



**HAL**  
open science

# Effets de l'irradiation par des ions lourds multichargés sur des cristaux et des glaces d'intérêt astrophysique

Thomas Langlinay

► **To cite this version:**

Thomas Langlinay. Effets de l'irradiation par des ions lourds multichargés sur des cristaux et des glaces d'intérêt astrophysique. Physique [physics]. Université de Caen, 2014. Français. NNT : . tel-01098780

**HAL Id: tel-01098780**

**<https://theses.hal.science/tel-01098780>**

Submitted on 29 Dec 2014

**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 : 25/11/2014

par

***Thomas LANGLINAY***

pour obtenir le

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

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

**Effets de l'irradiation par des ions lourds multichargés sur des cristaux et des glaces d'intérêt astrophysique**

Directeur de thèse : *Hermann ROTHARD*

Co-directeur de thèse : *Philippe BODUCH*

**Jury**

- M. Denis DAUVERGNE, Directeur de recherche au CNRS, IPNL, Villeurbanne, rapporteur.
- M. Bruno MANIL, Professeur des Universités, Université Paris 13, Villetaneuse, rapporteur.
- M. Giovanni STRAZZULLA, Professeur, Observatoire Astrophysique de Catane, Italie, président.
- M. Rafael MARTINEZ RODRIGUEZ, Professeur, Université Fédérale d'Amapa, Brésil.
- M. Philippe BODUCH, Maître de conférences, Université de Caen, Caen, co-directeur de thèse.
- M. Hermann ROTHARD, Directeur de recherche au CNRS, CIMAP, Caen, directeur de thèse.



# *Remerciements*

*Ma thèse s'est effectuée au Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique (CIMAP), à Caen. Je suis reconnaissant à Serge Bouffard et Amine Cassimi, directeurs successifs du CIMAP, de m'avoir accueilli au sein de ce laboratoire dans lequel j'ai pu mener cette aventure.*

*Je tiens à remercier les membres du jury de cette thèse : Giovanni Strazzulla, Rafael Martinez et plus particulièrement Bruno Manil et Denis Dauvergne qui ont accepté d'être rapporteurs de ce mémoire.*

*Rien n'aurait pu se faire sans sujet de thèse et sans encadrement. Ainsi j'exprime ma profonde gratitude à Hermann Rothard et à Philippe Boduch. J'ai vraiment apprécié de travailler avec eux. Ils ont su me faire profiter de leur expérience et m'ont gratifié de précieux conseils. J'ai appris, à leur contact, la patience et la ténacité face à des expériences qui ne marchent pas toujours comme on le souhaite. Pour tous ces points, je leur dis un grand merci.*

*Dans le cadre d'un programme Hubert Curien (PHC) CAPES/COFECUB, j'ai réalisé un stage au Brésil. J'ai été accueilli pour ce stage de deux mois à l'université Pontificia Universida de Católica do Rio de Janeiro par Enio Frota da Silveira et de Cassia Ponciano qui m'ont fait partager leur passion pour la recherche et je les en remercie. Je n'oublierai jamais ces moments.*

*Merci à Frédéric Ropars de m'avoir formé et aidé à faire fonctionner l'acquisition et l'électronique associé.*

*Ce travail n'aurait bien sûr pas été abouti sans l'implication d'un certain nombre de personnes du CIMAP. Je tiens donc à remercier pour l'aide qu'ils ont pu m'apporter : Jean-Marc Ramillon, Thierry Been, Daniel Lelièvre, Patrick Guinement, Toiammou Madi, Florent Durantel, Fabien Noury, Stéphane Guillous et Alicja Domaracka.*

*J'exprime tous mes remerciements à tous les membres des groupes MADIR et AMA.*

*Je remercie grandement ma famille sans qui je n'en serais jamais arrivé là. Ils m'ont soutenu tout au long de mes études et dans mes choix.*

*Ce mémoire est dédié aux membres de ma famille présents ou partis.*



*Effets de l'irradiation par des ions lourds  
multichargés sur des cristaux et des glaces d'intérêt  
astrophysique*

**Table des matières**

<b>Introduction .....</b>	<b>7</b>
A - Le milieu interstellaire .....	10
1 - Un milieu interstellaire multi-phase.....	10
a - Milieu diffus.....	10
b - Nuage dense ou nuage moléculaire.....	11
2 - Cycle du milieu interstellaire .....	11
3 - Les grains de poussière .....	11
4 - Interaction des particules énergétiques avec le milieu interstellaire.....	13
B - Le système solaire .....	14
1 - Interaction des particules chargées énergétiques dans le système solaire .....	15
<b>Chapitre 1 : Interaction ion-matière .....</b>	<b>17</b>
Introduction .....	18
A - Perte d'énergie du projectile .....	18
1 - Le pouvoir d'arrêt et le parcours.....	19
2 - Pouvoir d'arrêt nucléaire : domaine des collisions élastiques .....	19
3 - Pouvoir d'arrêt électronique : domaine des collisions inélastiques .....	20
a - Régime des grandes vitesses $v_1 \gg Z_1^{2/3} v_0$ .....	20
b - Régime des vitesses intermédiaires $v_1 \approx Z_1^{2/3} v_0$ .....	21
c - Régime des basses vitesses $v_1 \ll Z_1^{2/3} v_0$ .....	21
4 - Programme SRIM2013 .....	22
B - Pulvérisation par impact d'ions.....	23
1 - Pulvérisation induite par ralentissement nucléaire.....	23
a - Régime de collisions simples .....	23
b - Régime de cascade linéaire .....	24
c - Régime de cascade linéaire ou cascade de pointe .....	24

d - Résultats expérimentaux .....	24
2 - Pulvérisation potentielle.....	25
a - Résultats expérimentaux .....	26
3 - Pulvérisation induite par ralentissement électronique .....	28
a - Modèle de la pointe thermique.....	28
b - Modèle de l'onde de choc et de l'impulsion de pression.....	29
c - Modèle de l'explosion coulombienne .....	29
d - Résultats expérimentaux .....	29
C - Conclusion.....	32
<b>Chapitre 2 : Dispositifs expérimentaux .....</b>	<b>33</b>
Introduction .....	34
A - Dispositif PDMS présent à Rio de Janeiro.....	34
B - Le GANIL .....	36
1 - Aire expérimentale D1 .....	37
2 - Plateforme ARIBE .....	37
C - Système d'imagerie fonctionnant sous ultra-vide : AODO .....	38
D - Le spectromètre de temps de vol (TOF) et de positions (XY).....	40
1 - Le détecteur d'ions secondaires .....	40
2 - Extraction des ions secondaires .....	41
a - Spectromètre à une grille.....	42
b - Spectromètre à deux grilles.....	42
3 - Détection des ions et amplification du signal .....	42
4 - Temps de vol TOF (Time Of Flight) .....	44
5 - Pulsation du faisceau.....	45
6 - Localisations des ions : Anode à lignes de retard.....	47
E - Electronique de détection et système d'acquisition.....	49
F - Analyse des données : Principe et étalonnage .....	52
1 - Introduction.....	52

2 - La ligne de gaz .....	52
a - Spectromètre à une grille.....	52
b - Spectromètre à deux grilles.....	54
3 - Etalonnage en positions X et Y .....	55
a - Détermination de l'origine en positions $X_0$ et $Y_0$ .....	55
b - Etalonnage des positions X et Y en mètre .....	57
4 - Etalonnage en temps de vol TOF et en masse .....	58
5 - Calculs des composantes du vecteur vitesse .....	59
a - Spectromètre à une grille.....	59
b - Spectromètre à deux grilles.....	59
<b>G - Préparation des échantillons.....</b>	<b>61</b>
1 - Le fluorure de lithium LiF .....	61
2 - Silicates .....	62
3 - Glaces.....	62
<b>Chapitre 3 : Emission des agrégats : Fluorure de lithium et glaces d'eau.....</b>	<b>65</b>
Introduction .....	66
A - Effets des ions rapides sur des cibles de LiF polycristallin .....	67
1 - Distributions en masse .....	67
2 - Evolution des rendements en fonction de la taille des agrégats et de l'épaisseur de la cible .....	69
3 - Distributions en énergie .....	72
a - En fonction de la taille de l'agrégat .....	72
b - En fonction de l'épaisseur de la cible .....	74
B - Effets des ions lents sur des cibles de LiF monocristallin.....	75
1 - Distributions en masse .....	75
2 - Evolution des rendements en fonction de la taille des agrégats.....	76
3 - Effets de la charge et de l'énergie cinétique sur les rendements .....	78
4 - Rendement du monomère $Li^+$ en fonction de l'angle d'incidence $\delta$ .....	79
5 - Distributions en énergie .....	80



C - Effets des ions lents sur des glaces d'intérêt astrophysique : H <sub>2</sub> O.....	81
1 - Distributions en masse .....	81
2 - Evolution des rendements en fonction de la taille des agrégats.....	83
3 - Contribution des ions de la magnétosphère de Jupiter à la pulvérisation .....	84
D - Bilan .....	89
<b>Chapitre 4 : Simulation en laboratoire des effets des ions lourds sur des silicates d'intérêt astrophysique .....</b>	<b>91</b>
Introduction .....	92
A - Simulation en laboratoire des effets des rayons cosmiques sur des surfaces de météorites : effets des ions rapides sur la néphéline .....	93
1 - Distributions en masse .....	95
2 - Rendements des ions secondaires positifs .....	95
3 - Pulvérisation : contribution des rayons cosmiques .....	97
4 - Distribution en masse des ions négatifs .....	102
B - Simulation en laboratoire des effets du vent solaire sur des matériaux modèles des surfaces de Mercure : effets des ions lents sur la néphéline.....	103
1 - Distribution en masse.....	104
2 - Evolution des rendements en fonction de la fluence.....	105
3 - Pulvérisation : contribution du vent solaire .....	106
4 - Distributions en énergie .....	107
C - Bilan .....	109
<b>Conclusion.....</b>	<b>111</b>
<b>Annexes .....</b>	<b>115</b>
Annexe 1 : Expression du temps de vol TOF de la ligne de gaz.....	116
1 - Spectromètre à une grille .....	116
a - Calcul de t <sub>1</sub> (extraction).....	117
b - Calcul de t <sub>2</sub> (post accélération) .....	117
c - Calcul de t <sub>s</sub> .....	117

2 - Spectromètre à deux grilles.....	118
Annexe 2 : Expression du temps de vol TOF des ions secondaires .....	119
1 - Spectromètre à une grille .....	119
a - Deuxième loi de Newton.....	119
b - Théorie de l'énergie cinétique.....	119
2 - Spectromètre à deux grilles.....	120
Annexe 3 : Calcul du vecteur vitesse .....	121
Annexe 4 : Incertitudes.....	123
1 - Incertitudes sur les positions X et Y .....	123
2 - Incertitudes sur le temps de vol TOF .....	123
3 - Incertitudes sur les distributions en énergie N(E).....	123
4 - Incertitudes sur les distributions en angle N( $\theta$ ) .....	124
Annexe 5 : Méthode d'étalonnage.....	125
1 - Etalonnage en positions X et Y.....	125
2 - Etalonnage en temps de vol et en masse .....	127
Annexe 6 : Energie de libération.....	129
Annexe 7 : Fluorure de lithium .....	130
Annexe 8 : Silicates d'intérêt astrophysique .....	131
1 - L'anorthite.....	131
2 - La jadéite.....	132
3 - Le SiO <sub>2</sub> .....	133
4 - La néphéline.....	134
<b>Bibliographie.....</b>	<b>135</b>



# Introduction

## Introduction

Au cours des dernières décennies, les progrès de la technologie ont permis une meilleure compréhension des phénomènes astrophysiques. L'univers peut être exploré au moyen de télescopes (spatiaux ou au sol) et de sondes spatiales. Il est ainsi possible de déduire des informations sur la composition, l'interaction avec le milieu environnant et l'évolution du système solaire et du milieu interstellaire [Johnson 1992, Leblanc 2007, McNutt Jr. 2014].

