remarquer une forte détection de tungstène pour l'angle de  $13^\circ$  ainsi qu'un léger épaulement aux alentours de  $50^\circ$ .

Les Figures 4.12 à 4.17 montrent le rendement de pulvérisation obtenu par intégration de la modélisation (à l'aide de l'équation 2.5). Le calcul des barres d'erreurs s'effectue par intégration des paramètres de modélisation sur leur intervalle de confiance (de 95%). Les valeurs maximales sont alors retenues comme l'amplitude de l'erreur. Les données relatives au rendement de pulvérisation et au paramètre  $n$  sont répertoriées dans le tableau 4.3.

TABLEAU 4.3 – Résultats expérimentaux

ion	E (keV)	$Y$	$n$
$He^+$	7	$0.023 \pm 0.004$	$0.33 \pm 0.06$
$Ne^+$	7	$0.58 \pm 0.13$	$0.53 \pm 0.10$
$Ar^+$	3	$1.07 \pm 0.28$	$0.62 \pm 0.12$
$Ar^+$	5	$1.06 \pm 0.22$	$0.48 \pm 0.08$
$Ar^+$	7	$1.07 \pm 0.19$	$0.66 \pm 0.08$
$Ar^+$	9	$1.18 \pm 0.25$	$0.90 \pm 0.12$
$Kr^+$	3	$1.36 \pm 0.26$	$0.44 \pm 0.07$
$Kr^+$	5	$1.82 \pm 0.47$	$0.59 \pm 0.11$
$Kr^+$	7	$1.74 \pm 0.53$	$0.77 \pm 0.18$
$Kr^+$	9	$1.55 \pm 0.49$	$0.79 \pm 0.16$
$Xe^+$	7	$2.80 \pm 1.03$	$1.07 \pm 0.22$

Les résultats obtenus sont comparés à ceux présents dans la littérature. On peut remarquer une légère sous-estimation par rapport aux autres résultats. Cette tendance peut provenir à la fois du coefficient de collage du tungstène sur le collecteur qui serait inférieur à un, ou de l'état de surface de la cible [135]. Comme cela a été montré pour d'autres éléments implantés [136], l'argon, introduit dans la cible lors du nettoyage, peut aussi avoir des effets sur le rendement de pulvérisation. Le rapport entre nos résultats et les résultats basés sur le modèle théorique proposé par Matsunami *et al* [137] est de  $55\% \pm 10\%$ .

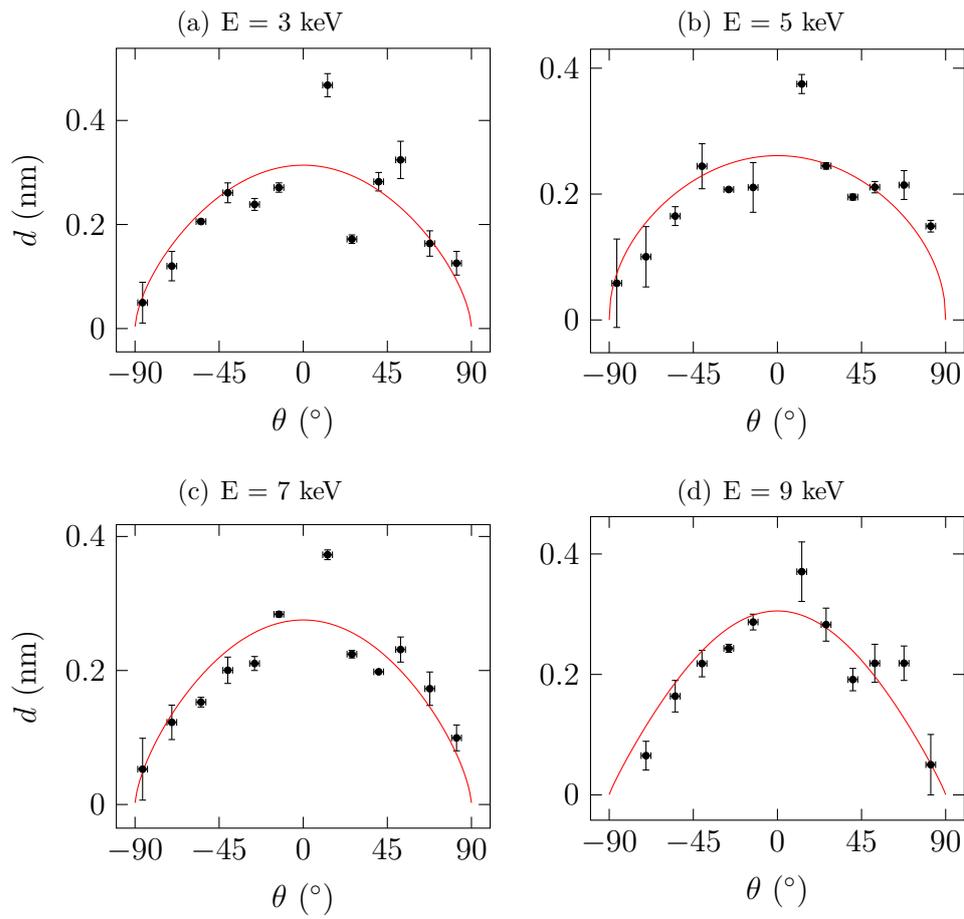


FIGURE 4.9 – Distribution angulaire de pulvérisation d’une cible de tungstène par des ions Ar<sup>+</sup> d’énergie de 3, 5, 7 et 9 keV.

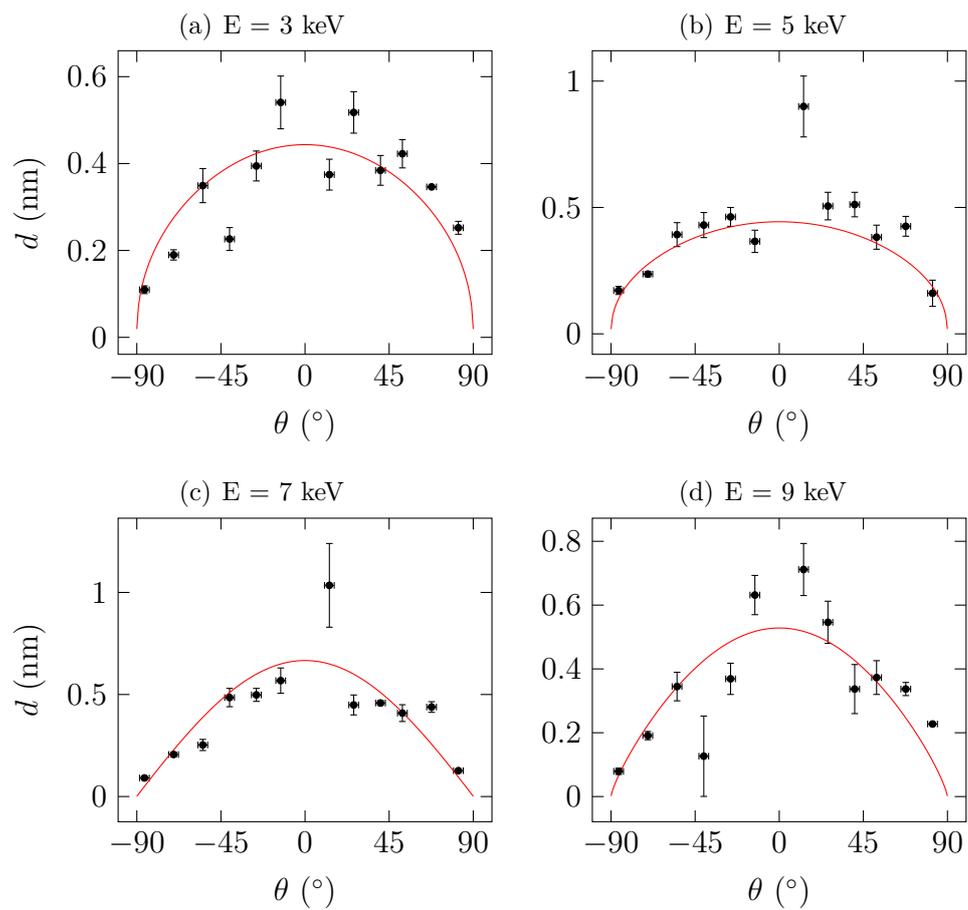


FIGURE 4.10 – Distribution angulaire de pulvérisation d’une cible de tungstène par des ions  $\text{Kr}^+$  d’énergie de 3, 5, 7 et 9 keV.

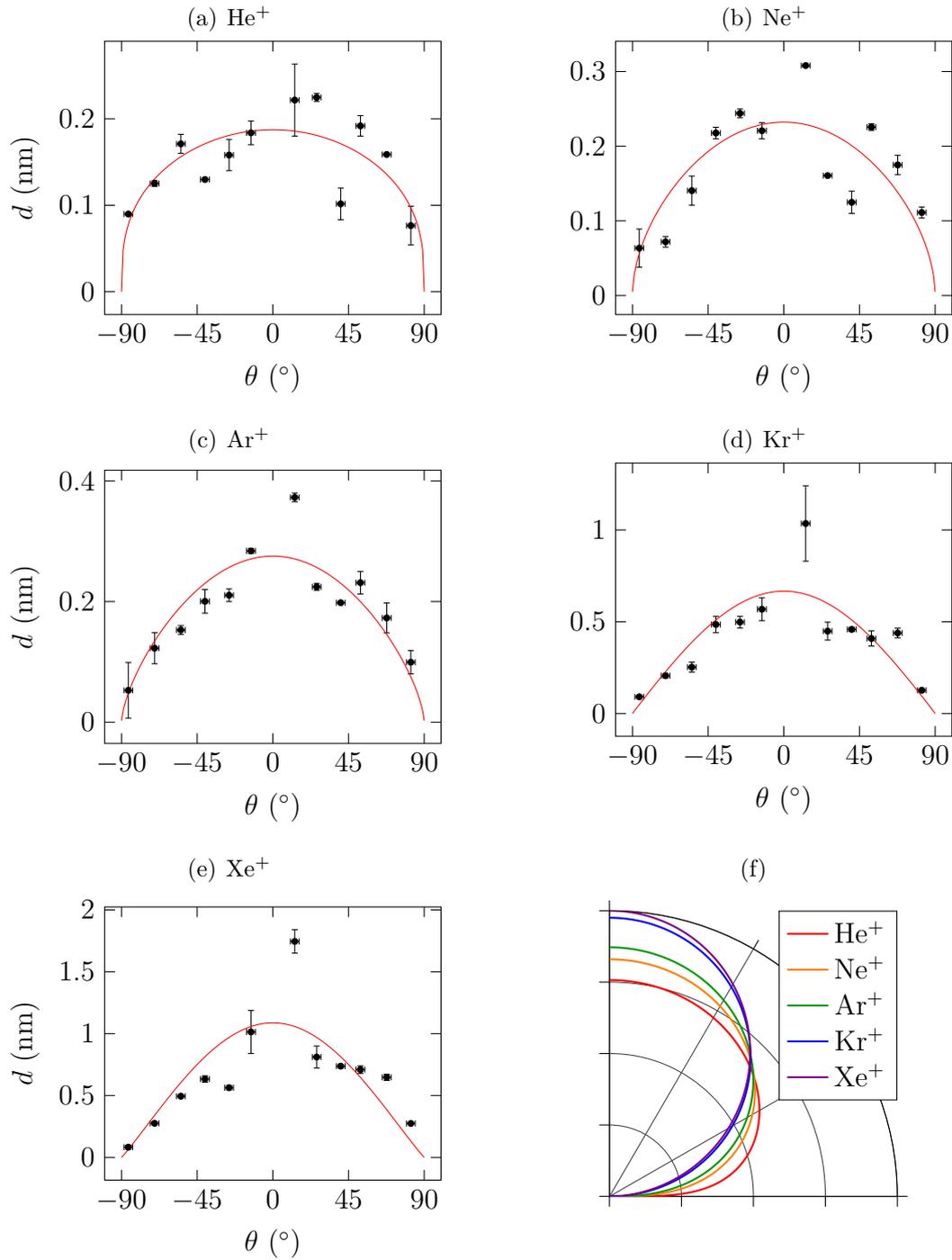


FIGURE 4.11 – Distribution angulaire de pulvérisation d’une cible de tungstène par différents ions d’énergie 7 keV : (a)  $\text{He}^+$ , (b)  $\text{Ne}^+$ , (c)  $\text{Ar}^+$ , (d)  $\text{Kr}^+$  et (e)  $\text{Xe}^+$ . (f) Projection angulaire normalisée (par rapport au rendement de pulvérisation) de la modélisation des différents résultats.

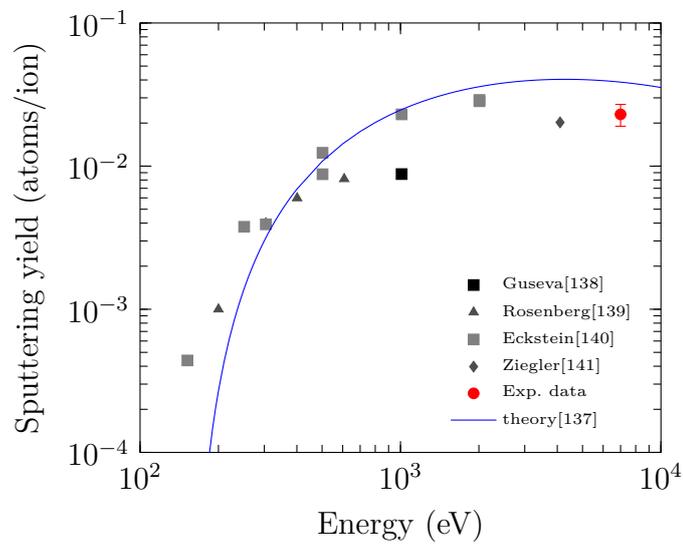


FIGURE 4.12 – Rendement de pulvérisation du tungstène irradié avec des ions He<sup>+</sup> en fonction de l'énergie du projectile

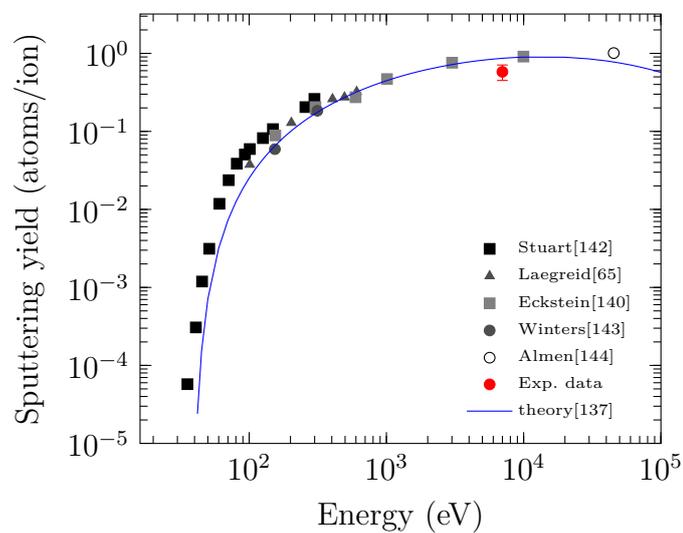


FIGURE 4.13 – Rendement de pulvérisation du tungstène irradié avec des ions Ne<sup>+</sup> en fonction de l'énergie du projectile.