Pour interpréter et compléter les données observationnelles, il est nécessaire de les associer à des modèles élaborés sur la base d'expériences de laboratoire simulant par exemple l'interaction des particules chargées avec des surfaces d'intérêt astrophysique (glaces, silicates ou matériaux carbonés). De nombreux travaux, théoriques comme expérimentaux, ont déjà été réalisés. La plupart des études concernent les effets des ions légers, comme  $H^+$  ou  $He^+$  [Demyk 2001, Baragiola 2002, Demyk 2004]. Peu d'études ont été réalisées avec des ions lourds. Malgré leur faible abondance, le flux de Fe est  $10^4$  fois moins important que le flux des protons [Mandella 2003, Bennett 2013], les ions lourds déposent une quantité d'énergie beaucoup plus élevée. De plus, les rendements des particules pulvérisées varient en  $S_e^n$ . L'exposant  $n$  du pouvoir d'arrêt électronique dépend du matériau. Par exemple, il a été montré que  $n = 2$  pour les glaces [Brown 1980a, Brown 1980b] et  $n = 4$  pour le LiF [Toulemonde 2003]. Dans le cas des glaces, les études démontrent que, dans le milieu interstellaire, la contribution des ions lourds à la pulvérisation peut être prépondérante par rapport aux ions légers [Domaracka 2010, Seperuelo Duarte 2010].

Un important travail d'investigation reste donc à mener pour étudier les effets des ions lourds sur des matériaux d'intérêt astrophysique. Au cours de cette thèse, menée au Centre de recherche sur les Ions, les MATériaux et la Photonique ("CIMAP") et en collaboration avec l'université Pontificia Universidade de Católica do Rio de Janeiro ("PUC-Rio") et l'observatoire astrophysique de Catane ("INAF-Catania"), nous avons tout d'abord étudié le fluorure de lithium LiF. Le LiF est un isolant cristallin modèle qui possède un gap élevé de l'ordre de 14 eV. Ce matériau, étudié à de nombreuses reprises [Hijazi 2011a, Hijazi 2011c, Hijazi 2014a, Toulemonde 2003], nous a permis de développer et mettre au point le dispositif de temps de vol ("Time Of Flight", TOF) et de localisations (X,Y) nommé AODO [Hijazi 2011b]. Il s'agit de la technique d'imagerie appelée "XY-TOF-SIMS" ("Secondary Ion Mass Spectrometry", SIMS). Dans un second temps, nous avons simulé en laboratoire les effets des ions lourds lents et rapides sur des analogues astrophysiques. Ces matériaux sont principalement des silicates et des gaz condensés refroidis, c'est-à-dire des glaces. À l'aide des dispositifs AODO et PDMS ("Plasma Desorption Mass Spectrometer") [Macfarlane 1976] présent à l'université catholique de Rio de Janeiro, nous avons étudié la pulvérisation des ions secondaires produite lors de la collision sur des silicates et des glaces. Ces études nous permettront de comprendre comment l'énergie déposée modifie le matériau et sa surface.

Dans le premier chapitre, nous décrivons l'interaction ion-matière et présenterons les modèles théoriques et les travaux expérimentaux déjà réalisés sur le phénomène de pulvérisation.

Dans le chapitre deux, nous exposerons la technique d'analyse utilisée pour effectuer ce travail de thèse. La première partie de ce chapitre concernera le système de temps de vol de Rio de Janeiro. La description du fonctionnement du spectromètre XY-TOF-SIMS présent successivement sur les lignes SME ("Sortie Moyenne Energie") et ARIBE ("Accélérateur pour la Recherche avec les Ions de Basses Energies") du GANIL ("Grand Accélérateur National d'Ions Lourds", Caen, France) conclura ce chapitre.

## Introduction

Le troisième chapitre est consacré à l'étude de l'émission des agrégats. Nous nous sommes intéressés tout particulièrement au LiF et à des glaces d'intérêt astrophysique. Dans ce chapitre, nous nous focaliserons en particulier sur l'évolution des rendements des agrégats en fonction de leur taille et de l'épaisseur de la cible.

L'objectif du quatrième chapitre est de présenter des simulations en laboratoire des effets des ions lents ou rapides sur des silicates comme la néphéline. Ils sont présents à la surface de météorites [Young 1998, Shimoda 2005, Dobrică 2010] et à la surface de planètes et de lunes rocheuses [Sangiorgio 2014]. Nous montrerons les distributions en masse des ions secondaires émis de la néphéline. La présentation des distributions en énergie conclura ce chapitre.

Ce manuscrit se terminera par une conclusion dédiée aux nouvelles perspectives induites par ce travail.

Nous décrivons dans les prochains paragraphes le contexte astrophysique en nous intéressant plus particulièrement au milieu interstellaire et au système solaire. Nous insisterons sur l'interaction entre les particules et les matériaux présents dans ces milieux.

## A- Le milieu interstellaire

Le milieu interstellaire est par définition l'espace qui sépare les étoiles au sein des galaxies. Il représente environ 10% de la masse totale des étoiles d'une galaxie [Kaiser 2002]. Ce milieu se compose de matière diluée, neutre ou ionisée et de grains de poussière. Il est composé en masse d'un mélange de gaz, principalement d'hydrogène (70%), d'hélium (28%), et de 2% d'éléments plus lourds comme l'oxygène, l'azote, le carbone, le magnésium, le silicium et le fer [Lequeux 2002, Tielens 2005]. Ces éléments se retrouvent aussi bien dans le gaz, sous forme atomique ou moléculaire, que dans les grains de poussière [Cecchi-Pestellini 2012].

### 1 - Un milieu interstellaire multi-phase

Le milieu interstellaire est soumis en permanence à de nombreux processus qui génèrent des états extrêmement variés, des plasmas très chauds aux nuages denses et froids. Il peut être classifié en plusieurs composantes : les milieux ionisés (tiède, chaud), les milieux neutres (tiède, froid) et les nuages moléculaires ou nuages denses. Ces milieux sont différenciés selon la densité et la température du gaz d'hydrogène. Le tableau 1 décrit les différentes phases du milieu interstellaire [Tielens 2005].

Phases	Densité (cm <sup>-3</sup> )	Température (K)	Volume (% du volume du MI)
Milieu tiède neutre	0.1 - 10	10 <sup>3</sup> - 10 <sup>4</sup>	30 - 60
Milieu froid neutre	1 - 10 <sup>3</sup>	50 - 100	1 - 5
Milieu chaud ionisé	10 <sup>-4</sup> - 10 <sup>-2</sup>	10 <sup>5</sup> - 10 <sup>7</sup>	20 - 50
Milieu tiède ionisé	0.1	10 <sup>3</sup> - 10 <sup>4</sup>	~ 20
Nuage dense	10 <sup>2</sup> - 10 <sup>6</sup>	5 - 50	~ 1

*Tableau 1 : Caractéristiques physiques des différentes phases du milieu interstellaire [Tielens 2005].*

#### a) Milieu diffus

- Milieu chaud ionisé : cette phase entièrement ionisée et très peu dense ( $n_H = 10^{-4} - 10^{-2} \text{ cm}^{-3}$ ) représente l'essentiel du volume du milieu interstellaire. Le milieu, chauffé à haute température par des ondes de chocs issues de vents stellaires et de l'explosion de supernovae, émet des photons dans le domaine des rayons X et UV [Tielens 2005].
- Milieu tiède ionisé et milieu tiède neutre : ces milieux diffus et chauds composent la partie la plus extérieure autour des nuages denses. La distinction entre ces deux milieux est très difficile. Seul le degré d'ionisation de l'hydrogène permet de différencier ces deux phases [Tielens 2005].
- Milieu froid neutre : ce milieu dense ( $n_H = 1 - 10^3 \text{ cm}^{-3}$ ) et froid ( $T_H = 50 - 100 \text{ K}$ ) est présent principalement sous forme de filaments autour des nuages denses [Tielens 2005].

### b) Nuage dense ou nuage moléculaire

Les nuages denses ou moléculaires ne représentent qu'une très faible fraction du volume du milieu interstellaire (1 %). Ils contiennent la plus grande partie de sa masse (30 à 60 % du milieu interstellaire). Ces nuages denses ( $n_H = 10^2 - 10^6 \text{ cm}^{-3}$ ) et froids ( $T_H = 5 - 50 \text{ K}$ ) ont une taille typique de quelques dizaines de parsecs<sup>1</sup>. Ils sont formés par condensation d'un nuage diffus. Le gaz moléculaire est composé majoritairement de  $\text{H}_2$ , de  $\text{CO}$  et d'autres molécules telles que  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_3\text{OH}$  et  $\text{CO}_2$  [d'Hendecourt 2001, Palumbo 2008a, Burke 2010].

## 2 - Cycle du milieu interstellaire

Le milieu interstellaire et ses différentes phases sont étroitement associés au cycle de vie et de mort des étoiles. Les nuages diffus présents au sein du milieu interstellaire peuvent devenir par endroit gravitationnellement instables et former par condensation des nuages moléculaires. Sous l'effet de la gravité ou de forces externes (champs magnétiques, agitation thermique, ...), les nuages moléculaires s'effondrent et peuvent donner naissance à des protoétoiles. Quand la température et la pression au sein de la protoétoile sont suffisantes pour induire des réactions nucléaires, une étoile vient de naître. À la fin de sa vie, lorsque tout son carburant est épuisé, d'importantes quantités de matière sont éjectées par le vent stellaire, ou par une explosion dans le cas d'une supernova. Des poussières peuvent se former par nucléation dans l'atmosphère de l'étoile, et sont éjectées dans le milieu interstellaire diffus environnant, l'enrichissant en éléments lourds. Le cycle de la matière se poursuit ainsi, créant de nouvelles étoiles à partir du milieu interstellaire [Tielens 2005, Demyk 2011].

## 3 - Les grains de poussière

Les grains de poussières représentent la phase solide du milieu interstellaire et sont observés dans toutes ses composantes. Malgré leur contribution minoritaire (1% de la masse totale du milieu interstellaire), les grains jouent un rôle majeur dans les équilibres physico-chimiques du milieu interstellaire et dans son évolution [Herbst 2005, Burke 2010]. La composition chimique des grains est variée :

- Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) représentent la classe des plus petits grains de poussière. Ces grains comportent plusieurs cycles aromatiques et les plus petits d'entre eux sont composés de 10-1000 atomes de carbone. La taille de ces grains est de l'ordre de quelques nanomètres [Millar 1995, Rastogi 2005]. De nombreuses bandes caractéristiques des HAP ont été observées dans le milieu interstellaire. Elles se situent aux longueurs d'onde 3.3, 6.2, 7.7, 8.7 et 11.3  $\mu\text{m}$  [Allamandola 1989].

---

<sup>1</sup> Le parsec est défini comme la distance à laquelle une unité astronomique sous-tend un angle d'une seconde d'arc. Un parsec vaut  $3.085678 \times 10^{16} \text{ m}$ , donc environ 3 années lumière.



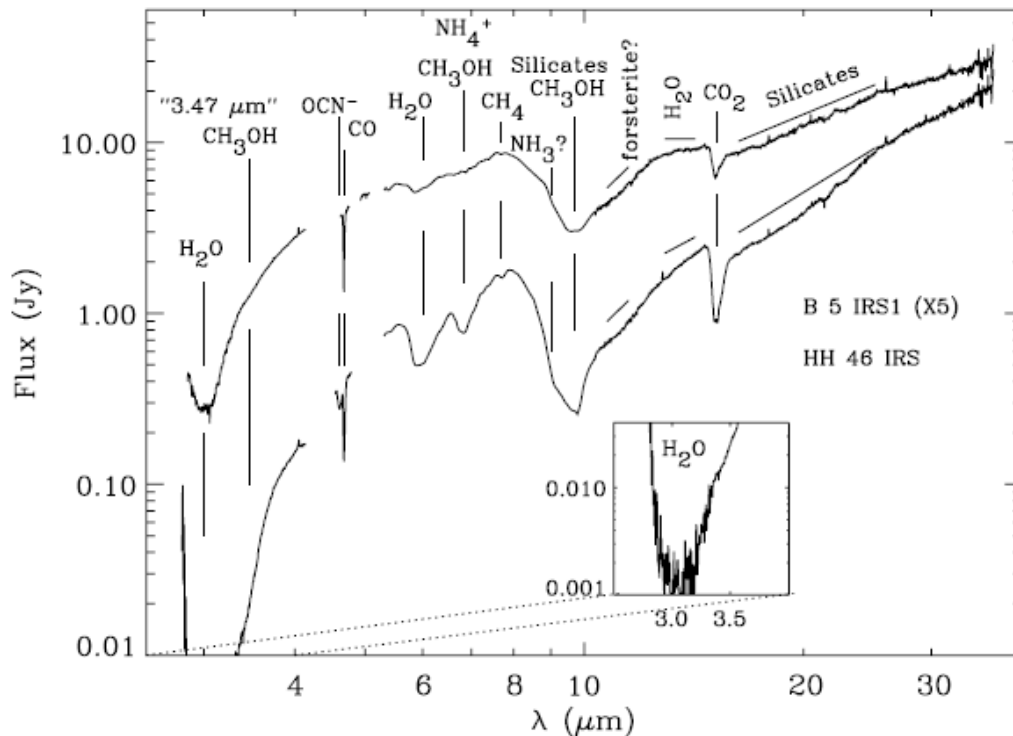


Figure 1 : Spectres infrarouges de deux jeunes étoiles B5 IRS 1 et HH 46 IRS intégrées dans un nuage moléculaire ("Bamard 5"), obtenus grâce au télescope "Spitzer" [Boogert 2004].

- Les grains à base de carbone amorphe hydrogéné : ils comprennent des chaînes aliphatiques saturées et insaturées. Elles peuvent se lier pour donner une phase macromoléculaire [Jones 2014]. Ces grains hydrocarbonés sont observés dans le domaine de l'infrarouge à 3.4, 6.9 et 7.3  $\mu\text{m}$ , caractéristiques des vibrations des liaisons C-H aliphatiques [Wickramasinghe 1980, Godard 2011].
- Les grains à base de silicates et d'oxydes métalliques : ils sont composés principalement de Si, O, Mg et Fe. D'autres éléments peuvent constituer les grains : Na, Ca et Al. Ils forment la classe des plus gros grains et leur taille est de l'ordre du micromètre [Cecchi-Pestellini 2012]. Plusieurs groupes de silicates existent mais les plus courants sont ceux appelés olivines ( $\text{Si/O} = 1/4$ ) et pyroxènes ( $\text{Si/O} = 1/3$ ) [Godard 2011].

Dans les milieux denses et froids comme les nuages moléculaires, les grains peuvent être recouverts d'un manteau de glaces (typiquement 40 - 100 monocouches). Ces glaces sont composées de molécules gelées à leur surface, majoritairement  $\text{H}_2\text{O}$ , et d'autres molécules telles que  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{NH}_3$  et  $\text{CH}_3\text{OH}$  [d'Hendecourt 2001, Palumbo 2008a, Burke 2010]. La formation des glaces n'est pas totalement comprise. Elles peuvent être formées à partir de la phase interstellaire volatile [Palumbo 2008a]. L'autre hypothèse consiste en une formation directe des glaces sur les grains par réactions surfaciques [Dulieu 2010].

De nombreuses bandes d'absorption dans l'infrarouge, propres aux glaces et aux silicates, attestent de leur présence, comme par exemple les spectres infrarouges de deux jeunes étoiles (B5 IRS 1 et HH 46 IRS) obtenus grâce au télescope spatial infrarouge "Spitzer" (figure 1).

## 4 - Interaction des particules énergétiques avec le milieu interstellaire

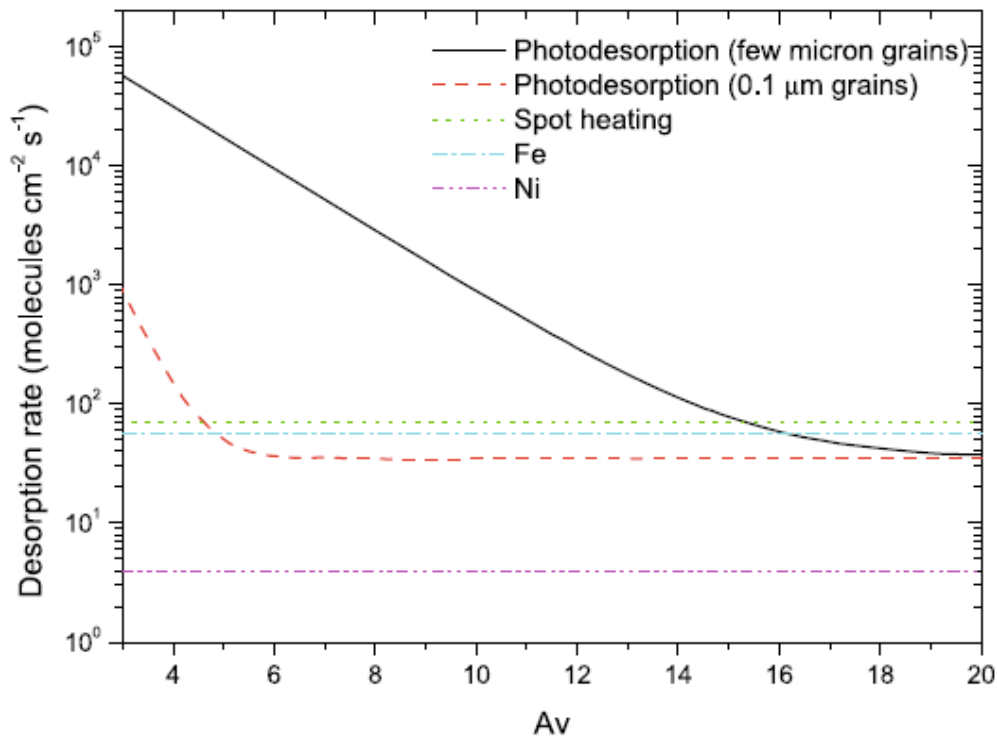


Figure 2 : Taux de désorption des neutres en fonction de l'extinction visuelle dans le cas d'une glace de CO [Seperuelo Duarte 2010].

Les rayons cosmiques et les photons UV interagissent continuellement avec le milieu interstellaire. Dans certaines régions du milieu interstellaire où la densité est importante, les photons UV ne peuvent pas pénétrer profondément. Les seules particules énergétiques capables de pénétrer dans ces régions sont les rayons cosmiques. Ils sont constitués de protons (87 %), d'hélium (12 %) et d'éléments plus lourds (C, O, Ni, Fe, ...) (1-3 %) [Simpson 1983, Shen 2004], d'énergie moyenne de l'ordre de la dizaine de MeV/u [Johnson 1990, Cooper 2003]. Ces éléments sont issus de l'explosion de supernovae [Biermann 2010].

Les rayons cosmiques jouent un rôle majeur dans les modifications physiques et chimiques des grains du milieu interstellaire [Leger 1985]. La surface des grains est le siège d'une chimie hétérogène, où de nouvelles espèces sont produites grâce à des réactions catalytiques [Cassidy 2010]. Des changements morphologiques (compaction, amorphisation) [Strazzulla 1992, Dartois 2013] et des phénomènes de radiolyse [Cassidy 2010, Pilling 2011] peuvent aussi se produire. Les rayons cosmiques sont également à l'origine de mécanismes tels que la pulvérisation de particules. La pulvérisation permet de remettre en phase gaz les différentes particules présentes à la surface des grains. Les particules éjectées peuvent se redéposer contribuant ainsi à des changements de composition, de stœchiométrie et à une chimie de surface. La figure 2 présente le taux de désorption des neutres issu de l'interaction entre une glace de CO et différents projectiles tels que les ions lourds Fe et Ni et les photons. Les rayons cosmiques et les photons UV pénètrent différemment dans le milieu interstellaire. La contribution des ions lourds à la pulvérisation peut être plus importante que celle des photons.

## B - Le système solaire

Les observations réalisées à partir de sondes spatiales et de télescopes nous apportent des informations sur la composition de certains objets présents dans notre système solaire. Le télescope spatial Hubble, ainsi que les sondes “Galileo”<sup>2</sup> et “Cassini”<sup>3</sup> ont démontré la présence de nombreux matériaux tels que les glaces et les silicates [Papike 1991, Martín 2006].

Les glaces sont présentes dans de nombreux objets du système solaire. Elles ont été détectées à la surface de planètes, de satellites et de comètes [Fornasier 2004, Palumbo 2008a, Bennett 2013]. Les lunes de Jupiter, Europa, Ganymède, Io et Callisto sont recouvertes en grande partie par des glaces (tableau 2) [Palumbo 2008a]. De même, les objets Transneptuniens dévoilent une variété de colorations qui est attribuée à la présence de glaces “colorées” par des molécules organiques complexes [Licandro 2001, Fornasier 2004].

Lunes de Jupiter	Glaces
Io	SO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> S, H <sub>2</sub> O
Europa	H <sub>2</sub> O, SO <sub>2</sub> , CO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>
Ganymède	H <sub>2</sub> O, O <sub>2</sub> , O <sub>3</sub> , CO <sub>2</sub>
Callisto	H <sub>2</sub> O, SO <sub>2</sub> , CO <sub>2</sub>

Tableau 2 : Glaces présentes sur les lunes galiléennes de Jupiter [Palumbo 2008a].

Les silicates sont un autre matériau abondamment présent dans le système solaire, par exemple sur la surface de la Lune [Papike 1991]. La Lune est le seul corps planétaire (en plus de la terre et de Mars) sur lequel une étude approfondie des roches présentes à sa surface a été réalisée. Différents échantillons ont été collectés par les sondes spatiales “Apollo” et “Luna” (tableau 3).