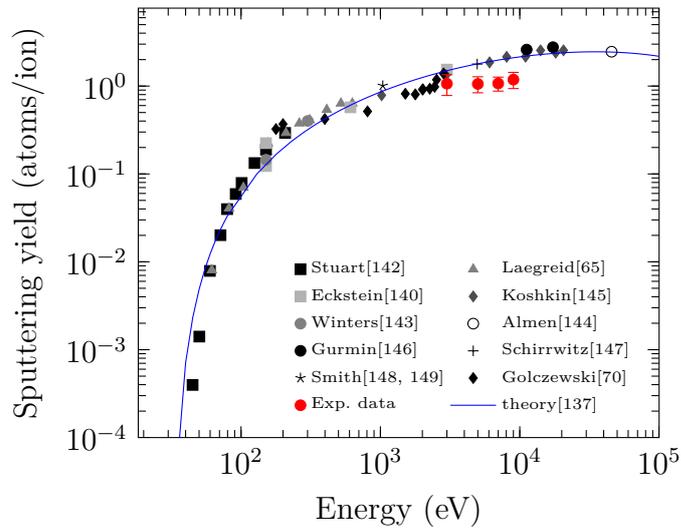


FIGURE 4.14 – Rendement de pulvérisation du tungstène irradié avec des ions Ar<sup>+</sup> en fonction de l'énergie du projectile.

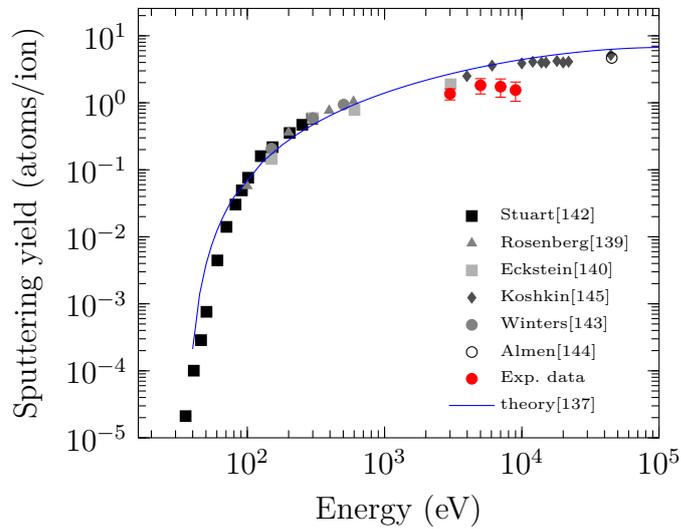


FIGURE 4.15 – Rendement de pulvérisation du tungstène irradié avec des ions Kr<sup>+</sup> en fonction de l'énergie du projectile.

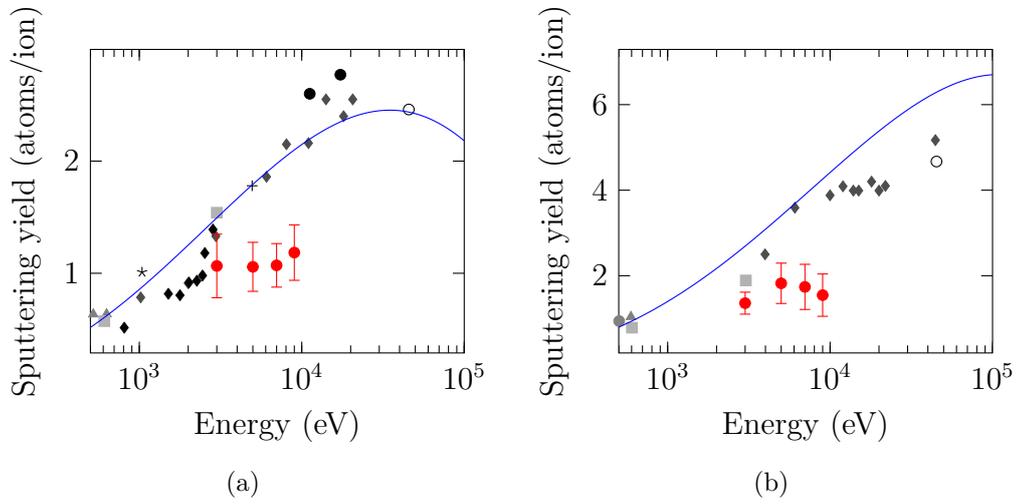


FIGURE 4.16 – Rendement de pulvérisation du tungstène irradié avec des ions  $\text{Ar}^+$  (a) et  $\text{Kr}^+$  (b) en fonction de l'énergie du projectile, légendes correspondantes en Figure 4.14 et 4.15.

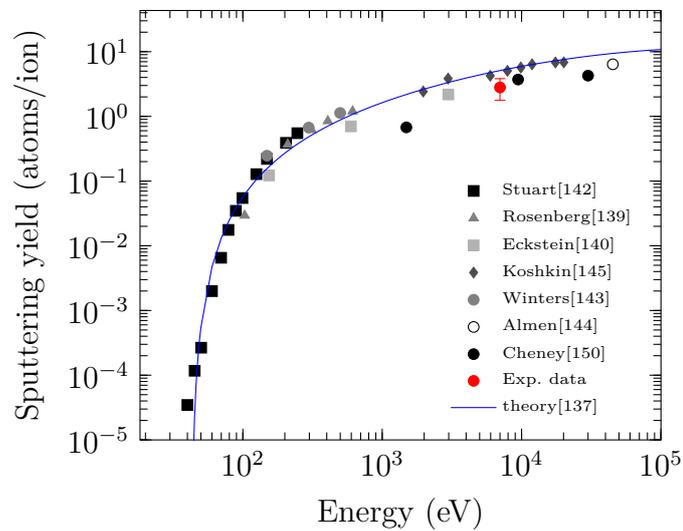


FIGURE 4.17 – Rendement de pulvérisation du tungstène irradié avec des ions  $\text{Xe}^+$  en fonction de l'énergie du projectile.

### 4.3 Interprétation de la distribution angulaire de pulvérisation

En complément du rendement de pulvérisation, nos mesures nous donnent des informations sur l'évolution de la distribution angulaire en fonction des conditions expérimentales. Les données présentées (Figures 4.18 à 4.20) sont comparées aux résultats obtenus à l'aide des modèles théoriques prédisant l'évolution de  $n$  en fonction des paramètres d'irradiation. Ces modèles prennent en compte différents phénomènes physiques comme une anisotropie au niveau de la cascade de collisions.

#### 4.3.0.a Modèle de de Thompson et Sigmund

Dans le domaine du keV, Sigmund[151] a développé un modèle prenant en compte la déviation des atomes lors des dernières collisions, il obtient la puissance du cosinus par la formule suivante :

$$n = 1 + (8/3) NC_0^{3/2} \quad (4.1)$$

avec  $N$  la densité atomique de la cible et  $C_0=1.81 \text{ \AA}^2$ , une constante définie par Sigmund[152]. Cette relation ne prend pas en compte la variation du paramètre  $n$  en fonction de la masse, ni de l'énergie du projectile, ce qui ne semble pas satisfaisant pour l'explication de nos résultats. Au delà de cela le modèle de Sigmund semble surestimer la valeur de  $n$ . Ce constat avait déjà été décrit par Vicanek[153], qui a conclu à une surévaluation de la constante  $C_0$  dans le cas de matériaux réfractaires (cubique centré).

#### 4.3.0.b Modèle de Roosendaal et Sanders

Le modèle de Roosendaal *et al*[154] permet de décrire l'évolution de la distribution angulaire de pulvérisation en fonction de l'angle d'incidence, de la masse de l'ion et de la cible ainsi que de l'énergie. Dans notre cas, l'incidence de l'ion est normale à la surface du matériau, la distribution angulaire de pulvérisation suit alors les équations suivantes :

$$Y(E, \psi \neq 0) \propto B(E) \cos \psi \left[ 1 + 6u^{1/2}C(E) \left\{ \frac{2 - 3 \cos^2 \psi}{4 \sin^2 \psi} - \frac{\cos^2 \psi}{2 \sin \psi} \left( 1 + \frac{1}{4 \tan^2 \psi} \ln \frac{1 - \sin \psi}{1 + \sin \psi} \right) \right\} \right] \quad (4.2)$$

$$Y(E, \psi = 0) \propto B(E) \cos \psi \left[ 1 + 8u^{1/2}C(E) \right] \quad (4.3)$$

avec  $B(E)$  une fonction dépendant uniquement de l'énergie de l'ion  $E$  et n'ayant aucune influence sur la distribution angulaire.  $\psi$  l'angle d'émission,  $u$  l'énergie de liaison et  $C(E)$  une fonction décrivant l'anisotropie de la densité des moments pouvant prendre différentes formes en fonction des mécanismes en jeu. L'ion incident peut transmettre un moment cinétique lors de la cascade de collision, ce phénomène est décrit par le cas I. Dans le cas II, le modèle prend en compte la rétrodiffusion du projectile, ceci est le cas lorsque la masse de l'ion est faible devant celle des atomes de la cible. Le cas III s'applique pour les irradiations à basse énergie, où l'ion perd son énergie à la surface du matériau.

$$C(E) = (\gamma E)^{-1/2} \quad (\text{Cas I}) \quad (4.4)$$

$$= \sqrt{\frac{M_1}{M_2}} E^{-1/2} g(E, T_0) \quad (\text{Cas II}) \quad (4.5)$$

$$= \sqrt{\frac{M_1}{M_2}} E^{-1/2} \quad (\text{Cas III}) \quad (4.6)$$

avec

$$\gamma = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} \quad (4.7)$$

et

$$g(E, T_0) = \frac{M_1 + M_2}{2M_1} + \frac{M_1 - M_2}{2M_1} \left( \frac{\gamma E/T_0}{\gamma E/T_0 - 1 - \gamma \ln(\gamma E/T_0)} \right) \quad (4.8)$$

avec  $M_1$  et  $M_2$  les masses respectives de l'ion et de l'élément de la cible.  $T_0$  l'énergie moyenne de recul.

Les résultats de modélisation ont été obtenus par l'équation 4.3 pour différentes valeurs de  $M_1$  et d'énergie pour les modèles décrits par le cas I et III. Le cas II n'est pas traité car il dépend du choix d'une valeur de la variable  $T_0$ , qui, elle-même, est dépendante de plusieurs paramètres. Nous avons pris comme énergie de liaison l'énergie de sublimation du tungstène (8.68 eV[24]). En vue d'une comparaison avec les données expérimentales, les résultats obtenus sont ajustés à l'aide de la fonction  $f(\psi) = A \cos^n \psi$ .

#### 4.3.0.c Modèle de Stepanova

Pour des ions de faibles énergies ( $E < 1$  keV), Stepanova *et al*[155] ont modifié le modèle de Roosendaal, précédemment cité, afin de décrire des observations

effectuées à basse énergie. Ils obtiennent alors :

$$n = 1 + \ln(\Delta + 1) / \ln 2 \quad (4.9)$$

avec

$$\Delta = -4(uM_1/EM_2)^{0.55} + \Delta_f \quad (4.10)$$

avec  $\Delta_f=0.1$  un paramètre empirique.

#### 4.3.0.d Comparaison modèles-expériences

Les Figures 4.18 et 4.19 représentent l'évolution du paramètre  $n$  en fonction de l'énergie du projectile pour les ions argon et krypton, son évolution en fonction de la masse du projectile est présentée en Figure 4.20. On peut tout d'abord constater la grande disparité des modèles qui ne permettent la description que sur un intervalle restreint d'énergie et de masse. On peut cependant remarquer que le modèle de Roosendaal, dans le cas I, permet une description de la tendance des phénomènes à la fois en fonction de l'énergie et de la masse du projectile.

Cette dispersion peut avoir des causes diverses. Au delà d'un problème expérimental, la différence de paramètre  $n$  peut être due à la pression résiduelle présente lors de la pulvérisation, Huang[80] a, en effet, montré le rôle significatif de la pression dans la distribution angulaire. Lors de l'irradiation de cibles d'argent avec des ions  $N^+$  d'énergie 5 keV, il a constaté une augmentation de  $n$  de 0.93 à 1.41 pour des pressions respectives de  $4.7 \times 10^{-8}$  mbar et  $2.7 \times 10^{-5}$  mbar. Dans la même série d'expériences, des irradiations ont également été effectuées avec des ions  $Ar^+$  de même énergie,  $n$  varie alors de 1.02 à 1.52 pour des pressions de  $1.1 \times 10^{-7}$  mbar et  $2.7 \times 10^{-8}$  mbar.

L'expérience de Emmoth[156] a été effectuée à une pression résiduelle de  $5.3 \times 10^{-8}$  mbar. Nous ne disposons malheureusement pas d'informations sur la pression lors de l'expérience d'Eckstein *et al*[157].

#### 4.3.0.e Modélisation empirique des résultats

Il est possible de modéliser les résultats obtenus et ceux de la littérature par une fonction choisie arbitrairement. Dans notre cas les données expérimentales semblent suivre la fonction  $n = AM^\alpha E^\beta$ , avec  $A$ ,  $\alpha$  et  $\beta$  des constantes,  $M$  et  $E$  la masse et l'énergie de l'ion. La Figure 4.21 illustre la relation de proportionnalité entre  $n$  et  $M^\alpha E^\beta$ . Les constantes obtenues par la méthode des moindres carrés sont :  $A = 1.90 \times 10^{-2}$ ,  $\alpha = 0.282$  et  $\beta = 0.279$  ( $\chi^2 = 1.74 \times 10^{-2}$ ). On peut constater la proximité des valeurs de  $\alpha$  et  $\beta$ .

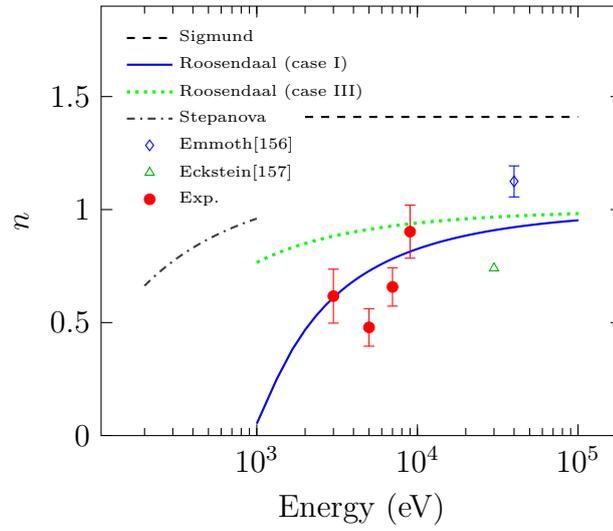


FIGURE 4.18 – Comparaison du paramètre  $n$  en fonction de l'énergie de l'ion  $\text{Ar}^+$  obtenu expérimentalement avec les différents modèles théoriques.

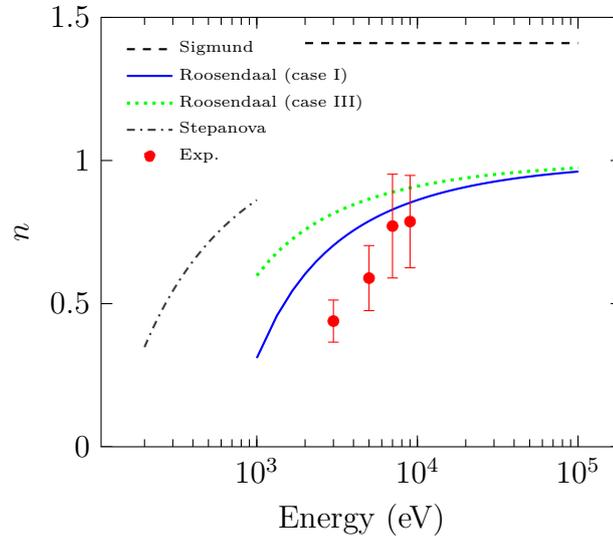


FIGURE 4.19 – Comparaison du paramètre  $n$  en fonction de l'énergie de l'ion  $\text{Kr}^+$  obtenu de façon expérimentale avec les différents modèles théoriques.