	A-14	A-16	L-16	L-20
Pyroxène	31.9 %	8.5 %	57.3 %	27.0 %
Plagioclase	31.8 %	69.1 %	14.2 %	52.1 %
Olivine	6.7 %	3.9 %	10.0 %	6.6 %
Silice	0.7 %	0.0 %	0.0 %	0.5 %
Autres	28.9 %	18.5 %	18.5 %	13.8 %

Tableau 3 : Principaux constituants d'échantillons lunaires obtenus lors des missions Apollo (A) et Luna (L) [Papike 1991].

Les analyses de ces échantillons ont montré que les surfaces lunaires sont composées de silicates (tableau 3), principalement du SiO<sub>2</sub>. Ces surfaces contiennent aussi des oxydes, majoritairement Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO, FeO, CaO et des traces de Na<sub>2</sub>O et K<sub>2</sub>O [Madey 2002]. De plus, des études de réflexion optique des surfaces de Mercure ont mis en évidence la présence de silicates de magnésium [Madey 2002].

<sup>2</sup> Galileo est une sonde spatiale développée par la NASA qui avait pour mission d'étudier la planète Jupiter et ses lunes.

<sup>3</sup> Cassini est la sonde spatiale automatique de la mission Cassini-Huygens. Elle avait pour but l'étude de la planète Saturne et de plusieurs de ses satellites.

# 1 - Interactions des particules chargées énergétiques dans le système solaire

Dans le système solaire, la majeure partie des particules chargées énergétiques proviennent du vent solaire<sup>4</sup>, des éruptions solaires et des rayons cosmiques. L'activité volcanique est une autre source de particules chargées. Par exemple, la lune Io éjecte, par volcanisme, des ions soufre et carbone dans la magnétosphère de Jupiter [Johnson 1992]. Toutes ces particules peuvent contribuer à la pulvérisation et à la chimie par implantation [Leblanc 2007, Lv 2014]. Les photons peuvent aussi interagir avec le milieu environnant.

En fonction de leur vitesse, les particules pulvérisées peuvent s'échapper du champ gravitationnel de l'astre ou contribuer à la formation d'une atmosphère. Différentes études soutiennent le fait que la pulvérisation de glaces est le phénomène le plus probable dans la génération de l'atmosphère de nombreux satellites, tels que Ganymède et Europa [Johnson 1996, Madey 2002]. La pulvérisation de Na provenant des minéraux présents à la surface de Mercure et de la Lune semble être la source la plus importante du sodium présent dans leur exosphère [Leblanc 2007]. La néphéline est un matériau modèle de ces surfaces [Sangiorgio 2014]. Dans le chapitre 4, nous décrirons l'effet des ions rapides et lents sur cet analogue.

La pulvérisation génère aussi des phénomènes d'érosion, de chimie de surface et de redéposition. Ils peuvent ainsi induire des changements de composition et de stœchiométrie de la surface [Loeffler 2008, Meyer 2011].

L'interaction entre les ions lents ou rapides avec les surfaces astrophysiques provoque la genèse de plusieurs phénomènes issus de la pulvérisation. Il nous a donc semblé important d'étudier ce mécanisme.

---

<sup>4</sup> Le vent solaire est constitué d'électrons de basses énergies et d'ions issus du soleil. Ces ions sont principalement de l'hydrogène (~ 96%), de l'hélium (~ 4%) et des traces d'éléments plus lourds (C, O, Si, Fe, ...). Les ions du vent solaire ont une énergie moyenne de l'ordre du keV [Shen 2004, Barghouty 2011]



# Chapitre 1

## Interaction ion-matière

## Introduction

Ce chapitre est consacré à la description de l'interaction ion-matière. Il débutera par des rappels généraux sur le processus de perte d'énergie des ions dans la matière condensée. Dans une seconde partie, nous décrirons le phénomène de pulvérisation de particules.

## A - Perte d'énergie du projectile

Lors de l'interaction entre un faisceau d'ions et la matière, le projectile est ralenti. Ce ralentissement s'effectue par un transfert de l'énergie de l'ion vers la matière. Le transfert d'énergie peut conduire ensuite à un endommagement de la cible et à l'émission de particules de sa surface (pulvérisation). Les principaux mécanismes qui régissent l'interaction entre un ion et la matière sont :

- Les collisions élastiques entre l'ion et les noyaux de la cible. Au cours de ces collisions, l'interaction est de type coulombienne, plus ou moins écrantée. Elles sont dominantes pour des ions de basse énergie (1 à 100 keV/u). Dans le cas des ions de plus haute énergie, ce mécanisme n'est à considérer qu'en fin du parcours dans la matière.
- Les collisions inélastiques ou interaction avec les électrons de la cible, dominantes à haute énergie ( $> 100$  keV/u). Ce processus peut conduire à l'excitation et l'ionisation des atomes de la cible.
- L'énergie potentielle d'ions multichargés de basse énergie peut contribuer au dépôt d'énergie par capture des électrons de la cible.

Les contributions des différents mécanismes d'interaction sont dépendantes des caractéristiques de la cible ( $n_1$  la densité électronique,  $Z_1$  le numéro atomique,  $dx$  l'épaisseur) et de la particule incidente ( $n_2$ ,  $Z_2$ ,  $E_2$  l'énergie cinétique du projectile,  $q$  la charge du projectile).

Il faut néanmoins noter que les rayonnements cosmiques peuvent, en interagissant avec les noyaux, produire des particules secondaires de haute énergie. Ces interactions ne seront pas décrites dans ce chapitre.

## 1 - Le pouvoir d'arrêt et le parcours

La quantité d'énergie perdue  $dE$  par l'ion traversant une épaisseur de matière  $dx$  constitue un paramètre caractéristique des processus d'endommagement de la cible et de l'émission de particules. Ce paramètre est appelé pouvoir d'arrêt. Il dépend du matériau traversé ( $n_1, Z_1, dx$ ) et de la particule ( $n_2, Z_2, E_2, q$ ). Il est égal à :

$$S = -\frac{dE}{dx} \quad (1-1)$$

L'ion interagit avec la matière selon deux processus : les collisions élastiques liées aux chocs avec les noyaux de la cible (pouvoir d'arrêt nucléaire) et les collisions inélastiques liées à des excitations électroniques du milieu (pouvoir d'arrêt électronique). Le pouvoir d'arrêt total est la somme des pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{total} = \left(\frac{dE}{dx}\right)_{nucléaire} + \left(\frac{dE}{dx}\right)_{électronique} \quad (1-2)$$

Le parcours  $R_p$  de l'ion projectile correspond à la distance totale parcourue. Il est décrit par la relation suivante :

$$R_p = \int_0^{E_1} \left(\frac{dE}{dx}\right)^{-1} dE \quad (1-3)$$

Où  $E_1$  représente l'énergie initiale de la particule à son entrée dans le milieu.

Par exemple, le parcours d'un proton de 10 MeV dans une glace de  $H_2O$  est égal à 1.3 mm. Pour un ion nickel de même vitesse, il est de 24  $\mu m$ .

## 2 - Pouvoir d'arrêt nucléaire : domaine des collisions élastiques

Dominantes pour le ralentissement des projectiles à basse vitesse, les collisions élastiques correspondent aux chocs entre la particule incidente et les noyaux des atomes de la cible solide. Elles se traitent avec les règles de la mécanique classique. Le rôle des électrons se limite dans ce cas à un écrantage de la force répulsive coulombienne entre le projectile et le noyau de la cible. Afin de tenir compte de cette atténuation de la force de répulsion, un potentiel coulombien écranté peut être employé. En utilisant un potentiel écranté de type Thomas-Fermi, Biersack [Biersack 1968] proposa une expression du pouvoir d'arrêt nucléaire, de la forme :

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

Avec  $a$  le rayon d'écrantage en Å du potentiel de Thomas-Fermi.

$N$  le nombre de centres diffuseurs de la cible par unité de volume.

$Z_1, M_1$  et  $Z_2, M_2$  les numéros atomiques et les masses du projectile et de la cible.

$\varepsilon = \frac{M_2}{M_1+M_2} \frac{E_1 a}{Z_1 Z_2 e^2}$  avec  $E_1$  l'énergie de l'ion projectile.



### 3 - Pouvoir d'arrêt électronique : domaine des collisions inélastiques

Les principaux processus (ionisation, excitation et capture électronique) responsables de la perte d'énergie de l'ion dans la matière varient en fonction de la vitesse de ce dernier. Afin d'évaluer la perte d'énergie électronique, trois domaines de vitesse sont à prendre en compte. Ils sont définis par rapport à la quantité  $Z_1^{2/3}v_0$  avec  $Z_1$  le numéro atomique de l'ion incident et  $v_0$  la vitesse orbitale de l'électron 1s de l'atome d'hydrogène dans le modèle de Thomas-Fermi, c'est-à-dire la vitesse de Bohr :

$$v_0 = \frac{e^2}{\hbar} = 2.2 \times 10^8 \text{ cm s}^{-1} \quad (1-5)$$

La quantité  $Z_1^{2/3}v_0$  représente la vitesse moyenne des électrons dans le modèle de Thomas-Fermi.

En considérant  $v_1$  comme la vitesse du projectile, nous définissons :

- Le régime des grandes vitesses lorsque  $v_1 \gg Z_1^{2/3}v_0$ .
- Le régime des vitesses intermédiaires lorsque  $v_1 \approx Z_1^{2/3}v_0$ .
- Le régime des basses vitesses lorsque  $v_1 \ll Z_1^{2/3}v_0$ .

#### a) Régime des grandes vitesses $v_1 \gg Z_1^{2/3}v_0$

Dans ce cas, le projectile est rapidement épluché et il interagit à travers un potentiel purement coulombien (Rutherford) avec les électrons de la cible. Dans ce régime, le pouvoir d'arrêt s'exprime sous la forme :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = \frac{4\pi e^4 Z_1^2 Z_2 N}{m_e v_1^2} \ln\left(\frac{2m_e v_1^2}{I}\right) \text{ [Bethe 1933]} \quad (1-6)$$

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

$v_1$  la vitesse du projectile,

$m_e$  la masse de l'électron,

$I$  le potentiel moyen d'ionisation  $\left(\frac{I}{Z_2} \approx 10 \text{ eV}\right)$ .

Dans ce domaine de vitesse, la perte d'énergie est proportionnelle à :

$$\frac{Z_1^2 \ln(E_1)}{E_1} \approx \frac{Z_1^2 \ln(v_1^2)}{v_1^2} \quad (1-7)$$

Avec  $E_1$  l'énergie initiale du projectile.

$Z_1^2/v_1^2$  le paramètre de Sommerfeld ou paramètre de perturbation.

La perte d'énergie diminue lorsque l'énergie du projectile augmente.

b) Régime des vitesses intermédiaires  $v_1 \approx Z_1^{2/3} v_0$

Dans le régime des vitesses intermédiaires, les processus de capture rentrent en concurrence avec les processus d'ionisation. L'ion projectile n'est plus totalement épluché. Il capture des électrons de la cible et son état de charge diminue. Sa charge électrique moyenne devient inférieure à  $Z_1 e$ . Le pouvoir d'arrêt électronique devient ainsi plus faible que ne le prévoit la formule de Bethe pour un ion nu. Le terme  $Z_1$  est remplacé par :

$$Z_{eff} = Z_1 \left(1 - e^{-125\beta Z_1^{-2/3}}\right) = Z_1 \left(1 - e^{-125 \frac{v Z_1^{-2/3}}{c}}\right) \text{ [Brandt 1982]} \quad (1-8)$$

c) Régime des basses vitesses  $v_1 \ll Z_1^{2/3} v_0$

À basses vitesses, l'ion possède la plus grande partie de ses électrons. Au cours de la collision entre l'ion et un atome cible, les nuages électroniques des deux partenaires se recouvrent. Il y a formation d'une quasi-molécule possédant ses propres états moléculaires. Seuls les électrons faiblement liés de la cible contribuent à la perte d'énergie de l'ion. Lindhard, Scharff et Schiøtt [Lindhard 1963] (théorie LSS) et Firsov [Firsov 1959] ont montré que, dans ce domaine de vitesse, le pouvoir d'arrêt électronique est proportionnel à la vitesse de l'ion  $v_1$ . Ils ont chacun proposé une expression du pouvoir d'arrêt électronique à faible vitesse :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = 5.15N(Z_1 + Z_2)10^{-15} \frac{v_1}{v_0} \quad (\text{Firsov, exprimé en eV.cm}^{-1}) \quad (1-9)$$

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = 8\pi e^2 a_0 Z_1^{1/6} N \frac{z_1 z_2}{(z_1^{2/3} + z_2^{2/3})^{3/2}} \frac{v_1}{v_0} \quad (\text{Lindhard}) \quad (1-10)$$

où  $a_0$  correspond au rayon de Bohr, avec  $a_0 = 0.529 \cdot 10^{-8}$  cm.

## 4 - Programme SRIM2013

Au cours de cette thèse, les pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique ont été estimés à partir du programme SRIM2013 [Ziegler 1985]. Dans ce programme, le pouvoir d'arrêt des ions est déduit d'expressions ajustant les pouvoirs d'arrêt expérimentaux des protons, corrigés de la vitesse et de la charge effective de l'ion. Les paramètres pris en compte sont l'énergie, la vitesse, la masse de l'ion incident ainsi que les caractéristiques du matériau cible. La figure 1-1 décrit l'évolution du pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire dans la glace de H<sub>2</sub>O pour des faisceaux de xénon et d'oxygène.

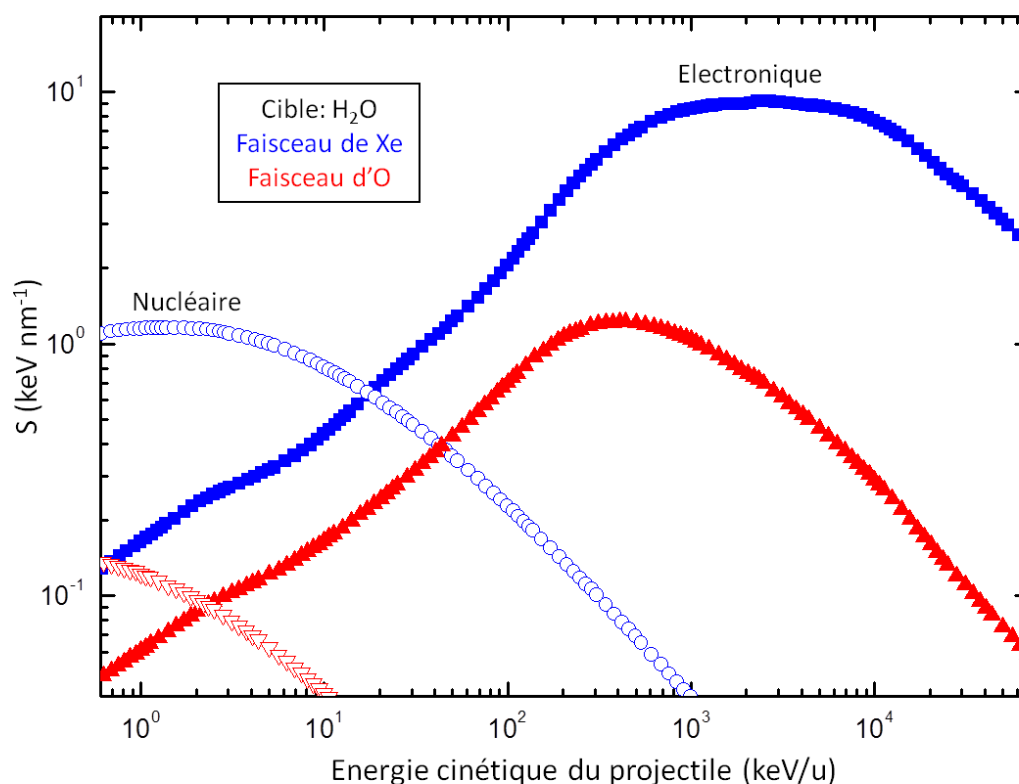


Figure 1-1 : Evolution de la perte d'énergie nucléaire et électronique dans le cas d'ions Xe et O sur une cible de glace de H<sub>2</sub>O, calculées avec le code SRIM [Ziegler 1985].

## B - Pulvérisation par impact d'ions

L'irradiation d'un solide par un faisceau d'ions peut induire l'érosion de sa surface et provoquer l'éjection d'atomes, de molécules ou d'agrégats neutres et ionisés. La pulvérisation peut résulter d'un transfert de quantité de mouvement des ions projectiles aux atomes de la cible ou de processus indirects liés aux électrons du solide. Les éléments neutres éjectés de la surface représentent la fraction majoritaire des particules pulvérisées.

En fonction de l'énergie cinétique des ions incidents, deux mécanismes de dépôt d'énergie responsables de la pulvérisation coexistent : la pulvérisation nucléaire induite par collision élastique et la pulvérisation électronique due aux collisions inélastiques. Il existe un troisième mécanisme de dépôt d'énergie lié à l'énergie potentielle des ions incidents : la pulvérisation potentielle induite par la capture due à la charge du projectile.

Ce chapitre constitue une présentation des modèles théoriques et des résultats expérimentaux se rapportant à la pulvérisation dans les deux régimes de ralentissement nucléaire et électronique et induite par la charge du projectile.

### 1 - Pulvérisation induite par ralentissement nucléaire

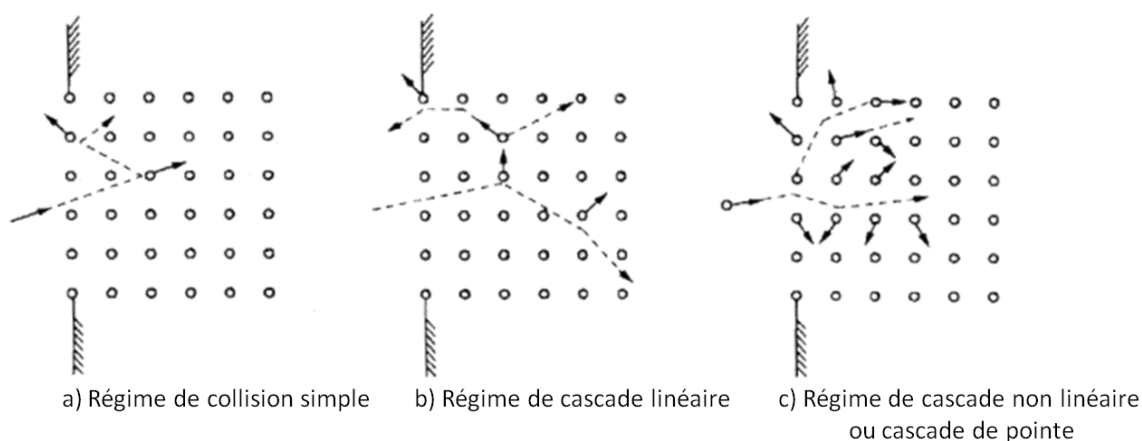


Figure 1-2 : Les trois régimes de pulvérisation nucléaire [Sigmund 1981a].

Quand un ion pénètre dans une cible solide, certains atomes mis en mouvement à proximité de la surface peuvent être éjectés du matériau. Ces atomes ont la possibilité de subir une ou plusieurs collisions avant d'être pulvérisés. En fonction du nombre d'atomes de recul créés par le passage de l'ion et de la quantité d'énergie initiale déposée sur l'atome, trois régimes de pulvérisation nucléaire existent : le régime de collisions simples, de cascades linéaires et de cascades non linéaires ou de pointe (figure 1-2).

#### a) Régime de collisions simples

Dans le régime de collisions simples, les atomes sont éjectés après un nombre réduit de collisions. L'énergie moyenne transférée à un atome de recul est insuffisante pour qu'une cascade de collision puisse se développer complètement. Ce régime, caractérisé par un faible nombre d'atomes pulvérisés, se produit avec des ions de faible énergie cinétique ou avec des ions légers (H, He de quelques keV).

La pulvérisation est induite par de très courtes séquences de collisions. Elle se produit quand l'énergie reçue par un atome-cible est suffisante pour franchir la barrière de surface.

### b) Régime de cascade linéaire

Dans le régime de cascade linéaire, les collisions entre le projectile et les atomes de la cible induisent la création d'atomes de recul. Ces atomes sont suffisamment énergétiques pour générer à leur tour une autre génération d'atomes de recul. Néanmoins, la densité d'atomes engagés dans une cascade est suffisamment faible pour que les collisions entre les atomes mis en mouvement soient très rares. Cette cascade se produit avec des projectiles d'énergie cinétique comprise entre le keV et la centaine de keV, excepté pour des ions très lourds pour lesquels la densité spatiale d'atomes en mouvement devient trop élevée [Sigmund 1981b]. La théorie de la pulvérisation dans le régime de cascade linéaire est bien établie et décrite avec précision par P. Sigmund [Sigmund 1969]. Ce modèle décrit une dépendance linéaire des rendements en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire  $Y \sim S_n$ . La distribution en énergie des particules éjectées est égale à :

$$N(E) \propto \frac{E}{(E+U_S)^{3-2m}} \quad (1-11)$$

où  $E$  l'énergie de l'ion secondaire,

$U_S$  représente l'énergie de liaison de surface,

$m$  : paramètre relatif aux potentiels d'interaction employés dans l'estimation des sections efficaces de collision.

Dans le chapitre 3, nous reviendrons sur ce modèle. En particulier, nous nous intéresserons aux distributions en énergie.

### c) Régime de cascade non linéaire ou cascade de pointe

Lors d'un dépôt d'énergie important aux atomes du réseau par les projectiles incidents, la plupart des particules se trouvant à l'intérieur d'un petit volume de la cascade de collision, appelé pointe, sont mises en mouvement. La densité d'atomes en mouvement est telle que les atomes collisionnent entre eux, ce qui induit des effets non linéaires. Il n'existe plus de séquence de collisions entre un atome au repos et un atome en mouvement pour définir une cascade linéaire.

### d) Résultats expérimentaux

De nombreux matériaux ont fait l'objet d'études, comme les isolants [Betz 1994, Sporn 1997, Winter 2000, Aumayr 2003], les métaux [Hansen 1998, Wahl 1994] ou les semi-conducteurs [Haranger 2006, Boudjadar 2005]. Dans ce paragraphe, nous décrirons l'évolution des rendements en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire  $S_n$  et de l'angle d'incidence  $\delta$  (par rapport à la normale à la surface), les distributions en angle et en énergie.

- Evolution des rendements en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire  $S_n$

Les rendements, en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire, présentent une dépendance linéaire [Sporn 1997, Baragiola 2003, Haranger 2006]. Ces résultats sont en accord avec le modèle de la cascade linéaire développé par P. Sigmund [Sigmund 1981b].