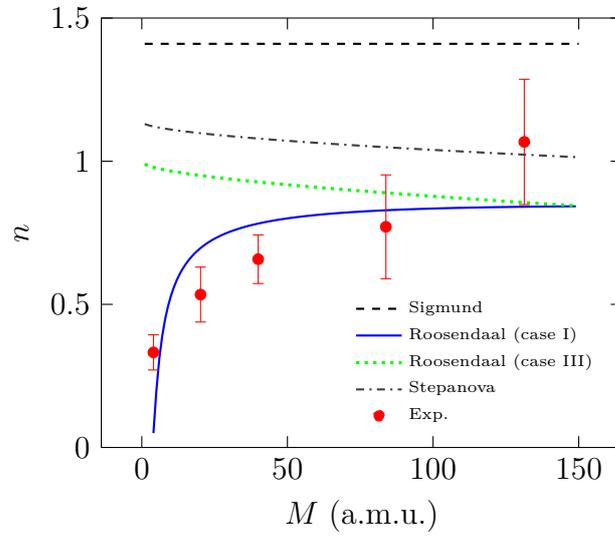


FIGURE 4.20 – Comparaison du paramètre  $n$  en fonction de la masse de l'ion  $M$  obtenu de façon expérimentale avec les différents modèles théoriques, pour une énergie de projectiles de 7 keV.

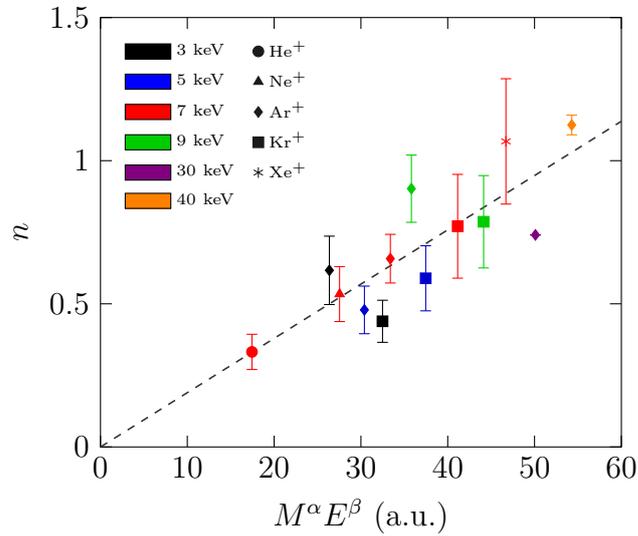


FIGURE 4.21 – Paramètre  $n$  en fonction de  $M^\alpha E^\beta$  avec  $\alpha = 0.282$  et  $\beta = 0.279$ .

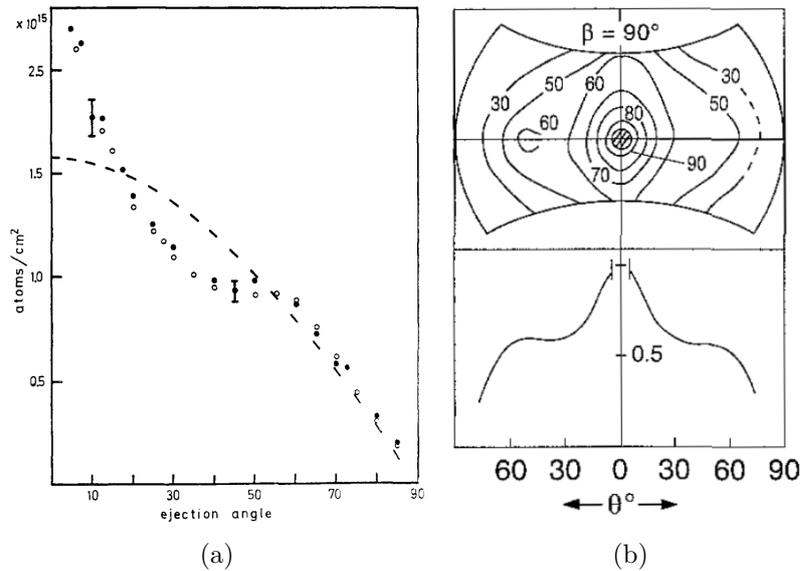


FIGURE 4.22 – Distribution angulaire de la pulvérisation de cibles de tungstène irradiées par des ions  $\text{Ar}^+$  d'énergie : (a) 40 keV[156] et (b) 30 keV[157]

#### 4.3.0.f Interprétation de la présence de l'épaulement

Un épaulement aux alentours de  $50^\circ$  a été constaté dans la totalité des distributions angulaires ainsi que lors des deux expériences présentées précédemment (Eckstein[157] et Emmoth[156]). La Figure 4.22 montre les épaulements obtenus pour des irradiations à 30 keV et 40 keV. Dans les deux cas, il a été conclu que cette observation proviendrait de la nature de l'échantillon, qui a subi un laminage toutefois, les origines du phénomène sont expliquées de façons différentes.

Eckstein *et al* attribuent l'épaulement à l'état de surface de l'échantillon (Figure 4.23(a)), cette observation avait déjà été faite lors de la pulvérisation de cible de cuivre[158]. La rugosité de surface est attribuée au processus de fabrication de la cible, le laminage, qui induit la création de rayures à la surface de l'échantillon. La mesure sur des échantillons polycristallins non laminés ne présente aucun épaulement, et vient valider cette hypothèse.

Le phénomène observé pourrait également provenir de la texture du matériau, créée, elle aussi, lors du laminage, Emmoth attribue en effet cette légère préférence angulaire de pulvérisation à la texture du matériau. Une étude récente[159] a également montré l'influence de l'orientation des grains sur la pulvérisation du tungstène. La Figure 4.24(a) montre la mesure de texture de la cible utilisée par Emmoth, la présence de pôles traduit la texturation de la

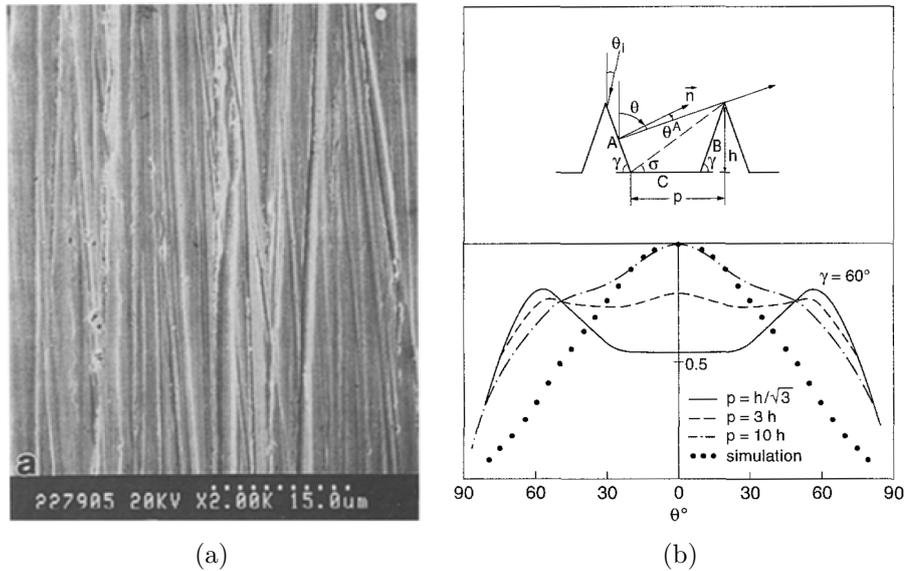


FIGURE 4.23 – (a) topographie de la cible de tungstène observée au microscope électronique à balayage, 4.23(b) schéma de la topographie de surface et simulation correspondante[157].

cible. Cette texturation est comparée à celle mesurée sur la cible utilisée lors de nos expériences Figure 4.24(b). La mesure de texturation a été effectuée à l'aide d'un diffractomètre à rayon X du laboratoire CRISMAT de Caen (Figure 4.25(a)). L'échantillon placé sur un goniomètre à deux axes, un détecteur sensible en position mesure la diffraction des rayons X sous différents angles. À partir des diffractogrammes recueillis (Figure 4.25(b) partie basse du graphique), on calcule la distribution d'orientation des grains du matériau. Pour cela un spectre théorique est produit à partir de différents paramètres initiaux tels que la structure cristalline, la taille des grains ou encore l'intensité du faisceau de rayon X. Ces paramètres sont affinés de sorte à reproduire le spectre obtenu par la mesure (Figure 4.25(b) partie haute du graphique). Les figures de pôles obtenues sont similaires à celles d'Emmoth, ce qui nous permet de conclure à une texture est équivalente.

### 4.3.1 Conclusion

L'ensemble des expériences de pulvérisation présentées dans ce travail a permis l'observation de l'évolution de la distribution angulaire de pulvérisation du tungstène selon différents paramètres de pulvérisation. Nous avons pu remarquer que les résultats obtenus pour des irradiations par des ions argon de basse

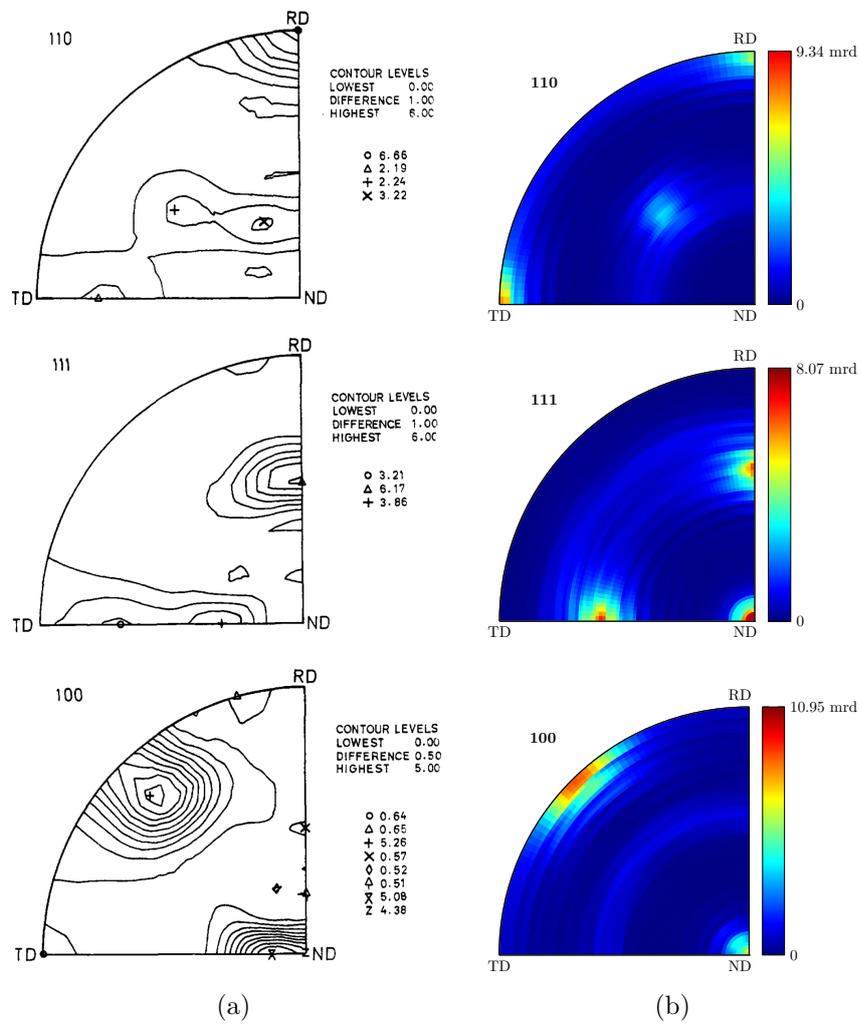
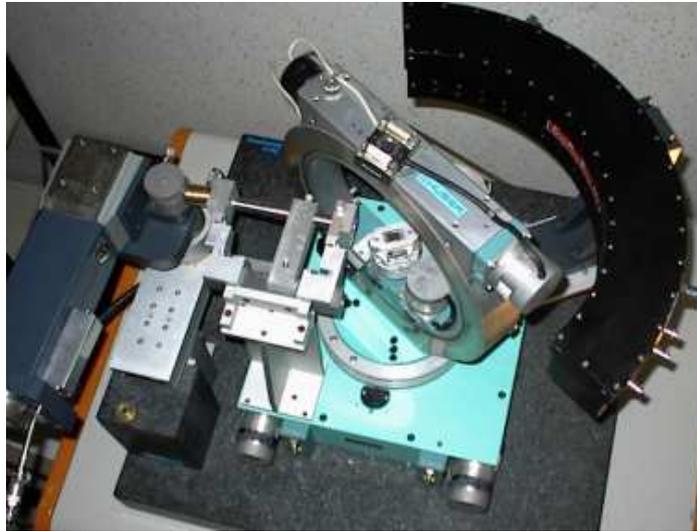
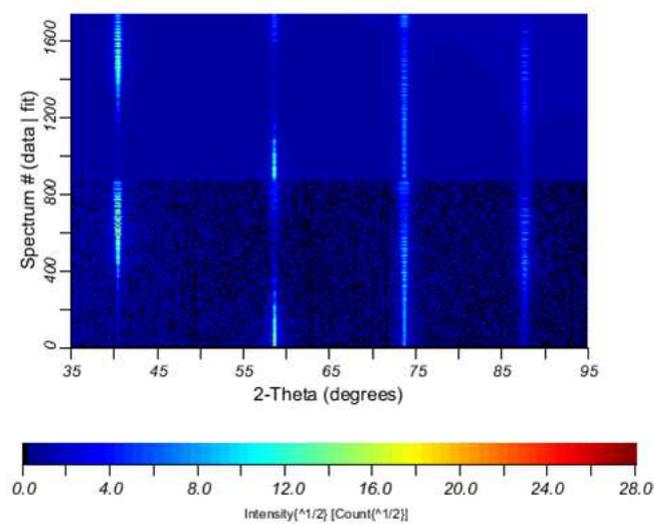


FIGURE 4.24 – Figure de pôles pour les orientations [110], [111] et [100] de la cible dans l'expérience d'Emmoth[156] (a) et de celle utilisée lors de nos expériences (b).



(a)



(b)

FIGURE 4.25 – (a) diffractomètre de rayon X pour l’analyse de texturation (CRISMAT, Caen)[160], (b) Compilation des diffractogrammes simulés (partie haute) et mesurés (partie basse).

énergie sont cohérents avec ceux obtenus à plus haute énergie.

Nous avons pu remarquer que les différents modèles existants ne sont pas bien adaptés à la description de l'évolution et que d'autres paramètres comme la pression résiduelle, jouent sans doute un rôle prépondérant dans l'orientation des particules éjectées de la surface. Tout comme les résultats obtenus pour le carbone, ceci illustre l'importance de la première couche atomique du matériau et de son interface avec le vide.

Nous avons enfin pu observer la présence de perturbation (épaulement) au niveau de la distribution angulaire de pulvérisation. La question reste en suspens quant à l'interprétation de ce phénomène qui pourrait provenir de la présence de texturation ou encore de rugosités de surface.

Afin de statuer sur l'une des deux hypothèses, il conviendrait de dissocier les deux paramètres que sont la rugosité et la texturation. Ceux-ci proviennent de la même origine qui est le laminage de l'échantillon lors de sa fabrication. Pour cela, il serait possible de polir de façon chimique la surface de l'échantillon (le polissage mécanique est à proscrire car il induirait un écrouissage et donc une modification cristalline à la surface de l'échantillon). La texturation de l'échantillon serait alors maintenue, ce qui permettrait d'isoler ce paramètre.

Il reste aussi à expliquer la forte détection de tungstène sur la partie centrale du collecteur (à  $\theta = 13^\circ$ ). Cette détection est récurrente et n'est pas symétrique par rapport à la normale.



## CHAPITRE

### 5

# CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Ce mémoire s'est attaché à exposer la mise en place d'un système de mesure *in situ* de distribution angulaire de pulvérisation par spectroscopie des électrons Auger. Nous avons également eu l'opportunité de présenter la mise en œuvre du dispositif sur les matériaux d'intérêt pour la fusion par confinement magnétique ainsi que les premiers résultats obtenus.

Nous avons abordé les différentes problématiques liées à la mesure de la pulvérisation ainsi que les choix techniques retenus pour le développement d'un dispositif ultra-vide utilisant la méthode collecteur, PULSAR.

L'analyse du collecteur par spectroscopie Auger est la partie essentielle de la mesure. Nous avons pu voir que l'analyse quantitative nécessite une grande vigilance non seulement dans le choix du modèle utilisé, mais également dans celui du couple collecteur/collecté. Des expériences de calibration nous ont permis de valider l'approche théorique et de déterminer une plage de mesure, que nous avons fixée de 0 à 1.5 nm pour le cas de couche mince de carbone et de 0 à 3 nm dans le cas du tungstène.

Une partie de cette thèse a également consisté à la mise en œuvre d'un ligne de faisceau d'ions. Cette dernière a permis la production de différents ions ( $\text{He}^+$ ,  $\text{Ne}^+$ ,  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{Kr}^+$  et  $\text{Xe}^+$ ) à des énergies variées (de 3 keV à 9 keV), ces ions ont permis l'analyse de la pulvérisation du tungstène.

Nous avons présenté des séries d'expériences effectuées à l'aide du dispositif PULSAR. Dans le cas de la pulvérisation du HOPG, nous avons pu montrer une distribution de la matière éjectée fortement liée au caractère cristallin de la cible. Dans le cas du tungstène, l'effet de la masse et de l'énergie du projectile

sur la distribution angulaire ont été étudiés. Dans ce cadre, nous nous sommes particulièrement concentrés sur le paramètre de distribution  $n$ . Sa comparaison avec des modèles théoriques montre que la tendance de nos résultats est similaire à celle obtenue par le modèle de Roosendaal. Nous avons également pu constater que l'ensemble de nos résultats peut être décrit par une fonction de type  $n \propto M^\alpha E^\beta$ , où  $M$  est la masse du projectile et  $E$  son énergie.

Afin d'accroître la compréhension des phénomènes observés, ces expériences peuvent être complétées par d'autres expériences portant sur le carbone, le tungstène ou bien tout autre matériau. Le dispositif PULSAR a, en effet, été développé dans le but d'étudier la pulvérisation de matériaux d'intérêt pour la fusion nucléaire, il n'est cependant pas restreint à ce type de matériaux. On peut donc envisager, lorsque la spectroscopie des électrons Auger le permet, l'étude d'autres matériaux. Ces études bénéficieraient des avantages de la méthode de mesure comme la grande sensibilité de la spectroscopie AES et de l'analyse *in situ*.

L'étude de la pulvérisation n'est d'ailleurs pas l'unique application de notre dispositif, il peut se révéler particulièrement efficace dans l'étude du coefficient de collage d'un élément sur un autre. À plus long terme, des évolutions du dispositif permettront une plus large gamme d'expériences, comme par exemple la mise en place d'un système de décélération.

## 5.1 Perspectives à court terme

Afin d'améliorer la compréhension des résultats obtenus et de valider certaines hypothèses, des expériences complémentaires doivent être réalisées. Dans le cas de l'étude du HOPG, nous pensons que la distribution angulaire de pulvérisation provient de son caractère cristallin. Cette observation a été faite sur plusieurs matériaux à structure cristalline hexagonale. Cette conclusion n'est cependant pas partagée par Eckstein[125] qui attribue la distribution aux atomes éjectés lors des premières collisions (PKA). Afin d'obtenir un avis tranché sur la question, il est nécessaire d'effectuer une mesure de distribution pour une cible de carbone amorphe. Des cibles de ce type ont été réalisées à l'aide de l'évaporateur de carbone et vont être étudiées très prochainement.

L'étude sur les matériaux carbonés doit être élargie aux composites de fibres de carbone, notamment à celles utilisées dans le domaine de la fusion thermonucléaire. En effet, ces matériaux sont fortement anisotropes ce qui aura inévitablement un impact sur la distribution de pulvérisation. Cette étude demandera cependant une certaine vigilance quant à la présence d'impuretés dans les fibres. Le potassium est un polluant des fibres de carbone[161] et émet des électrons Auger à des énergies proches de ceux du carbone ( $K_{LMM} = 250$  eV).

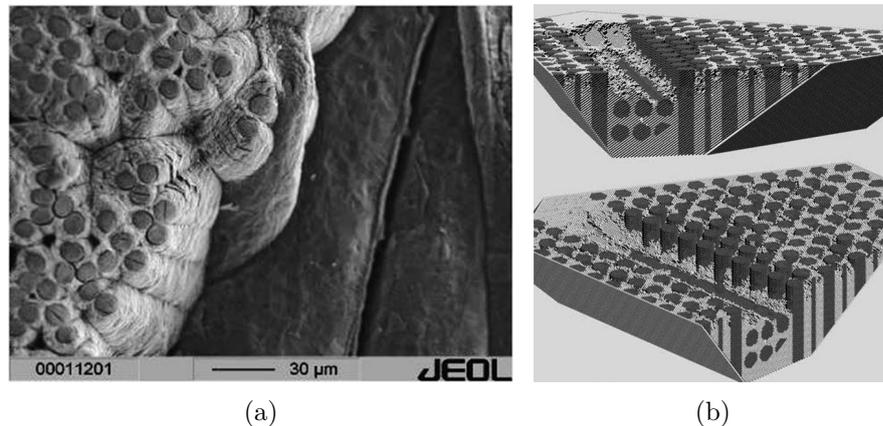


FIGURE 5.1 – (a) Érosion par immersion plasma de composites de fibres de carbone, (b) simulation numérique de l'érosion[162].

Notre dispositif permet l'étude de la pulvérisation à partir de morceau de tuile de tokamak, il serait alors intéressant d'étudier les différences de comportement entre une fibre "neuve" et une fibre ayant séjourné dans un réacteur. Au contact du plasma, l'érosion des fibres dépend principalement de leurs orientations[162], la Figure 5.1 montre l'érosion d'une tuile de tokamak après immersion plasma, on peut y voir que les fibres transverses ont subi une érosion importante par rapport aux fibres parallèles à la surface. La structure créée peut alors influencer sur les mécanismes de pulvérisation et le carbone redéposé sur les tuiles de tokamak peut aussi avoir des formes variées[163], qui pourraient traduire une pulvérisation différente.

Nos résultats sur la pulvérisation du tungstène ont montré une cohérence face aux données expérimentales présentes dans la littérature. Nous avons pu remarquer que la distribution angulaire est particulièrement proche du modèle proposé par Roosendaal.

Afin de mieux percevoir l'évolution de la distribution angulaire, nous devons augmenter le nombre de données expérimentales, notamment en élargissant la gamme d'énergie pour chacun des projectiles.

La question de l'origine des épaulements n'est pas totalement tranchée, nous avons pu voir que son origine peut être attribuée à la texturation ou à la rugosité de la cible. Ces deux caractéristiques sont liées à la fabrication de la cible (par laminage) ce qui rend difficile leur dissociation. Pour obtenir une cible texturée non rugueuse, on peut envisager son polissage, un polissage mécanique étant évidemment à proscrire car il induirait un écrouissage en surface. On peut se tourner vers des techniques de polissage chimique ou par bombardement ionique, il faut cependant veiller à ce que ceux-ci ne perturbent pas la texturation

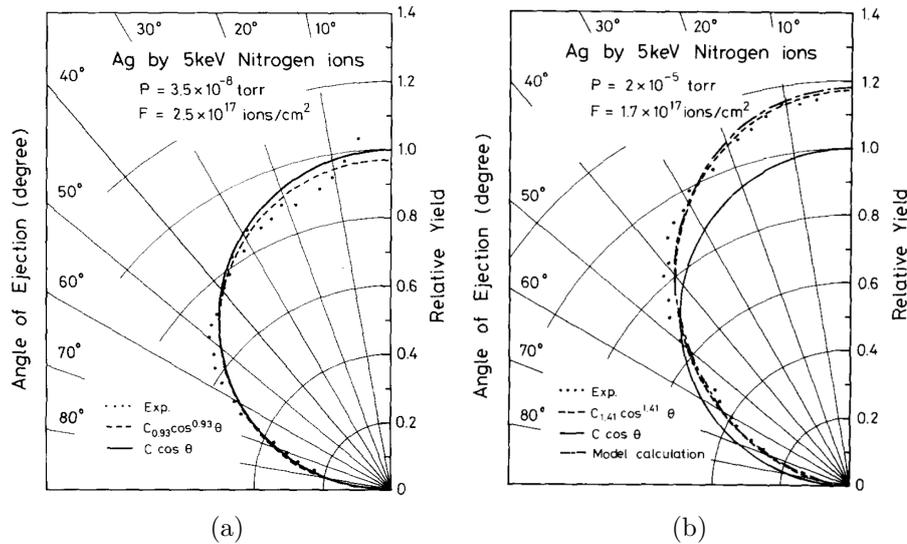


FIGURE 5.2 – Distribution angulaire d’une cible d’argent sous différentes pressions partielles[80].

existante.

Tout comme pour l’étude des matériaux carbonés, nous pouvons envisager l’étude de matériaux provenant de réacteur. Il sera alors possible d’étudier l’effet de la déformation de surface due au plasma sur le rendement de pulvérisation.

L’étude de l’effet des gaz résiduels sur la pulvérisation peut se révéler importante. L’étude de Huang a, en effet, montré que la pression partielle a une influence majeure sur la distribution angulaire de pulvérisation[80]. À titre d’exemple la Figure 5.2 montre l’effet de celle-ci sur la pulvérisation de cible d’argent par des ions azote d’énergie 5 keV pour des pressions de  $4.7 \times 10^{-8}$  mbar et  $2.7 \times 10^{-5}$  mbar.

Notre dispositif est idéal pour ce type de mesures, il serait intéressant de compléter l’étude de Huang en observant l’effet sur la distribution angulaire de pulvérisation d’une cible de plusieurs gaz à différentes pressions partielles. Des investigations doivent aussi être portées sur la nature de l’interaction entre le gaz et le matériau cible (ex chimisorption ou physisorption). Il serait alors possible de corrélérer ce type d’étude au domaine de la fusion nucléaire où la présence d’impuretés en surface entraîne une modification de la pulvérisation[15].

L’origine du changement de distribution est sans doute corrélée à la modification de l’énergie de surface par la couche de gaz adsorbée<sup>1</sup>. Nous avons vu

1. On pourrait imaginer qu’un atome pulvérisé subisse deux réfractions : une première lors du passage de l’interface cible - couche de gaz adsorbé et une seconde à l’interface gaz adsorbé - vide. Chacune de ces interfaces ayant leur propre énergie de liaison.

précédemment (section 1.3) que ce potentiel de surface joue un rôle prépondérant dans les mécanismes de pulvérisation. Une telle étude nous permettra d'améliorer les connaissances sur ce paramètre qui est généralement déterminé de façon arbitraire. La principale difficulté technique d'une telle expérience serait la mesure de la pression au niveau de la cible. Sous vide moléculaire il peut, en effet, y avoir de grande disparité de pression au sein de l'enceinte. Les différentes pressions peuvent néanmoins être relevées de manière relative.

En dehors de l'étude de pulvérisation, le dispositif PULSAR peut permettre l'étude du coefficient de collage d'un élément sur une surface de manière relative. Le coefficient de collage peut être mesuré de manière complexe[164], l'emploi de notre dispositif peut palier cette difficulté en proposant des études comparatives entre différents matériaux.

Les coefficients de collage représentent une donnée importante pour toute étude utilisant la méthode collecteur ou lors de dépôts de couches minces. Dans certains cas le choix du substrat est déterminé par des paramètres extérieurs et le coefficient de collage n'est pas connu. On peut, par exemple, citer le cas des collecteurs utilisés dans les tokamaks où les qualités réfractaires des collecteurs sont avant tout mises en avant, le coefficient de collage n'est alors estimé que qualitativement<sup>2</sup>.

Le principe de la mesure du coefficient de collage à l'aide de notre dispositif est le suivant (Figure 5.3(a)) : on place deux collecteurs de matériaux différents en regard de la cible. Lors de l'irradiation de la cible, les collecteurs se couvrent de la matière pulvérisée et sont ensuite analysés par spectroscopie Auger. Le rapport de quantité de matière collectée correspond au rapport de coefficients de collage entre les deux matériaux.

La mesure par spectroscopie Auger présente ici un avantage majeur : le coefficient de collage d'un matériau sur un autre n'est strictement valable que pour les premières couches atomiques déposées (pour des couches plus épaisses il s'agit du coefficient de collage du matériau sur lui-même), la spectroscopie Auger est donc la technique appropriée à ce type de mesure. La seule précaution à prendre lors de la mesure est de s'assurer que la pulvérisation du matériau est bien symétrique et que les collecteurs sont situés à un angle identique de la normale.

Une expérience test a déjà été effectuée : lors de la calibration du spectromètre Auger pour le tungstène (voir section 3.5), un second collecteur de carbone (HOPG) a été placé à un angle opposé de la cible. La Figure 5.3(b) montre l'évolution de l'intensité du pic Auger  $C_{KLL}$ . En modélisant les données

---

2. Ce sujet a notamment été abordé lors d'une conversation avec C. Linsmeier de l'IPP (Max-Planck-Institut für Plasmaphysik) à la conférence IISC-19 (19th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions).