- Evolution des rendements en fonction de l'angle d'incidence  $\delta$

Les rendements de particules issues de la pulvérisation de métaux (Cu, Ag, ...), de semi-conducteurs (GaAs) et d'isolants (glace d'eau) induits par des ions lents décrivent une dépendance des rendements en  $\cos^{-n} \delta$ , avec  $1 \leq n \leq 2$  (figure 1-3) [Aoyama 1996, Vidal 2005, Fama 2008, Wei 2008, Johnson 2013]. Lorsqu'un ion pénètre dans le matériau avec une incidence différente de la normale, il parcourt une distance plus grande sous la surface. En faisant l'hypothèse que la profondeur d'échappement est constante, le dépôt d'énergie par unité de profondeur devient de plus en plus important avec l'augmentation de l'angle d'incidence.

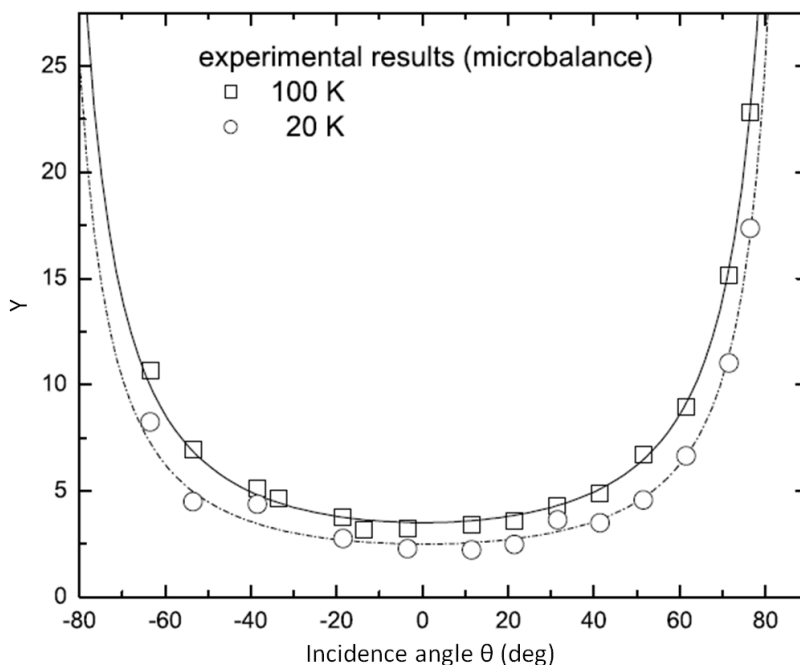


Figure 1-3 : Rendements de pulvérisation des neutres en fonction de l'angle d'incidence  $\vartheta (\equiv \delta)$  pour une glace d'eau ( $T = 20 \text{ K}$  et  $T = 100 \text{ K}$ ) irradiée par un faisceau de proton (100 keV). Les données ont été ajustées avec la fonction  $\cos^{-n} \delta$  [Vidal 2005].

- Distribution en angle

L'obtention des distributions en angle permet, entre autre, de connaître la direction préférentielle d'éjection des particules pulvérisées. Dans le cas de projectiles de basses énergies, diverses expériences ont été réalisées afin de mesurer les distributions en angle des neutres pour des cibles d' $\text{UO}_2$  et de fer [Matsuda 1986, Haranger 2003]. Ces expériences ont montré que les distributions en angle sont de la forme  $\cos^n \theta$  où  $1 \leq n \leq 2$ .

- Distribution en énergie

Il a été observé que les données expérimentales des neutres éjectés de cibles d'aluminium, d'argent et de calcium sont bien décrites par le modèle de la cascade linéaire [Husinsky 1993, Wahl 1994, Hansen 1998].

## 2 - Pulvérisation potentielle

Lors de l'interaction entre des ions lents multichargés et la matière, un phénomène d'excitation électronique à la surface de la cible peut se produire. Le projectile, hautement chargé, peut capturer plusieurs électrons de la cible, conduisant à une forte ionisation de sa surface.

L'énergie déposée est dépendante de la charge des ions projectiles [Winter 2000, Aumayr 2003]. L'énergie potentielle est définie comme la somme des potentiels d'ionisation successifs depuis l'atome neutre jusqu'à l'ion dans son état de charge final.

Afin d'expliquer la pulvérisation potentielle, deux interprétations sont proposées :

- La première interprétation s'appuie, suite à la création d'un volume fortement ionisé au voisinage de la surface, sur une mise en mouvement initiale des atomes par répulsion coulombienne. L'onde de choc générée par cette explosion coulombienne peut conduire à l'ablation de la surface et à la pulvérisation de particules [Bitsensky 1979, Parilis 2001].
- Une seconde interprétation est proposée par Aumayr et collaborateurs [Aumayr 1999]. Ils considèrent la formation de défauts électroniques localisés (trous auto piégés et excitons auto piégés), en réponse à l'excitation de la bande de valence du solide par l'ion multichargé [Sporn 1997, Aumayr 1999]. Dans le cas du LiF, l'exciton auto piégé, à température ambiante, se scinde rapidement en deux centres colorés H (ion moléculaire  $F_2$  à la position d'un anion du réseau) et F (un électron localisé sur un site anionique). Le centre F peut neutraliser un cation  $Li^+$  pour former un atome neutre  $Li^0$ . Le centre H s'annihile pour former un atome neutre  $F^0$ . Ces centres colorés diffusent ensuite vers la surface induisant l'éjection de particules neutres.

### a) Résultats expérimentaux

Ce paragraphe concerne les résultats expérimentaux obtenus dans le cas de la pulvérisation potentielle. Nous nous focaliserons sur l'évolution des rendements en fonction de l'énergie potentielle et sur les distributions en angle.

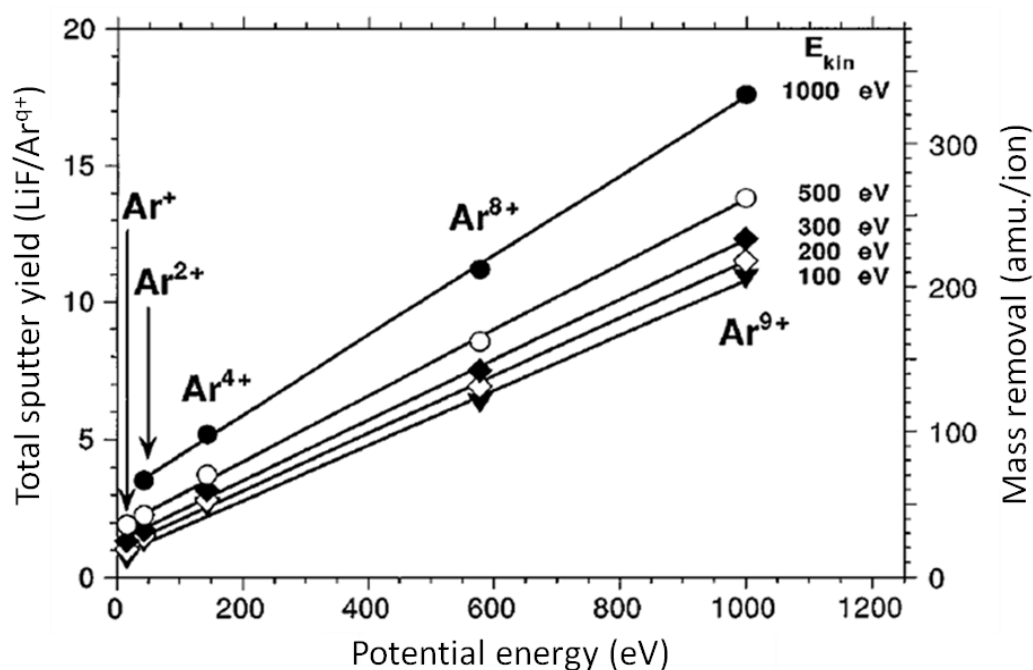


Figure 1-4 : Rendements de pulvérisation du LiF irradié par des ions  $Ar^{q+}$  ( $1 < q < 9$ ) d'énergie potentielle comprise entre 16 et 1000 eV [Neidhart 1995].

- Evolution des rendements en fonction de l'énergie potentielle  
 Neidhart et collaborateurs [Neidhart 1995], par une technique de mesure de perte de masse par microbalance à quartz, ont mesuré les rendements de pulvérisation pour différents isolants tels que le LiF. Ils concluent que les rendements augmentent en fonction de la charge du projectile (figure 1-4). Des résultats similaires ont été obtenus avec des cibles d' $\text{UO}_2$  [Boudjadar 2005] et de  $\text{SiO}_2$  [Sporn 1997].

- Les distributions en angle  
 Haranger et collaborateurs [Haranger 2003, Haranger 2006] ont étudié les distributions en angle des neutres en fonction de l'état de charge de l'ion incident sur des cibles d' $\text{UO}_2$ .

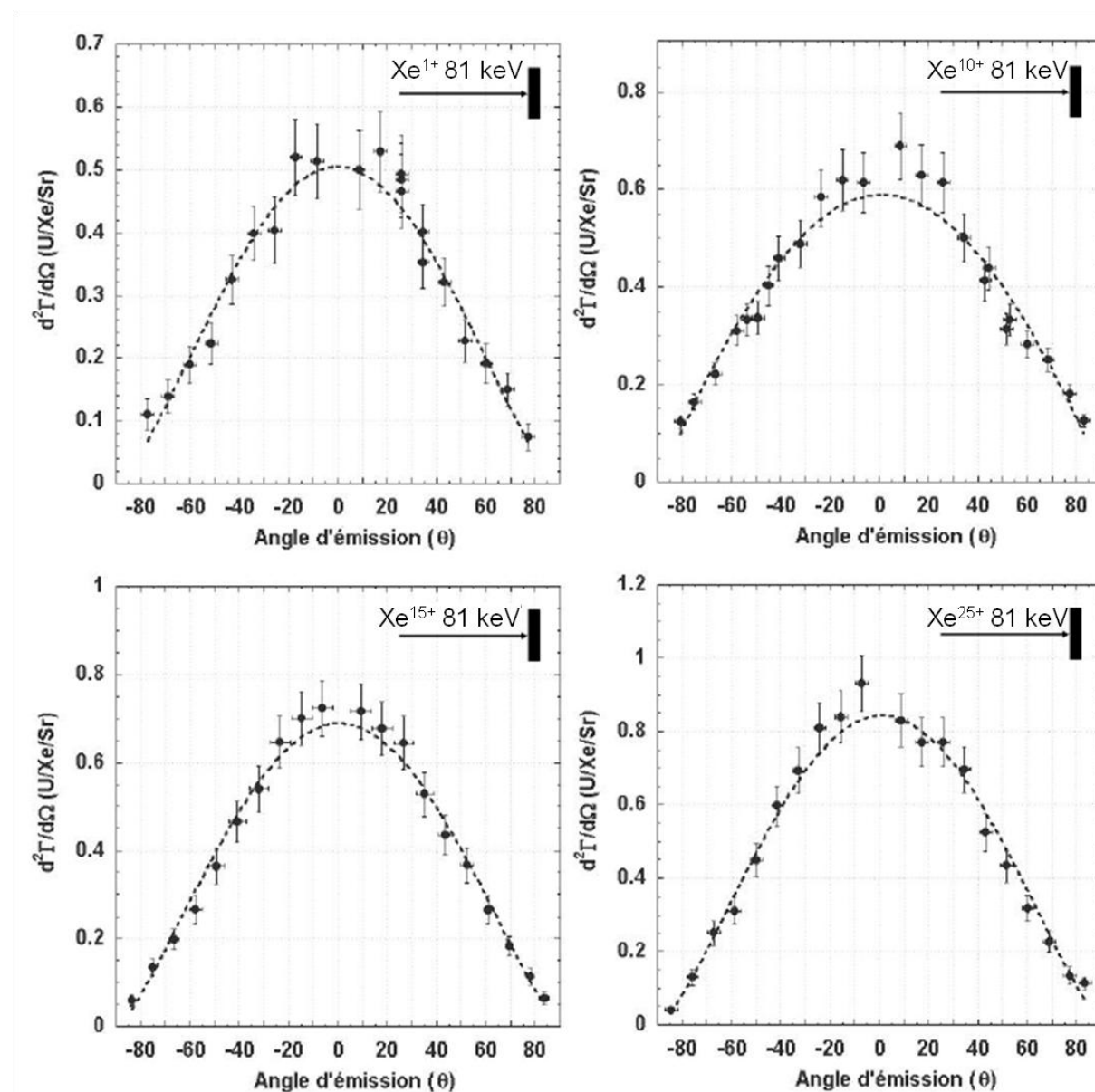


Figure 1-5 : Distributions en angle de U depuis une cible de  $\text{UO}_2$  mesurées pour des projectiles  $\text{Xe}^{q+}$  ( $q = 1, 10, 15$  et  $25$ ), d'énergie cinétique 81 keV en incidence normale par rapport à la surface [Haranger 2003].