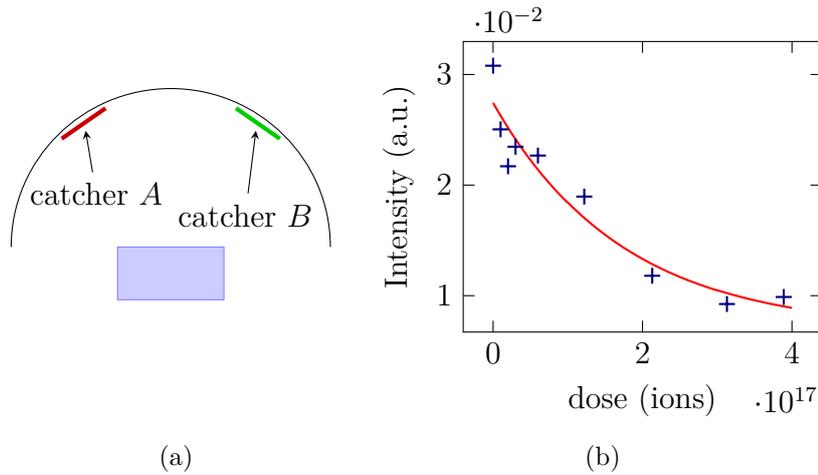


FIGURE 5.3 – (a) Technique de mesure du coefficient de collage, (b) atténuation du signal Auger  $C_{KLL}$  lors du dépôt de tungstène sur un catcher HOPG.

obtenues par les modèles théoriques présentés précédemment, on obtient un coefficient  $\alpha = 2.8 \times 10^{-18}$  nm/ions contre  $\alpha = 7.4 \times 10^{-18}$  nm/ions pour le cas du collecteur silicium (section 3.5). Le rapport de ces deux paramètres nous donne le coefficient de collage relatif du tungstène sur le carbone par rapport à celui du silicium. Le carbone aurait une propension plus faible à collecter le tungstène que le silicium, il ne collecterait que 40% de matière par rapport à ce dernier.

Ces résultats ne sont cependant pas strictement valables et ne sont donnés qu'à titre indicatif. En effet la suite des études de pulvérisation nous a montré que le flux de matière pulvérisée n'était pas symétrique par rapport à la normale.

## 5.2 Perspectives à long terme

Notre dispositif peut évoluer afin de permettre une plus large gamme d'expériences. En voici ici les principales améliorations.

Les dépôts de matière collectée sont mesurés à l'aide de l'intensité de différents pics du spectre Auger. Nous avons vu précédemment (section 3.2) que l'intensité d'un pic Auger ou du pic élastique est proportionnelle à l'intensité du faisceau d'électrons primaires. Le dispositif PULSAR ne permet pas la mesure de l'intensité de ce faisceau. Nous avons pu montrer lors de la calibration du détecteur que celui-ci est suffisamment stable pour considérer son intensité comme constante. Dans le cas contraire, il est possible de recourir à des échantillons étalons ou bien d'effectuer le rapport entre l'intensité des pics, comme

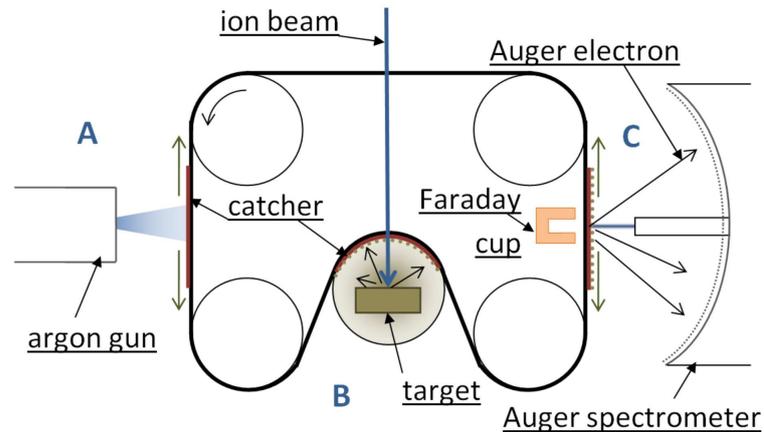


FIGURE 5.4 – Vue schématique de PULSAR, emplacement d’une éventuelle cage de Faraday.

utilisés lors de la mesure de dépôts de carbone.

Ces différentes méthodes peuvent être évitées en introduisant dans le dispositif une cage de Faraday capable de mesurer l’intensité du faisceau primaire, celle-ci pourrait être placée en regard du canon juste derrière la courroie (Figure 5.4). L’intensité du faisceau d’électrons serait alors mesurée en faisant passer celui-ci par l’un des orifices de la courroie.

Les particules présentes dans les plasmas des tokamaks ont, pour la majorité, une énergie plus faible que celles utilisées lors de nos études (de l’ordre de la centaine d’eV, Figure 5.5(a)). Nous avons montré précédemment les difficultés à obtenir un faisceau de basse énergie en intensité suffisante (section 2.3.1), la difficulté majeure étant de transporter les faisceaux de basse énergie.

Pour palier à ce problème nous pouvons envisager la décélération du faisceau d’ions à proximité de PULSAR. Pour cela il est possible de polariser le dispositif positivement par rapport à la masse, l’énergie des ions correspondrait alors à la différence entre le potentiel d’accélération de la source et le potentiel du dispositif. Le déplacement des ions dans la ligne serait effectué, quant à lui, à des énergies suffisantes pour éviter la perte d’intensité et permettre le passage dans les différents instruments (tels que des dipôles d’analyse ou des filtres de Wien).

Tout comme pour la ligne de très basse énergie, une série de lentilles de décélération est à prévoir pour garder le faisceau d’ions focalisé lors de sa décélération. On peut, éventuellement, envisager la présence d’électrodes de part et d’autre de la courroie pour achever la décélération à quelques centimètres de la cible. Il faut cependant rester vigilant quant au diamètre de l’impact du

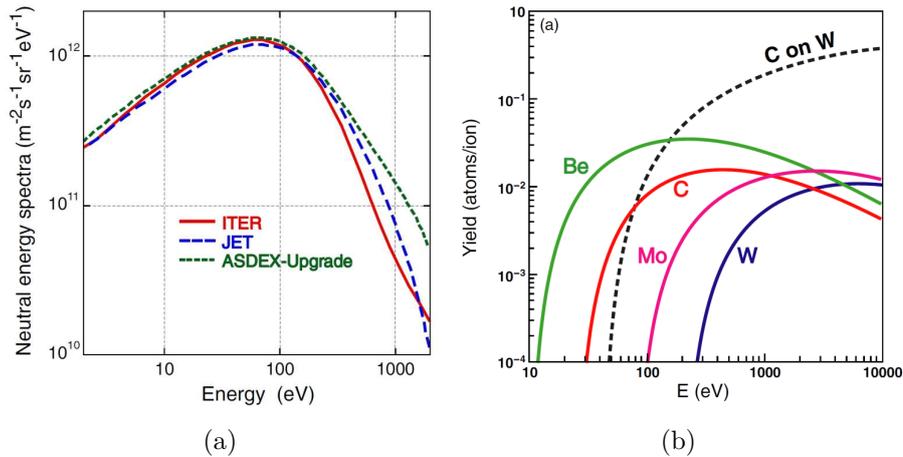


FIGURE 5.5 – (a) Distribution en énergie des particules neutres émises du plasma pour différents tokamaks ITER, JET et ASDEX, (b) rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie du projectile ( $D^+$ ) pour différents matériaux[165].

faisceau, celui-ci devant être le plus petit possible.

Nous avons pu voir lors de nos expériences que l'état de l'extrême surface du matériau a une incidence majeure sur la pulvérisation. Il est possible de modifier notre dispositif afin d'être en mesure de préparer et de caractériser cette surface. Pour cela nous pouvons envisager la présence d'un diaphragme situé au niveau de l'étrier porte cible (pièce 20, Figure 2.4 et Figure 2.7(b) page 40) et à l'aide d'un manipulateur il serait possible d'y introduire des cibles en vue de leur irradiation. Ces cibles peuvent alors être déplacées pour leur préparation et leur analyse avant ou après irradiation.

On peut, par exemple, imaginer la caractérisation de la surface des cibles à l'aide de microscope à force atomique, ou à effet tunnel. L'amorphisation de la cible peut également être mesurée à l'aide de la diffraction des électrons lents.

La préparation de cibles peut aussi faire l'objet d'une étude approfondie. Il a, par exemple, été montré que le polissage d'échantillons de carbone pyrolytic augmente de façon significative le rendement de pulvérisation, notamment dans le cas de pulvérisation par des faisceaux de  $C^+$ [166]. Ce rendement peut sous certains angles d'incidence du faisceau, dépasser l'unité, ce qui, dans le cadre de la fusion, est catastrophique. La population d'impuretés dans le plasma peut alors s'accroître soudainement causant l'arrêt du réacteur. Outre le polissage des surfaces, on pourrait élaborer différentes couches minces, ce type de configuration peut d'ailleurs simuler des cas présents dans les tokamaks où le carbone peut se redéposer sur une autre paroi de tungstène, le rendement de

pulvérisation peut alors être grandement modifié (Figure 5.5(b)).

L'installation d'un système de sas, dans lequel seraient introduites les cibles, peut enfin réduire le temps de pompage de manière conséquente.



# TABLE DES FIGURES

1	(a) Plan d'ensemble du réacteur ITER[3], (b) Vue en coupe du tokamak[4]. . . . .	6
2	(a) Nombre de décharges plasma requises pour atteindre les limites de sécurité concernant la production de poussières, l'érosion et la rétention de tritium, (b) rendements de pulvérisation des différents composants d'ITER[6]. . . . .	7
1.1	Schéma d'une collision binaire. . . . .	12
1.2	(a) Énergie maximale transférée (normalisée) en fonction du rapport $m_1/m_2$ . (b) Énergie résiduelle normalisée du projectile après collision en fonction de $\theta$ . . . . .	13
1.3	Dispersion en énergie d'un faisceau d'ions $\delta r$ après le passage à travers une couche mince de matière. . . . .	14
1.4	Répulsion coulombienne dans le référentiel du centre de masse. . . . .	15
1.5	Pouvoir d'arrêt de tungstène pour un ion d'argon en fonction de l'énergie calculé à partir de code SRIM[24]. . . . .	17
1.6	Différents régimes de pulvérisation nucléaire : (a) régime de collisions simples, (b) régime de cascade linéaire, (c) régime de cascade non-linéaire. . . . .	18
1.7	Simulation Monte Carlo de l'irradiation de Ni par un faisceau d'ion $H^+$ en incidence normale, contribution des différents processus de pulvérisation[25]. . . . .	19
1.8	(a) Réfraction induite par le franchissement d'un potentiel de surface plan. (b) Évolution du rendement de pulvérisation en fonction du modèle de potentiel de surface et de l'énergie de surface ( $E_s = U_s$ )[28]. . . . .	21

1.9	Distribution angulaire de pulvérisation d'une cible monocristalline d'or irradiée par un faisceau d'ions Hg d'énergie 100 eV (gauche et droite) et 50 eV (centre)[44]. . . . .	24
1.10	Schéma d'une séquence de collisions focalisée[46]. . . . .	25
1.11	(a) Modèle de transparence, (b) Dépendance angulaire de la pulvérisation d'une cible de cuivre (1 0 0) par des ions argon et néon d'énergie 20 keV[51]. . . . .	26
1.12	(a) Cône d'ombrage produit par un atome, (b) Dépendance angulaire de la pulvérisation d'un cristal de cuivre orienté (1 0 0) irradié à 20 keV[56]. . . . .	27
1.13	Simulation par dynamique moléculaire de l'impact d'un atome d'or d'énergie 16 keV sur des cibles plane (a) et sphérique (b) d'or[63]. . . . .	29
2.1	Rendement de pulvérisation en fonction du numéro atomique de la cible, irradiation à l'aide de l'ion Ne <sup>+</sup> à 600 eV[65]. . . . .	32
2.2	Prototype de PULSAR utilisant une chaîne. . . . .	36
2.3	Représentation numérique de l'enceinte sous vide du dispositif expérimental. . . . .	37
2.4	Plan de PULSAR . . . . .	37
2.5	Plan de PULSAR. . . . .	38
2.6	Vue schématique de PULSAR. <b>A</b> zone de nettoyage des collecteurs, <b>B</b> zone d'irradiation et <b>C</b> zone d'analyse. . . . .	39
2.7	Dispositif PULSAR : (a) vue du système de poulies, le faisceau d'ions arrivant par le haut de l'image.(b) porte cible fixé dans l'étrier. . . . .	40
2.8	Jimmy vu à travers le dispositif PULSAR. . . . .	41
2.9	Sphère d'émission des particules secondaires . . . . .	42
2.10	Mesure du rendement d'émission électronique secondaire : (a) principe de mesure, (b) rendement d'émission du tungstène en fonction de l'ion et de l'énergie. . . . .	43
2.11	Vue schématique de la courroie au niveau de la cible de pulvérisation . . . . .	44
2.12	Vue schématisée du dispositif PULSAR au niveau de la poulie creuse. . . . .	44
2.13	Détermination des angles $\alpha$ et $\alpha'$ . . . . .	45
2.14	Correction de l'épaisseur de matière déposée . . . . .	45
2.15	Mesure de dispersion en énergie : (a) schéma de la coupelle de faraday munie d'un analyseur à champ retardant. (b) Mesure de la dispersion en énergie d'un faisceau de Ar <sup>8+</sup> décéléré de 7 keV/q à 700 eV/q. . . . .	48

2.16	Principe de fonctionnement de la source à filament . . . . .	49
2.17	Ligne de faisceau intense . . . . .	51
2.18	Schéma de la ligne de faisceau intense . . . . .	51
2.19	Ensemble d'extraction de la source Mono1000[90] . . . . .	52
2.20	Principe de fonctionnement du filtre de Wien . . . . .	53
2.21	Réglage des électrodes d'extraction : (a) schéma de la coupelle de faraday munie d'un système de définition d'émittance. (b) Intensité d'un faisceau de $\text{He}^+$ à 5 keV lors du balayage des potentiels d'extraction. . . . .	55
2.22	(a) Résultat d'une simulation du filtre de Wien et de la lentille d'einzels à l'aide du logiciel Simion. (b) Calibration du filtre de Wien. . . . .	56
2.23	Caractéristiques du filtre de Wien : (a) Spectre de masse pour un faisceau de $\text{Kr}^+$ à 7 keV. (b) Réglage théorique et expérimental du filtre de Wien en fonction de l'ion et de son énergie. . . . .	56
3.1	Nombre d'électrons $N$ en fonction de leurs énergies $E$ . . . . .	60
3.2	Différents Processus d'émissions d'électrons de la surface . . . . .	61
3.3	Représentation schématique de l'émission Auger d'un atome isolé. . . . .	61
3.4	Spectre des électrons Auger $KLL$ du néon[91]. . . . .	63
3.5	Energie de liaison $E_K, E_{L_{1,2,3}}, E_{M_{1,2,3}}$ et probabilité d'émission Auger $a_K, a_L$ en fonction de $Z$ [91]. . . . .	64
3.6	Evolution de la section efficace d'ionisation en fonction de l'énergie du faisceau primaire[93]. . . . .	64
3.7	Probabilité relative d'émission Auger en fonction de $Z$ [79] . . . . .	65
3.8	(a) Emission Auger $L_{2,3}VV$ du silicium[93]. (b) Double pic $\text{Si}_{LVV}$ émis depuis une matrice de $\text{SiO}_2$ . . . . .	66
3.9	Effet de l'environnement chimique sur la transition $MNV$ du Sb[94] . . . . .	67
3.10	(a) Courbe universelle du libre parcours moyen[98]. (b) Angle $\theta$ d'émission. . . . .	69
3.11	Évolution du courant Auger $\text{Mo}_{NVV}$ d'une couche de Mo déposée sur W en fonction de son épaisseur exprimée en monocouche[107]. . . . .	72
3.12	LEED-Augur utilisé pour les mesures du collecteur : (a) vue d'ensemble, (b) canon à électrons et grilles hémisphériques. . . . .	74
3.13	Principe de fonctionnement de l'analyseur à champ retardant . . . . .	75
3.14	Principe de fonctionnement de la détection synchrone . . . . .	75
3.15	Représentation du dispositif X.Y.TOF.SIMS AODO avec la chambre de préparation et la chambre d'irradiation. . . . .	78
3.16	Évaporateur de carbone : (a) principe de fonctionnement, (b) photo du dispositif. . . . .	78