Pour réaliser cette étude, ils ont utilisé la technique du “catcher”<sup>1</sup>. Ils déduisent que les distributions en angle sont de la forme  $\cos^n \theta$  (figure 1-5). Aucune évolution du profil de la distribution en angle en fonction de l'état de charge n'a été observée.

### 3 - Pulvérisation induite par ralentissement électronique

Contrairement à la pulvérisation nucléaire, la pulvérisation électronique est un phénomène indirect qui implique l'existence de mécanismes de couplage permettant de convertir l'excitation électronique en mouvement d'atomes. Plusieurs modèles décrivent les processus de transfert d'énergie du projectile aux atomes-cibles, conduisant à la pulvérisation électronique. Dans la suite de ce chapitre, nous décrirons les principaux modèles théoriques concernant la pulvérisation électronique.

#### a) Modèle de la pointe thermique

Après le passage de l'ion, les électrons “chauds” vont transférer leur énergie par couplage électron-phonon aux atomes froids du milieu. Le fort dépôt d'énergie autour de la trajectoire de l'ion peut ainsi provoquer la fusion d'une région cylindrique le long du parcours de l'ion. L'évolution de la température au cœur du cylindre va dépendre de la quantité d'énergie déposée, de son extension spatiale, de la diffusion des électrons et des propriétés thermiques du matériau. L'élévation subite de la température au niveau de la surface peut conduire à l'émission de particules par deux mécanismes : pulvérisation par évaporation thermique [Urbassek 1984, Johnson 1993] et pulvérisation par flux gazeux [Sunner 1988, Urbassek 1991].

- Pulvérisation par évaporation thermique (processus individuel) : elle est similaire au régime de pointe présenté au paragraphe B-1-c. Les atomes au cœur du cylindre sont émis un par un, suite à une évaporation très locale dans le cœur du cylindre.
- Pulvérisation par flux gazeux (processus collectif) : la zone de la cible où l'énergie est déposée se vaporise instantanément et toutes les particules sont émises en une seule fois. Elle correspond à une transition solide/gaz irréversible.

Il existe un seuil en pouvoir d'arrêt en dessous duquel la pulvérisation n'a pas lieu. Ce seuil est défini par l'énergie de liaison de surface dans le cas de la pulvérisation par évaporation thermique, et par la température de condensation lors de la pulvérisation par flux gazeux. Enfin, le modèle de pulvérisation par évaporation thermique prédit une variation quadratique du rendement en fonction du pouvoir d'arrêt électronique,  $Y \sim S_e^2$  dans le cas d'un dépôt d'énergie élevé et une variation linéaire  $Y \sim S_e^1$  pour les faibles densités d'excitations [Evatt 1980]. Le modèle de pulvérisation par flux gazeux prédit une variation en  $Y \sim S_e^3$  du rendement de pulvérisation [Urbassek 1987].

---

<sup>1</sup> La technique du catcher permet de mesurer les neutres issus de la pulvérisation. Ils sont captés à l'aide de deux arcs de cercle en aluminium. A l'aide de la technique ERDA (“Elastic Recoil Detection Analysis”) [Jaloway 2004a], il est possible de déterminer les distributions en angle ainsi que les rendements totaux de pulvérisation [Toulemonde 2003].

### b) Modèle de l'onde de choc et de l'impulsion de pression

La présence d'un fort gradient de densité d'énergie provoque la création d'une onde de choc qui s'étend depuis la zone excitée vers le reste du matériau. Lorsque l'onde se propage, elle se réfléchit sur la surface et peut conduire à l'émission macroscopique des particules par l'ablation "mécanique" de la surface. Elle peut engendrer des changements significatifs dans les paramètres thermodynamiques du matériau : la température, la pression et la densité.

Les modèles de pulvérisation par choc traitent la pulvérisation comme un processus collectif et reposent sur une approche hydrodynamique. Deux modèles sont proposés pour expliquer l'émission des particules :

- Le modèle de l'onde de choc :

Ce modèle considère un volume sphérique dans lequel l'énergie est déposée par le projectile lors d'une interaction. L'éjection de particules peut avoir lieu si l'énergie moyenne des atomes permet de franchir une barrière de surface. Le rendement de pulvérisation varie avec le pouvoir d'arrêt en  $S_e^{3/2}$  [Bitensky 1987].

- Le modèle par impulsion de pression :

Ce modèle, basé sur l'équation de diffusion de la chaleur, suppose une diffusion classique de l'énergie, et non de la température, depuis la zone initialement excitée du solide vers le reste du matériau [Johnson 1989, Fenyö 1990]. L'évolution temporelle du gradient de densité d'énergie lors de la diffusion peut être assimilée à une impulsion de pression locale. Lorsque la pression appliquée sur les atomes est suffisamment forte, une fracture est déclenchée dans le matériau. La pulvérisation des particules secondaires peut ainsi se produire [Hayashiuchi 1977]. Ce modèle prédit une distribution en angle de pulvérisation sous incidence normale fortement anisotrope et piquée à  $45^\circ$  autour de la normale à la surface. Le rendement de pulvérisation doit évoluer en fonction du pouvoir d'arrêt comme  $S_e^3$  [Hedin 1985].

### c) Modèle de l'explosion coulombienne

Le modèle de l'explosion coulombienne s'appuie sur le fait que l'ion incident laisse dans son sillage un volume fortement ionisé. Cette accumulation de charges positives entraîne une forte répulsion électrostatique entre les ions. Ce déplacement peut produire des zones de défauts, mais aussi la pulvérisation d'atomes en surface à des énergies de plusieurs dizaines d'eV [Lesueur 1993, Fleischer 1967, Schenkel 1998]. Pour que ce phénomène puisse se réaliser, il est nécessaire que les atomes ionisés aient le temps d'interagir entre eux avant qu'il n'y ait neutralisation de la trace. Il faut donc que les électrons aient une faible mobilité. Cette condition n'est remplie que pour les isolants. Ce modèle prévoit une dépendance de la pulvérisation électronique avec la perte d'énergie en  $S_e^n$  avec  $n > 2$ .

### d) Résultats expérimentaux

Dans ce paragraphe, nous exposerons les principaux résultats obtenus dans le cas de la pulvérisation induite par ralentissement électronique. Nous nous intéresserons, tout particulièrement, à l'évolution des rendements en fonction du pouvoir d'arrêt électronique  $S_e$ , de l'angle d'incidence  $\delta$  et des distributions en angle et en énergie.

- Evolution des rendements en fonction du pouvoir d'arrêt électronique  $S_e$ .

Elle a été étudiée à de nombreuses reprises avec des matériaux de nature et de propriétés électriques différentes : métaux [Toulemonde 2003, Assmann 2007], isolants [Bringa 2000, Johnson 1987, Toulemonde 2003] ou semi-conducteurs [Schlutig 2001]. Quel que soit le matériau étudié, les rendements suivent une loi en  $(S_e)^n$ , avec  $n$  variant de 1 à 4. Ces résultats expérimentaux sont en accord avec les prédictions des différents modèles théoriques décrits dans la partie B-2 de ce chapitre.

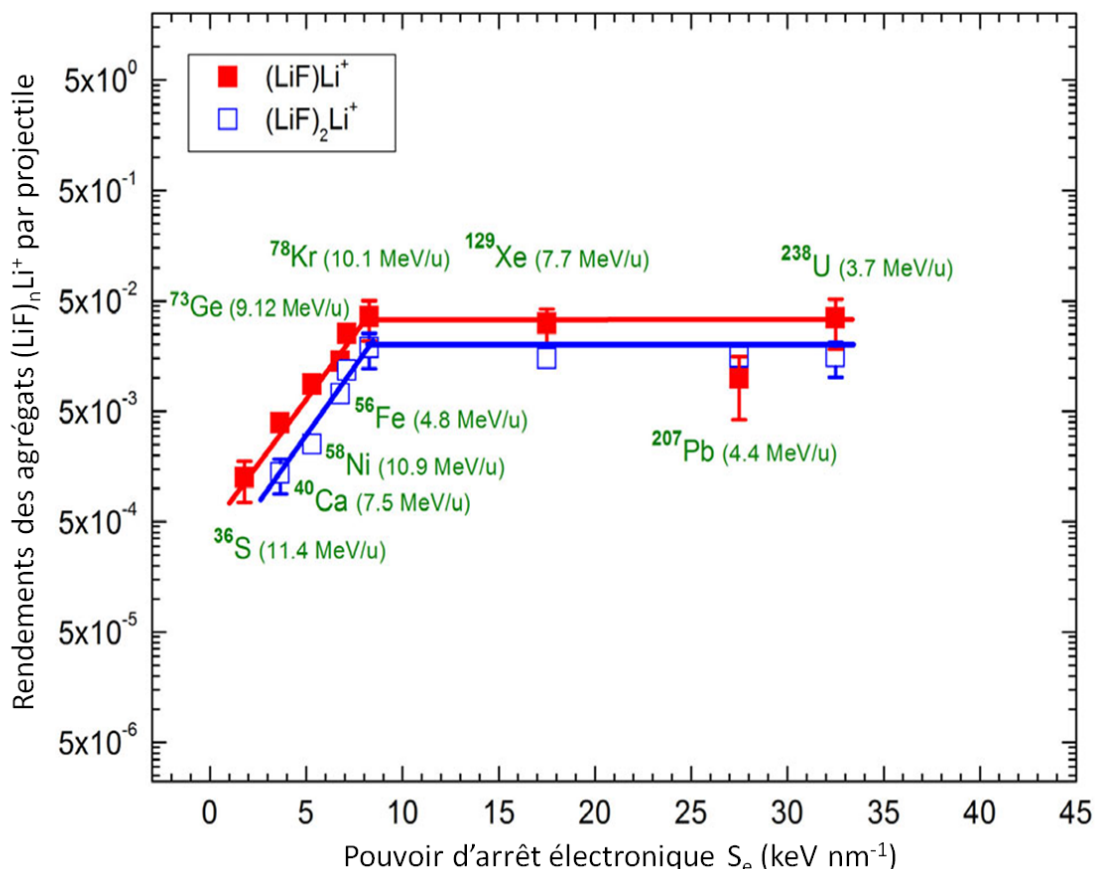


Figure 1-6 : Rendements de pulvérisation des agrégats  $(LiF)_nLi^+$  et  $(LiF)_2Li^+$  en fonction du pouvoir d'arrêt électronique  $S_e$  [Hijazi 2014a].