3.17	(a) Photo de la balance à quartz, (b) croissance de couche de carbone mesurée au cours du temps. . . . .	79
3.18	Spectre Auger d'un échantillon de SiO <sub>2</sub> recouvert d'une couche de carbone amorphe. . . . .	81
3.19	Effet de l'amplitude de modulation de l'amplificateur à détection synchrone : (a) Pic élastique normalisé d'un faisceau d'électron d'énergie 1 keV, (b) évolution de l'amplitude normalisée de $\Delta C$ et de $\Delta EP$ en fonction de l'amplitude de modulation. . . . .	82
3.20	Amplitude $\Delta C = H_1 + H_2$ et $\Delta EP$ des pics Auger C <sub>KLL</sub> (a) et du pic élastique (b). . . . .	83
3.21	Évolution de l'intensité du pic Auger C <sub>KLL</sub> en fonction de l'épaisseur de carbone déposé. (●) points expérimentaux, (—) modèle théorique. . . . .	83
3.22	Évolution de l'intensité du pic élastique en fonction de l'épaisseur de carbone déposé.(●) points expérimentaux, (—) modèle théorique. . . . .	84
3.23	Rapport d'intensité C <sub>KLL</sub> / PE en fonction de l'épaisseur de carbone déposée. (●) points expérimentaux, (—) modèle théorique. . . . .	85
3.24	Spectre Auger du silicium, pic Si <sub>L<sub>1</sub>V<sub>1</sub>V</sub> du silicium dans une matrice de silicium. . . . .	86
3.25	Spectre Auger d'un échantillon de tungstène pur. . . . .	87
3.26	Données expérimentales et modélisation de l'intensité du pic élastique en fonction de la dose d'ions. (+) points expérimentaux, (—) modèle théorique. . . . .	88
3.27	Données expérimentales et modélisations de l'intensité du pic Auger Si <sub>L<sub>1</sub>V<sub>1</sub>V</sub> en fonction de la dose d'ions.(+) points expérimentaux, (—) modèle théorique adapté aux couches minces, (----) modèle théorique prenant en compte l'atténuation du faisceau sonde. . . . .	89
3.28	Données expérimentales et modélisations de l'intensité du pic Auger W <sub>N<sub>1</sub>V<sub>1</sub>V</sub> en fonction de la dose d'ions. (+) points expérimentaux, (—) modèle théorique prenant en compte la rétrodiffusion, (----) modèle théorique prenant en compte l'atténuation du faisceau sonde et de la rétrodiffusion. . . . .	90
3.29	Comparaison des différents modèles . . . . .	91
4.1	(a)photographie du porte cible après le run 1, (b) trajectoire du faisceau d'ion avec (pointillés) ou sans (plein) application d'un potentiel au niveau des collimateurs. . . . .	94
4.2	Mesure de l'épaisseur de carbone pulvérisé en fonction de l'angle $\theta$ par rapport à la normale à la surface. . . . .	95

4.3	Rendement de pulvérisation du HOPG, comparaison entre le run 1 et 2. . . . .	96
4.4	Mesure de pulvérisation angulaire de graphite par un faisceau de $\text{Ar}^+$ à 30 keV à différents angles d'incidence[125]. . . . .	97
4.5	Simulation de pulvérisation de graphite par un faisceau de $\text{Ar}^+$ à 30 keV à différents angles d'incidence[125]. . . . .	98
4.6	Distribution angulaire de pulvérisation de carbone sous forme HOPG (a) et amorphe (b) sous irradiation à des ions d'or d'énergie 120 MeV[128] . . . . .	99
4.7	Distribution angulaire de monocristaux de Mg, Zn, Zr et Cd irradiés par des faisceaux $\text{Ar}^+$ d'énergies comprises 4 keV et 5 keV[129]. (a) analyses des collecteurs correspondant à l'irradiation des différents matériaux, (b) comparaison des différents spots de pulvérisation. . . . .	100
4.8	(a) structure cristalline du nitrure de bore, (b) résultat de la simulation de la pulvérisation d'une structure BN de direction [001] par des ions $\text{Ar}^+$ d'énergie 300 eV et d'incidence normale : distribution spatiale de la matière collectée (B et N) sur un collecteur plan[132]. . . . .	101
4.9	Distribution angulaire de pulvérisation d'une cible de tungstène par des ions $\text{Ar}^+$ d'énergie de 3, 5, 7 et 9 keV. . . . .	104
4.10	Distribution angulaire de pulvérisation d'une cible de tungstène par des ions $\text{Kr}^+$ d'énergie de 3, 5, 7 et 9 keV. . . . .	105
4.11	Distribution angulaire de pulvérisation d'une cible de tungstène par différents ions d'énergie 7 keV : (a) $\text{He}^+$ , (b) $\text{Ne}^+$ , (c) $\text{Ar}^+$ , (d) $\text{Kr}^+$ et (e) $\text{Xe}^+$ . (f) Projection angulaire normalisée (par rapport au rendement de pulvérisation) de la modélisation des différents résultats. . . . .	106
4.12	Rendement de pulvérisation du tungstène irradié avec des ions $\text{He}^+$ en fonction de l'énergie du projectile . . . . .	107
4.13	Rendement de pulvérisation du tungstène irradié avec des ions $\text{Ne}^+$ en fonction de l'énergie du projectile. . . . .	107
4.14	Rendement de pulvérisation du tungstène irradié avec des ions $\text{Ar}^+$ en fonction de l'énergie du projectile. . . . .	108
4.15	Rendement de pulvérisation du tungstène irradié avec des ions $\text{Kr}^+$ en fonction de l'énergie du projectile. . . . .	108
4.16	Rendement de pulvérisation du tungstène irradié avec des ions $\text{Ar}^+$ (a) et $\text{Kr}^+$ (b) en fonction de l'énergie du projectile, légendes correspondantes en Figure 4.14 et 4.15. . . . .	109

4.17	Rendement de pulvérisation du tungstène irradié avec des ions $Xe^+$ en fonction de l'énergie du projectile. . . . .	109
4.18	Comparaison du paramètre $n$ en fonction de l'énergie de l'ion $Ar^+$ obtenu expérimentalement avec les différents modèles théoriques. . . . .	113
4.19	Comparaison du paramètre $n$ en fonction de l'énergie de l'ion $Kr^+$ obtenu de façon expérimentale avec les différents modèles théoriques. . . . .	113
4.20	Comparaison du paramètre $n$ en fonction de la masse de l'ion $M$ obtenu de façon expérimentale avec les différents modèles théoriques, pour une énergie de projectiles de 7 keV. . . . .	114
4.21	Paramètre $n$ en fonction de $M^\alpha E^\beta$ avec $\alpha = 0.282$ et $\beta = 0.279$ . . . . .	114
4.22	Distribution angulaire de la pulvérisation de cibles de tungstène irradiées par des ions $Ar^+$ d'énergie : (a) 40 keV[156] et (b) 30 keV[157] . . . . .	115
4.23	(a) topographie de la cible de tungstène observée au microscope électronique à balayage, 4.23(b) schéma de la topographie de surface et simulation correspondante[157]. . . . .	116
4.24	Figure de pôles pour les orientations $[1\ 1\ 0]$ , $[1\ 1\ 1]$ et $[1\ 0\ 0]$ de la cible dans l'expérience d'Emmoth[156] (a) et de celle utilisée lors de nos expériences (b). . . . .	117
4.25	(a) diffractomètre de rayon X pour l'analyse de texturation (CRISMAT, Caen)[160], (b) Compilation des diffractogrammes simulés (partie haute) et mesurés (partie basse). . . . .	118
5.1	(a) Érosion par immersion plasma de composites de fibres de carbone, (b) simulation numérique de l'érosion[162]. . . . .	123
5.2	Distribution angulaire d'une cible d'argent sous différentes pressions partielles[80]. . . . .	124
5.3	(a) Technique de mesure du coefficient de collage, (b) atténuation du signal Auger $C_{KLL}$ lors du dépôt de tungstène sur un catcher HOPG. . . . .	126
5.4	Vue schématique de PULSAR, emplacement d'une éventuelle cage de Faraday. . . . .	127
5.5	(a) Distribution en énergie des particules neutres émises du plasma pour différents tokamaks ITER, JET et ASDEX, (b) rendement de pulvérisation en fonction de l'énergie du projectile ( $D^+$ ) pour différent matériaux[165]. . . . .	128

# LISTE DES TABLEAUX

2.1	Intensité délivrée par la ligne de faisceau intense . . . . .	57
3.1	Système de notation des transitions Auger . . . . .	62
3.2	Libre parcours inélastique moyen et longueur d'atténuation des électrons Auger $Si_{LVV}$ , $W_{NVV}$ et du pic élastique exprimés en nanomètre. . . . .	87
4.1	Angle des plans cristallins par rapport à la direction $[001]$ . . .	99
4.2	Paramètres expérimentaux . . . . .	102
4.3	Résultats expérimentaux . . . . .	103



# BIBLIOGRAPHIE

- [1] H Bolt, V Barabash, G Federici, J Linke, A Loarte, J Roth, and K Sato. Plasma facing and high heat flux materials - needs for ITER and beyond. *Journal of Nuclear Materials*, 307-311, Part 1(0) :43 – 52, 2002.
- [2] G. Federici, C.H. Skinner, J.N. Brooks, J.P. Coad, C. Grisolia, A.A. Haasz, A. Hassanein, V. Philipps, C.S. Pitcher, J. Roth, W.R. Wampler, and D.G. Whyte. Plasma-material interactions in current tokamaks and their implications for next step fusion reactors. *Nucl. Fusion*, 41 :1967, 2001.
- [3] Princeton Plasma Physics Laboratory, 2013. <http://www.pppl.gov/ITER>.
- [4] Joachim Roth, Emmanuelle Tsitrone, and Alberto Loarte. Plasma-wall interaction : Important ion induced surface processes and strategy of the EU Task Force. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 258(1) :253 – 263, 2007.
- [5] G Janeschitz. Plasma-wall interaction issues in ITER. *Journal of Nuclear Materials*, 290-293(0) :1 – 11, 2001.
- [6] Joachim Roth, E. Tsitrone, A. Loarte, Th. Loarer, G. Counsell, R. Neu, V. Philipps, S. Brezinsek, M. Lehnen, P. Coad, Ch. Grisolia, K. Schmid, K. Krieger, A. Kallenbach, B. Lipschultz, R. Doerner, R. Causey, V. Alimov, W. Shu, O. Ogorodnikova, A. Kirschner, G. Federici, and A. Kuku-shkin. Recent analysis of key plasma wall interactions issues for ITER. *Journal of Nuclear Materials*, 390-391(0) :1 – 9, 2009.

- [7] V. Barabash, G. Federici, J. Linke, and C.H. Wu. Material/plasma surface interaction issues following neutron damage. *Journal of Nuclear Materials*, 313-316(0) :42 – 51, 2003.
- [8] Tetsuo Tanabe. On the possibility of ITER starting with full carbon. *Fusion Engineering and Design*, 81(1-7) :139 – 147, 2006.
- [9] D. Naujoks, R. Behrisch, J.P. Coad, and L.C.J.M. De Kock. Material transport by erosion and redeposition on surface probes in the scrape-off layer of JET. *Nucl Fusion*, 33(4) :581, 1993.
- [10] W Bohmeyer, A Markin, and C Biedermann. Erosion of CFC at medium flux densities in the plasma generator PSI-2. *Physica Scripta*, (T138) :014016, 2009.
- [11] X.P. Zhu, Y. Tang, X. Wang, and M.K. Lei. Fiber erosion of carbon fiber composite exposed to simulated ITER-relevant thermal impact by high-intensity pulsed ion beam. *Fusion Engineering and Design*, 85(10-12) :1999 – 2004, 2010.
- [12] L.I. Vergara, F.W. Meyer, and H.F. Krause. Chemical sputtering of ATJ graphite induced by low-energy bombardment. *Journal of Nuclear Materials*, 347(1-2) :118 – 124, 2005.
- [13] R. Yamada, K. Nakamura, K. Sone, and M. Saidoh. Measurement of chemical sputtering yields of various types of carbon. *Journal of Nuclear Materials*, 95(3) :278 – 284, 1980.
- [14] A. Golczewski, A. Kuzucan, K. Schmid, J. Roth, M. Schmid, and F. Aumayr. Ion-induced erosion of tungsten surfaces studied by a sensitive quartz-crystal-microbalance technique. *Journal of Nuclear Materials*, 390-391(0) :1102 – 1105, 2009.
- [15] J. Bohdansky. Important sputtering yield data for tokamaks : A comparison of measurements and estimates. *Journal of Nuclear Materials*, 93-94, Part 1(0) :44 – 60, 1980.
- [16] H. Vernickel. Review paper A2. Data needs for plasma surface interaction. *Physics Reports*, 37(2) :93 – 110, 1978.
- [17] P. Salou, H. Lebius, A. Benyagoub, T. Langlinay, D. Lelievre, and B. Band'Etat. An innovative experimental setup for the measurement of sputtering yield induced by keV energy ions. *Review of Scientific Instruments*, 84(9) :095115, 2013.
- [18] C. Jaouen A. Dunlop, F. Rullier-Albenque, editor. *Materials under Irradiation*. Trans Tech Publications Ltd, 1993.
- [19] E. Rutherford. LXXIX. The scattering of  $\alpha$  and  $\beta$  particles by matter and the structure of the atom. *Philosophical Magazine Series 6*, 21(125) :669–688, 1911.

- [20] J.P. Biersack. Range of recoil atoms in isotropic stopping materials. *Zeitschrift fur Physik*, 211(5) :495, 1968.
- [21] H. Bethe. *Handbuch der Physik*, 14(491), 1933.
- [22] J. Lindhard, M. Scharff, and H.E. Schiott. Range concept and heavy ion range. *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk*, 33, 1963.
- [23] M.J. Berger, J.S. Coursey, M.A. Zucker, and J. Chang. ESTAR, PSTAR, and ASTAR : Computer Programs for Calculating Stopping-Power and Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions (version 1.2.3)., 2005.
- [24] J.J.F. Ziegler, J.P. Biersack, and U. Littmark. *The Stopping and Range of Ions in Solids*, volume 1. Pergamon Press, 1985.
- [25] J.P. Biersack and W. Eckstein. Sputtering studies with the Monte Carlo Program TRIM.SP. *Applied Physics A*, 34(2) :73–94, 1984.
- [26] Peter Sigmund. Theory of Sputtering. I. Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets. *Phys. Rev.*, 184 :383–416, 1969.
- [27] Mark T. Robinson. The energy spectra of atoms slowing down in structureless media. *Philosophical Magazine*, 12(115) :145–156, 1965.
- [28] M. Hou and M.T. Robinson. Computer simulation of low-energy sputtering in the binary collision approximation. *Applied physics*, 18(4) :381–389, 1979.
- [29] B.J. Garrison, N. Winograd, D. Lo, T.A. Tombrello, M.H. Shapiro, and D.E. Harrison Jr. Energy cost to sputter an atom from a surface in keV ion bombardment processes. *Surface Science Letters*, 180(2-3) :L129 – L133, 1987.
- [30] Heinrich Gades and Herbert M. Urbassek. Pair versus many-body potentials in atomic emission processes from a Cu surface. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 69(2-3) :232–241, 1992.
- [31] M.W. Thompson. *Philos. Mag.*, 18 :377, 1968.
- [32] R. Behrisch and W. Eckstein, editors. *Sputtering by Particle Bombardment*. Springer, 2007.
- [33] D. A. Thompson. High density cascade effects. *Radiation Effects*, 56(3-4) :105–150, 1981.
- [34] Roger Kelly. Thermal effects in sputtering. *Surface Science*, 90(2) :280 – 318, 1979.
- [35] M.W. Thompson. The velocity distribution of sputtered atoms. *Nucl. Instrum. Meth. B.*, 18(1-6) :411 – 429, 1986.

- [36] P. Sigmund and C. Claussen. Sputtering from elastic-collision spikes in heavy-ion-bombarded metals. *Journal of Applied Physics*, 52(2) :990–993, 1981.
- [37] P. Sigmund and M. Szymonski. Temperature-dependent sputtering of metals and insulators. *Applied Physics A*, 33(3) :141–152, 1984.
- [38] R.E. Johnson. Ionization Tracks. In R. A. Baragiola, editor, *Ionization of Solids by Heavy Particles*, volume 306, pages 419–430. Springer US, 1993.
- [39] R. E. Johnson and R. Evatt. Thermal spikes and sputtering yields. *Radiation Effects*, 52(3-4) :187–190, 1980.
- [40] T. Schenkel, A. V. Barnes, A. V. Hamza, D. H. Schneider, J. C. Banks, and B. L. Doyle. Synergy of Electronic Excitations and Elastic Collision Spikes in Sputtering of Heavy Metal Oxides. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :4325–4328, May 1998.
- [41] M. Guinan. Shock wave interactions arising from near surface displacement cascades. *Journal of Nuclear Materials*, 53 :171–178, 1974.
- [42] C. T. Reimann. Theoretical Models for Sputtering and Desorption of Bio-Organic Molecules under Collisional and Electronic Excitation by Ion Impact. *Matematisk-fysiske Meddelelser*, 43 :351, 1993.
- [43] Gottfried K. Wehner. Controlled Sputtering of Metals by Low-Energy Hg Ions. *Phys. Rev.*, 102 :690–704, May 1956.
- [44] Gottfried K. Wehner. Sputtering of Metal Single Crystals by Ion Bombardment. *Journal of Applied Physics*, 26(8) :1056–1057, 1955.
- [45] R. H. Silsbee. Focusing in Collision Problems in Solids. *Journal of Applied Physics*, 28(11) :1246–1250, 1957.
- [46] Peter Sigmund. Recollections of fifty years with sputtering. *Thin Solid Films*, 520(19) :6031 – 6049, 2012.
- [47] V.E. Yurasova, N.V. Pleshivtsev, and I.V. Orfanov. *Sov. Phys. JETP*, 37 :966, 1959.
- [48] R. S. Nelson and M. W. Thompson. Atomic Collision Sequences in Crystals of Copper, Silver and Gold Revealed by Sputtering in Energetic Ion Beams. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 259(1299) :458–479, 1961.
- [49] D. E. Harrison, J. P. Johnson, and N. S. Levy. Spot patterns and silsbee chains on a cu single crystal. *Applied Physics Letters*, 8(2) :33–36, 1966.
- [50] D. E. Harrison, N. S. Levy, J. P. Johnson, and H. M. Effron. Computer Simulation of Sputtering. *Journal of Applied Physics*, 39(8) :3742–3761, 1968.

- [51] J. M. Fluit, P. K. Rol, and J. Kistemaker. Angular-Dependent Sputtering of Copper Single Crystals. *Journal of Applied Physics*, 34(3) :690–691, 1963.
- [52] Chr. Lehmann and P. Sigmund. On the Mechanism of Sputtering. *physica status solidi (b)*, 16(2) :507–511, 1966.
- [53] B. Perovic. In H. Maecker, editor, *Proc. 5th Int. Conf. Ioniz. Phenomena in Gases*, page 1172, Amsterdam, 1962.
- [54] J. Lindhard. Influence of crystal lattice on motion of energetic charged particles. *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk*, 34(14) :1, 1965.
- [55] R. Winograd. Sputtering of Single Crystals : Experimental Evidence of the Ejection Process. *Matematisk-fysiske Meddelelser*, 43 :223, 1993.
- [56] D. Onderdelinden. The influence of channeling on Cu single-crystal sputtering. *Applied Physics Letters*, 8(8) :189–190, 1966.
- [57] W. D. Wilson, L. G. Haggmark, and J. P. Biersack. Calculations of nuclear stopping, ranges, and straggling in the low-energy region. *Phys. Rev. B*, 15 :2458–2468, Mar 1977.
- [58] W. Müller and W. Eckstein. Tridyn A TRIM simulation code including dynamic composition changes. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2(1-3) :814 – 818, 1984.
- [59] W. Eckstein, R. Dohmen, A. Mutzke, and R. Schneider. *SDTrimSP : A Monte-Carlo Code for Calculating Collision Phenomena in Randomized Targets*. Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Garching, 2007.
- [60] Mark T. Robinson and Ian M. Torrens. Computer simulation of atomic-displacement cascades in solids in the binary-collision approximation. *Phys. Rev. B*, 9 :5008–5024, Jun 1974.
- [61] V. I. Shulga. Computer simulation of single-crystal and polycrystal sputtering I. *Radiation Effects*, 70(1-4) :65–83, 1983.
- [62] W. Takeuchi and Y. Yamamura. Computer studies of the energy spectra and reflection coefficients of light ions. *Radiation Effects*, 71(1-2) :53–64, 1983.
- [63] Steffen Zimmermann and Herbert M. Urbassek. Sputtering of nanoparticles : Molecular dynamics study of Au impact on 20 nm sized Au nanoparticles. *International Journal of Mass Spectrometry*, 272(1) :91 – 97, 2008.
- [64] A. Günterschulze. *Journal Of Vacuum Science Technology*, 3 :360, 1955.

- [65] Nils Laegreid and G. K. Wehner. Sputtering Yields of Metals for Ar<sup>+</sup> and Ne<sup>+</sup> Ions with Energies from 50 to 600 ev. *J. Appl. Phys.*, 32(3) :365–369, 1961.
- [66] E. Hechtel and J. Bohdansky. Sputtering behavior of graphite and molybdenum at low bombarding energies. *Journal of Nuclear Materials*, 123 :1431 – 1436, 1984.
- [67] G M McCracken. The behaviour of surfaces under ion bombardment. *Reports on Progress in Physics*, 38(2) :241, 1975.
- [68] A.M. Borisov, E.S. Mashkova, A.S. Nemov, and Yu.S. Virgiliev. Sputtering of HOPG under high-dose ion irradiation. *Nucl. Instrum. Meth. B.*, 256 :363 – 367, 2007.
- [69] L. Papagno, G. Luzzi, and M. Meuti. Sputtering yields of thin overlayer films by attenuation of the substrate Auger electron signal. *Thin Solid Films*, 60(3) :307 – 312, 1979.
- [70] A. Golczewski, K. Dobes, G. Wachter, M. Schmid, and F. Aumayr. A quartz-crystal-microbalance technique to investigate ion-induced erosion of fusion relevant surfaces. *Nucl. Instrum. Meth. B.*, 267(4) :695 – 699, 2009. Proceedings of the 17th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions.
- [71] S. Akcöltekin, I. Alzaher, B. Ban d’Etat, T. Been, P. Boduch, A. Cassimi, H. Hijazi, H. Lebius, B. Manil, J. M. Ramillon, H. Rothard, M. Schleberger, and E. F. da Silveira. AODO : Secondary ion emission and surface modification. *Nucl. Instrum. Meth. B.*, 267 :649, 2009.
- [72] M.W. Thompson. A direct measurement of the focusing energy for <math>\alpha</math> collision sequences in gold. *Physics Letters*, 6 :24 – 26, 1963.
- [73] Sandrine Schlutig. *Contribution à l’étude de la pulvérisation et de l’endommagement du dioxyde d’uranium par les ions lourds rapides*. PhD thesis, Université de Caen - Basse-Normandie, 2001.
- [74] R. S. Nelson and M. W. Thompson. Atomic Collision Sequences in Crystals of Copper, Silver and Gold Revealed by Sputtering in Energetic Ion Beams. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 259(1299) :458–479, 1961.
- [75] Fabien Haranger. *Étude de la pulvérisation du dioxyde d’uranium induite par des ions lourds multichargés de basse et très basse énergie cinétique ; effet de la charge du projectile*. PhD thesis, Université de Caen - Basse-Normandie, 2003.
- [76] A. Tripathi, S. A. Khan, S. K. Srivastava, M. Kumar, S. Kumar, S. V. S. N. Rao, G. B. V. S. Lakshmi, Azhar M. Siddiqui, N. Bajwa, H. S.

- Nagaraja, V. K. Mittal, A. Szokefalvi, M. Kurth, A. C. Pandey, D. K. Avasthi, and H. D. Carstanjen. Electronic sputtering from HOPG : A study of angular dependence. *Nucl. Instrum. Meth. B.*, 212(0) :402, 2003.
- [77] H. Ohtsuka, R. Yamada, K. Sone, M. Saidoh, and T. Abe. Measurement of the sputtering yield by auger electron spectroscopy. *Journal of Nuclear Materials*, 76-77 :188 – 189, 1978.
- [78] C.P.C. Wong, D.L. Rudakov, J.P. Allain, R.J. Bastasz, N.H. Brooks, J.N. Brooks, R.P. Doerner, T.E. Evans, A. Hassanein, W. Jacob, K. Krieger, A. Litnovsky, A.G. McLean, V. Philipps, A.Yu. Pigarov, W.R. Wampler, J.G. Watkins, W.P. West, J. Whaley, and P. Wienhold. Divertor and midplane materials evaluation system in DIII-D. *Journal of Nuclear Materials*, 363-365(0) :276 – 281, 2007.
- [79] S. Hofmann. *Auger- and X-Ray Photoelectron Spectroscopy in Materials Science*, volume 49 of *Springer Series in Surface Sciences*. 2013.
- [80] W. Huang. Measurement of angular distribution of noble metals by low keV ion sputtering. *Surface Science*, 202(3) :L603 – L606, 1988.
- [81] Gregor Kowarik, Michael Brunmayr, and Friedrich Aumayr. Electron emission from tungsten induced by slow, fusion-relevant ions. *Nucl. Instrum. Meth. B.*, 267(16) :2634 – 2637, 2009. Proceedings of the 23rd International Conference on Atomic Collisions in Solids.
- [82] H Seiler. Secondary electron emission in the scanning electron microscope. *Journal of Applied Physics*, 54(11) :R1–R18, 1983.
- [83] H. Lebius, A. Brenac, B. A. Huber, L. Maunoury, F. Gustavo, and D. Cormier. Highly charged ion beams at eV kinetic energies. *Rev. Sci. Instrum.*, 74(4) :2276, 2003.
- [84] A. Girard, C. Pernot, G. Melin, and C. Lécot. Modeling of electron-cyclotron-resonance-heated plasmas. *Phys. Rev. E*, 62 :1182–1189, Jul 2000.
- [85] D. Hitz, P. Ludwig, G. Melin, and M. Pontonnier. The new 14.5 GHz Caprice ECR ion source : gaseous and metallic ion production. *Nucl. Instrum. Meth. B.*, 98 :517 – 520, 1995.
- [86] A. Cassimi, T. Muranaka, L. Maunoury, H. Lebius, B. Manil, B.A. Huber, T. Ikeda, Y. Kanai, T.M. Kojima, Y. Iwai, T. Kambara, Y. Yamazaki, T. Nebiki, and T. Narusawa. Multiply-charged ion nanobeams. *Int. J. of Nanotechnology*, 5 :809 – 817, 2008.
- [87] T.D. Märk and G.H. Dunn, editors. *Electron Impact Ionization*. Springer, 1985.
- [88] J.Y. Pacquet and R. Leroy. Mono1001. Technical report, GANIL, 2002.

- [89] P. Jardin, C. Barue, C. Canet, M. Dupuis, J. L. Flambard, G. Gaubert, N. Lecesne, P. Lehérisier, F. Lemagnen, R. Leroy, J.-Y. Pacquet, F. Pellemoine, J.-P. Rataud, M. G. Saint Laurent, and A. C. C. Villari. Mono 1000 : A simple and efficient 2.45 GHz electron cyclotron resonance ion source using a new magnetic structure concept. *Rev. Sci. Instrum.*, 73(2) :789–791, 2002.
- [90] Rémi Maisonnny. *Etude expérimentale de la fragmentation d'agrégats d'eau induite par impact d'ions multichargés*. PhD thesis, Université de Caen - Basse-Normandie, 2011.
- [91] E. Bauer. Methods of surface studies depending on inelastic scattering of electrons. *Vacuum*, 22(11) :539 – 552, 1972.
- [92] R. N. Yasko and R. D. Whitmoyer. Auger Electron Energies (0-2000 eV) for Elements of Atomic Number 5-103. *Journal of Vacuum Science and Technology*, 8(6) :733–737, 1971.
- [93] Chuan C. Chang. Auger electron spectroscopy. *Surf. Sci.*, 25(1) :53 – 79, 1971.
- [94] Yongfa Zhu and Lili Cao. Auger chemical shift analysis and its applications to the identification of interface species in thin films. *Applied Surface Science*, 133(3) :213 – 220, 1998.
- [95] M. Volmer and A. Weber. *Z.Phys. Chem.*, 119 :277, 1926.
- [96] I.N. Stranski and L. Von Krastanov. *Akad. Wiss. Lit. Mainz Math. - Natur. K1. IIb*, 146 :797, 1939.
- [97] T.E. Gallon. A simple model for the dependence of Auger intensities on specimen thickness. *Surface Science*, 17(2) :486 – 489, 1969.
- [98] M. P. Seah and W. A. Dench. Quantitative electron spectroscopy of surfaces : A standard data base for electron inelastic mean free paths in solids. *Surf. Interface Anal.*, 1(1) :2–11, 1979.
- [99] Stefan Mröz. Physical foundation of quantitative Auger analysis. *Prog. Surf. Sci.*, 46 :377, 1994.
- [100] S. Tanuma, C. J. Powell, and D. R. Penn. Calculations of electron inelastic mean free paths. II. Data for 27 elements over the 50 to 2000 eV range. *Surf. Interface Anal.*, 17(13) :911–926, 1991.
- [101] W. H. Gries. A Universal Predictive Equation for the Inelastic Mean Free Pathlengths of X-ray Photoelectrons and Auger Electrons. *Surf. Interface Anal.*, 24(1) :38–50, 1996.
- [102] C. J. Powell and A. Jablonski. Electron effective attenuation lengths for applications in Auger electron spectroscopy and x-ray photoelectron spectroscopy. *Surface and Interface Analysis*, 33(3) :211–229, 2002.

- [103] A. Jablonski and C.J. Powell. The electron attenuation length revisited. *Surface Science Reports*, 47(2-3) :33 – 91, 2002.
- [104] A Jablonski and C.J Powell. Relationships between electron inelastic mean free paths, effective attenuation lengths, and mean escape depths. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 100(1-3) :137–160, 1999.
- [105] M.P. Seah. Quantitative Auger electron spectroscopy and electron ranges. *Surface Science*, 32(3) :703 – 728, 1972.
- [106] C.J. Powell and A. Jablonski. NIST Electron Effective-Attenuation-Length Database, ver. 1.2, SRD 82, 2009.
- [107] S. Hofmann and J. Erlewein. Anwendung der quantitativen Augerelektro-nenspektroskopie (AES) auf dünne Oberflächenschichten. *Microchimica Acta*, 71(1-2) :65–74, 1979.
- [108] D. Briggs and M. P. Seah. *Practical Surface Analysis : Auger and X-Ray Photoelectron Spectroscopy*. John Wiley & Sons, 1983.
- [109] L. Eckertova and Ch. Kleint. An approach to reflection electron energy loss spectroscopy of overlayer systems. *Surface Science*, 231 :168 – 176, 1990.
- [110] P. W Palmberg. Optimization of auger electron spectroscopy in lead systems. *Applied Physics Letters*, 13(5) :183–185, 1968.
- [111] E. Bauer. Methods of surface studies depending on inelastic scattering of electrons. *Vacuum*, 22(11) :539 – 552, 1972.
- [112] Guillermo Gonzalez. *Microwave Transistor Amplifiers. Second edition*. 1997.
- [113] N. J. Taylor. Resolution and Sensitivity Considerations of an Auger Elec-tron Spectrometer Based on Display LEED Optics. *Rev. Sci. Instrum.*, 40(6) :792, 1969.
- [114] Hussein Hijazi. *Interaction ions-surfaces : étude de la pulvérisation du-fluorure de lithium LiF par technique d'imagerie XY-TOF-SIMS*. PhD thesis, Université de Caen - Basse-Normandie, 2011.
- [115] R. Kosiba, J. Liday, G. Ecke, O. Ambacher, J. Breza, and P. Vogrinčič. Quantitative Auger electron spectroscopy of SiC. *Vacuum*, 80(9) :990 – 995, 2006.
- [116] Richard W. Joyner and John Rickman. Quantitative examination of elec-tron beam induced carbon deposition at a polycrystalline tungsten sur-face, studied by Auger electron spectroscopy. *Surf. Sci.*, 67 :351, 1977.
- [117] Bureau International des Poids et Mesures. *Évaluation des données de mesure - Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure*. 2008.

- [118] Pierre Vanden Brande and René Winand. Characterization of the first stages of the formation of metallic sputtered deposits and electrodeposits by Auger electron spectroscopy. *Thin Solid Films*, 220 :204 – 211, 1992.
- [119] B Lesiak, A Jablonski, and G Gergely. Multiple scattering analysis for determining the electron inelastic mean free path (IMFP) by elastic peak electron spectroscopy. *Vacuum*, 40 :67 – 69, 1990. Selected Proceedings of the Yugoslav-Austrian-Hungarian Fourth Joint Vacuum Conference.
- [120] F. Golek and W. Dolinski. Elastic backscattering of electrons from polycrystalline tungsten and determination of electron inelastic mean free path. *physica status solidi (a)*, 151(2) :K37–K40, 1995.
- [121] SeongYong Park, Herman C. Floresca, YoungJoon Suh, and Moon J. Kim. Electron microscopy analyses of natural and highly oriented pyrolytic graphites and the mechanically exfoliated graphenes produced from them. *Carbon*, 48(3) :797 – 804, 2010.
- [122] R. Coratger, A. Claverie, A. Chahboun, V. Landry, F. Ajustron, and J. Beauvillain. Effects of ion mass and energy on the damage induced by an ion beam on graphite surfaces : a scanning tunneling microscopy study. *Surface Science*, 262 :208 – 218, 1992.
- [123] I.C. Gebeshuber, S. Cernusca, F. Aumayr, and H.P. Winter. Nanoscopic surface modification by slow ion bombardment. *International Journal of Mass Spectrometry*, 229 :27 – 34, 2003.
- [124] G. K. Wehner and D. Rosenberg. Angular Distribution of Sputtered Material. *Journal of Applied Physics*, 31(1) :177–179, 1960.
- [125] W. Eckstein, I.M. Fayazov, G.S. Knizhnik, E.S. Mashkova, V.A. Molchanov, and A.I. Tolmachev. Angular distributions of sputtered carbon at oblique ion incidence on graphite targets. *Nucl. Instrum. Meth. B.*, 61(1) :12 – 20, 1991.
- [126] A.I. Dodonov, E.A. Krylova, E.S. Mashkova, and V.A. Molchanov and S.D. Fedorovich. *Poverkhnost*, 7(18), 1988.
- [127] J. Jorzick, J. Lössch, M. Kopnarski, and H. Oechsner. Detection in the ppm range and high-resolution depth profiling with the new SNMS instrument INA-X. *Applied Physics A*, 78(5) :655–658, 2004.
- [128] A. Tripathi, S. A. Khan, Manvendra Kumar, V. Baranwal, R. Krishna, Sarvesh Kumar, A. C. Pandey, and D. K. Avasthi. Angular dependence of electronic sputtering from HOPG. *Nucl. Instrum. Meth. B.*, 266 :1265, 2008.
- [129] Mark T. Robinson and A. L. Southern. Sputtering Experiments with 1 to 5 keV Ar<sup>+</sup> Ions. III. Monocrystal Targets of the Hexagonal Metals Mg, Zn, Zr, and Cd. *Journal of Applied Physics*, 39(7) :3463–3475, 1968.

- [130] R. W. G. Wyckoff. Second edition. Interscience Publishers, New York, New York Hexagonal closest packed, hcp, structure. *Crystal Structures*, 1 :7 – 83, 1963.
- [131] O Hassel. Ueber die Kristallstruktur des Graphits. *Zeitschrift fuer Physik*, 25 :317 – 337, 1924.
- [132] V.E. Yurasova, S.S. Elovikov, and E.Yu. Zykova. Sputtering of boron nitride single crystals of different structure. *Journal of Surface Investigation. X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques*, 1(3) :328–341, 2007.
- [133] O Hassel. Die Kristallstruktur des Bornitrides, B N. *Norsk Geologisk Tidsskrift*, 9 :266 – 270, 1927.
- [134] J. Roth, J. Bohdanský, and K.L. Wilson. Erosion of carbon due to bombardment with energetic ions at temperatures up to 2000 K. *Journal of Nuclear Materials*, 111-112(0) :775 – 780, 1982.
- [135] D. Nishijima, M.J. Baldwin, R.P. Doerner, and J.H. Yu. Sputtering properties of tungsten a fuzzy surfaces. *Journal of Nuclear Materials*, 415(1, Supplement) :S96 – S99, 2011.
- [136] I. Bizyukov, K. Krieger, N. Azarenkov, Ch. Linsmeier, and S. Levchuk. Tungsten sputtering and accumulation of implanted carbon and deuterium by simultaneous bombardment with D and C ions. *Journal of Nuclear Materials*, 363-365(0) :1184 – 1189, 2007.
- [137] Noriaki Matsunami, Yasunori Yamamura, Yukikazu Itikawa, Noriaki Itoh, Yukio Kazumata, Soji Miyagawa, Kenji Morita, Ryuichi Shimizu, and Hiroyuki Tawara. Energy dependence of the ion-induced sputtering yields of monatomic solids. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 31(1) :1 – 80, 1984.
- [138] M. I. Guseva and Yu. V. Martynenko. *Fiz. Plas.*, 2 :593, 1976.
- [139] D. Rosenberg and G. K. Wehner. Sputtering Yields for Low Energy He<sup>+</sup>, Kr<sup>+</sup>, and Xe<sup>+</sup> Ion Bombardment. *J. Appl. Phys.*, 33(5) :1842–1845, 1962.
- [140] W. Eckstein, C. Garcia-Rosales, J. Roth, and W. Ottenberger. Report Number :IPP 9/82. Technical report, Max-Planck-Institut für Plasma-physik, 1993.
- [141] J. F. Ziegler, J. J. Cuomo, and J. Roth. Reduction of ion sputtering yield by special surface microtopography. *Applied Physics Letters*, 30(6) :268–271, 1977.
- [142] R. V. Stuart and G. K. Wehner. Sputtering Yields at Very Low Bombarding Ion Energies. *J. Appl. Phys.*, 33(7) :2345–2352, 1962.
- [143] Harold F. Winters and Donald Horne. Energy transfer to a tungsten lattice by ion bombardment. *Phys. Rev. B*, 10 :55–63, Jul 1974.

- [144] O. Almén and G. Bruce. Collection and sputtering experiments with noble gas ions. *Nuclear Instruments and Methods*, 11(0) :257 – 278, 1961.
- [145] V. K. Koshkin. In *Phenom. Ioniz. Gases*, 1969.
- [146] B. M. Gurmin. *Sov. Phys. Solid State*, 10 :324, 1968.
- [147] H. ; Schirrwitz. *Beitr. Plasmaphys.*, 2, 1962.
- [148] J. N. ; Meyer Jr. C. H. ; Layton J. K. Smith, Jr. *Nucl. Technol.*, 29 :318, 1976.
- [149] J. N Smith, Jr. *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 22 :29, 1975.
- [150] Kenneth B. Cheney and Edward T. Pitkin. Sputtering at Acute Incidence. *Journal of Applied Physics*, 36(11) :3542–3544, 1965.
- [151] Peter Sigmund. Mechanisms and theory of physical sputtering by particle impact. *Nucl. Instrum. Meth. B.*, 27(1) :1 – 20, 1987.
- [152] P. Sigmund. *Top. Appl. Phys. 110*. Springer, 2007.
- [153] M. Vicanek, J.J.Jimenez Rodriguez, and P. Sigmund. Depth of origin and angular spectrum of sputtered atoms. *Nucl. Instrum. Meth. B.*, 36(2) :124 – 136, 1989.
- [154] H. E. Roosendaal and J. B. Sanders. On the energy distribution and angular distribution of sputtered particles. *Radiation Effects*, 52(3-4) :137–143, 1980.
- [155] M. Stepanova and S. K. Dew. Estimates of differential sputtering yields for deposition applications. *Journal of Vacuum Science & Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films*, 19(6) :2805–2816, 2001.
- [156] B. Emmoth. Measurement of sputtering by sputter deposition method. *Physics Letters A*, 134(4) :269, 1989.
- [157] W. Eckstein, E.S. Mashkova, V.A. Molchanov, A.V. Sidorov, and Yu.N. Zhukova. The effect of target texture and topography on the spatial distribution of material sputtered from tungsten. *Applied Physics A*, 57(3) :271–277, 1993.
- [158] N.N. Andrianova, A.M. Borisov, E.S. Mashkova, A.S. Nemo, and V.I. Shulga. The effect of microrelief evolution on the angular dependence of polycrystalline Cu sputtering yield. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 230(1-4) :583 – 588, 2005.
- [159] Guang Ran, Shenghua Wu, Xiang Liu, Jihong Wu, Ning Li, Xiaotao Zu, and Lumin Wang. The effect of crystal orientation on the behavior of a polycrystalline tungsten surface under focused Ga<sup>+</sup> ion bombardment. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 289(0) :39 – 42, 2012.

- [160] Daniel Chateigner, 2013. <http://www.ecole.ensicaen.fr/>.
- [161] Alan Keim, Bilal Rasul, Nikolaus Endstrasser, Paul Scheier, Tilmann D. Märk, and Zdenek Herman. Interaction of small hydrocarbon ions and  $\text{Ar}^+$  with carbon-fibre-composite surfaces at room temperature. *International Journal of Mass Spectrometry*, 306(2-3) :204 – 209, 2011.
- [162] S Pestchanyi, V Safronov, and I Landman. Estimation of carbon fibre composites as ITER divertor armour. *Journal of Nuclear Materials*, 329-333, Part A(0) :697 – 701, 2004.
- [163] C. Martin, R. Ruffe, C. Pardanaud, M. Cabié, C. Dominici, T. Dittmar, P. Languille, B. Pégourié, E. Tsitrone, and P. Roubin. Structure of the carbon layers deposited on the toroidal pump limiter of Tore Supra. *Journal of Nuclear Materials*, 415(1, Supplement) :S258 – S261, 2011.
- [164] C. Hopf, K. Letourneur, W. Jacob, T. Schwarz-Selinger, and A. von Keudell. Surface loss probabilities of the dominant neutral precursors for film growth in methane and acetylene discharges. *Applied Physics Letters*, 74(25) :3800–3802, 1999.
- [165] R A Pitts, J P Coad, D P Coster, G Federici, W Fundamenski, J Horacek, K Krieger, A Kukushkin, J Likonen, G F Matthews, M Rubel, J D Strachan, and JET-EFDA contributors. Material erosion and migration in tokamaks. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 47(12B) :B303, 2005.
- [166] L.L. Snead and M. Ferraris. 4.18 - Carbon as a Fusion Plasma-Facing Material. In Editor in Chief : Rudy J.M. Konings, editor, *Comprehensive Nuclear Materials*, pages 583 – 620. Elsevier, Oxford, 2012.





---

## **Interaction ion-surface : simulation de l'interaction plasma-paroi (ITER)**

**Résumé :** Les matériaux de couverture des réacteurs à fusion nucléaire par confinement magnétique subissent un environnement agressif ; le flux intense de particules extraites du plasma attaque les parois du réacteur, engendrant la pulvérisation de la matière en surface. Cette pulvérisation est à l'origine de l'érosion des parois mais aussi de la pollution du plasma, ainsi, afin de maîtriser la réaction de fusion dans des réacteurs de plus en plus complexes, il est impératif de bien comprendre les phénomènes d'interaction plasma-paroi.

Cette thèse a pour but l'étude de la pulvérisation des matériaux des réacteurs de fusion nucléaire (carbone et tungstène), pour cela nous proposons de simuler le flux de particules chargées du plasma par des faisceaux d'ions monochargés d'énergies inférieures à la dizaine de keV.

Cette étude est basée sur la méthode du collecteur, aussi afin de s'affranchir des problèmes liés aux polluants (notamment pour l'étude du carbone), nous avons conçu et réalisé un nouveau dispositif permettant l'analyse des collecteurs in situ par spectroscopie des électrons Auger.

Les résultats obtenus donnent accès à l'évolution de la distribution angulaire en fonction des paramètres d'irradiation comme la masse du projectile (de hélium au xénon) ou l'énergie (de 3 keV à 9 keV).

**Mots clés :** Pulvérisation cathodique, Surface (physique), Bombardement ionique, Électrons Auger, Carbone, Tungstène.

---

## **Ion-surface interaction : simulation of plasma-wall interaction (ITER)**

**Abstract :** The wall materials of magnetic confinement in fusion machines are exposed to an aggressive environment ; the reactor blanket is bombarded with a high flux of particles extracted from the plasma, leading to the sputtering of surface material. This sputtering causes wall erosion as well as plasma contamination problems. In order to control fusion reactions in complex reactors, it is thus imperative to well understand the plasma-wall interactions. This work proposes the study of the sputtering of fusion relevant materials. We propose to simulate the charged particles influx by few keV single-charged ion beams. This study is based on the catcher method ; to avoid any problem of pollution (especially in the case of carbon) we designed a new setup allowing an in situ Auger electron spectroscopy analysis.

The results provide the evolution of the angular distribution of the sputtering yield as a function of the ion mass (from helium to xenon) and its energy (from 3 keV to 9 keV).

**Keywords :** Sputtering (physics), Surface (physics), Ion bombardment, Carbon, Tungsten.

---

**Laboratoire :** CIMAP-GANIL

Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique

Boulevard Henry Becquerel, BP 5133, 14070 Caen, Cedex 05, France

---