Hijazi et collaborateurs [Hijazi 2014a] ont montré, dans le cas des ions secondaires, l'existence de deux régimes en fonction du pouvoir d'arrêt électronique (figure 1-6) : un régime de pouvoir d'arrêt inférieur à  $8 \text{ keV nm}^{-1}$  où  $Y$  est proportionnel à  $S_e^2$ , et un second régime de pouvoir d'arrêt supérieur à  $8 \text{ keV nm}^{-1}$  où les rendements sont constants.

- Evolution des rendements en fonction de l'angle d'incidence  $\delta$

Certaines prédictions théoriques décrivent une dépendance, dans le domaine du pouvoir d'arrêt électronique, en  $\cos^{-n} \delta$  avec  $1 \leq n \leq 2$  [Bitensky 1987]. Ces résultats sont en accord avec les courbes expérimentales obtenues lors de la pulvérisation de cibles de LiF, de  $SiO_2$ , d'au et de  $CaF_2$  [Assmann 2007]. Elles décrivent une variation de l'exposant  $n$  de l'expression  $\cos^{-n} \delta$  de 1 à 2, suivant l'échantillon considéré et l'ion éjecté [Bolbach 1987, Håkansson 1982, Schlutig 2001, Assmann 2007].

- Distribution en angle

Expérimentalement, il a été observé que les distributions en angle, dans le cas des neutres, sont soit de la forme :  $\cos^n \theta$  où  $0.5 \leq n \leq 6$  [Moshammer 1991, Mieskes 1999, Baranov 1988],  $e^{-m|\theta|}$ , avec  $1.9 \leq n \leq 5.5$  [Mieskes 1999, Baranov 1988] ou  $\cos^n \theta + e^{-m|\theta|}$  [Assmann 2007] ( $\theta$  est l'angle défini par rapport à la normale à la surface). Dans le cas des ions, les distributions sont de la forme  $\cos^n \theta$  [Lenoir 2007, Hijazi 2011a].

- Distributions en énergie

De nombreuses expériences ont montré que les distributions en énergie des ions et des neutres issus de cibles de LiF peuvent être approximées par une distribution de Maxwell-Boltzmann de la forme  $N(E) = AE e^{-\beta E}$  (figure 1-8) [Meins 1983, Hijazi 2012] ou par une distribution de Maxwell-Boltzmann "modifiée"  $N(E) = AE^\alpha e^{-\beta E}$  avec  $\alpha \neq 1$  [MacFarlane 1986].

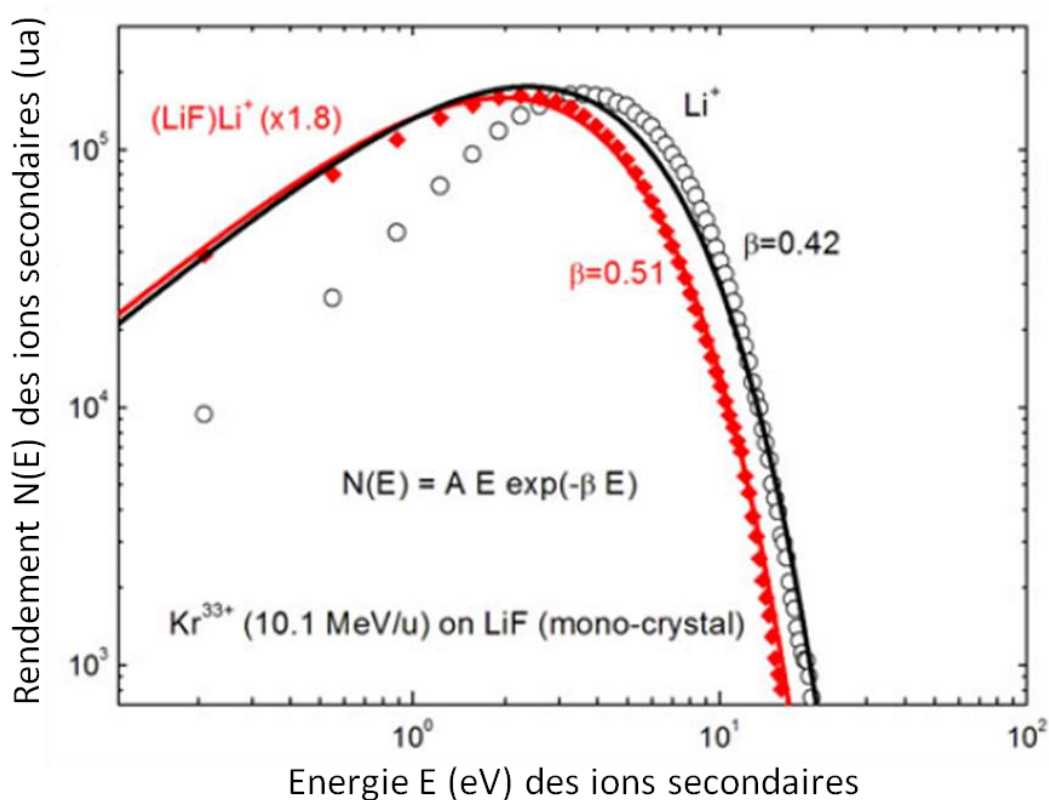


Figure 1-8 : Distributions en énergie de  $Li^+$  et  $(LiF)Li^+$  pour le système de collision  $Kr^{33+}$  (10.1 MeV/u) sur une cible de LiF monocristallin [Hijazi 2011a].

## C - Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les principaux modèles théoriques et résultats expérimentaux décrivant la pulvérisation (nucléaire, électronique et potentielle). L'ensemble des données obtenues dans ces différentes études nous a amené aux conclusions suivantes :

- La grande partie des particules pulvérisées sont des neutres. Les différentes techniques utilisées pour les étudier fournissent des informations limitées, principalement les rendements et les distributions en angle (technique du catcher) [Toulemonde 2003]. Les distributions en énergie sont directement corrélées à la relaxation de l'énergie. Mais leur obtention dans le cas des neutres est très difficile. Peu d'études existent [Meins 1983, Weathers 1989]. C'est pourquoi, nous avons décidé d'étudier la partie ionique de la pulvérisation. Par exemple avec un dispositif de temps de vol et de localisation, il est possible d'obtenir les spectres de masses, les rendements, les distributions en énergie et en angle des ions secondaires.
- L'interprétation par les modèles de collision simple, de cascade linéaire ou non linéaire n'est pas suffisante pour interpréter les phénomènes de pulvérisation induits par des ions lents multichargés. L'effet de la charge du projectile doit être pris en compte, comme en attestent les différents résultats expérimentaux (paragraphe B-2). A l'heure actuelle, les modèles d'explosion coulombienne et de pulvérisation potentielle ne permettent pas encore de décrire précisément les multiples mécanismes liés à l'effet de la charge.
- Dans le domaine de la pulvérisation induite par ralentissement électronique, les modèles théoriques proposés tels que la pointe thermique, l'explosion coulombienne et l'onde de choc ne proposent pas de critères suffisamment discriminants pour trancher expérimentalement.

Afin de comprendre les processus générant l'émission des ions secondaires, nous allons, dans cette thèse, comparer nos données expérimentales avec certains modèles théoriques existants.

# Chapitre 2

## Dispositifs expérimentaux

## Introduction

Les différentes expériences, décrites tout au long de ce manuscrit, ont été effectuées majoritairement sur les lignes de faisceaux SME et ARIBE présentes à GANIL. Des expériences complémentaires ont été réalisées à l'université catholique PUC de Rio de Janeiro avec un dispositif de temps de vol PDMS. Ce chapitre débutera par la description de ce dispositif. Nous exposerons ensuite, dans la seconde partie de ce chapitre, le fonctionnement de l'accélérateur GANIL. La description du dispositif d'irradiation et du spectromètre de temps de vol TOF et de positions X et Y conclura ce chapitre.

## A - Dispositif PDMS présent à Rio de Janeiro

Dans le cadre d'un Programme Hubert Curien (PHC) CAPES/COFECUB avec le Brésil, nous avons réalisé des expériences à l'université catholique de Rio de Janeiro, dans l'équipe du professeur Enio Frota da Silveira. Les expériences ont été effectuées avec le dispositif PDMS [MacFarlane 1976] (figure 2-1). Les études ont porté sur les silicates, principalement la néphéline.



Figure 2-1 : Photographie du dispositif PDMS.

Le dispositif PDMS permet la mesure du temps de vol des ions secondaires issus de la collision entre des fragments de fission et des silicates. Il est équipé d'une source de  $^{252}\text{Cf}$  (activité =  $7.4 \times 10^5$  Becquerel), qui émet 95 % d'alphas et 5 % de fragments de fission. Lors de la désintégration d'un noyau de californium, deux fragments de fission, de masse moyenne  $\langle m_{\text{fragment } 1} \rangle \approx 100$  et  $\langle m_{\text{fragment } 2} \rangle \approx 140$ , sont émis simultanément à  $180^\circ$  l'un de l'autre. La figure 2-2 présente le spectre de distribution en masse des fragments de fission du  $^{252}\text{Cf}$  [Schmitt 1966].

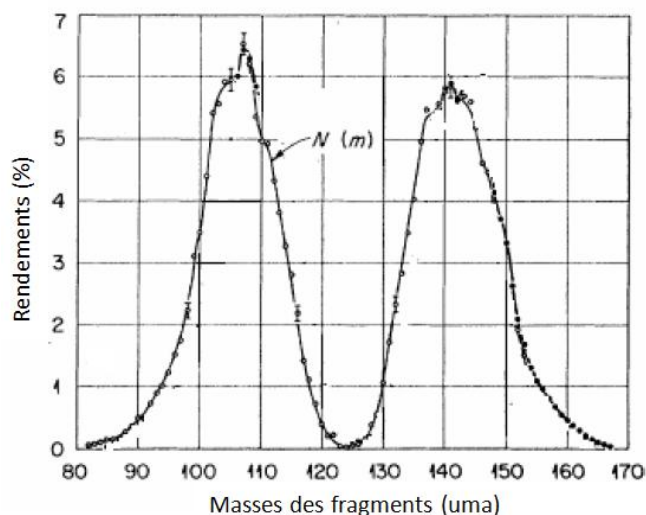


Figure 2-2 : Rendements des fragments de fission du  $^{252}\text{Cf}$  [Schmitt 1966].

La masse moyenne des fragments de fission  $\langle m \rangle$  est 125. Leur énergie moyenne  $\langle E \rangle$  est égale à 100 MeV [Ponciano 2001]. La source de californium est enfermée dans une capsule de nickel. A sa sortie, les fragments de fission vont perdre de l'énergie. Leur énergie moyenne finale  $\langle E \rangle$  est ainsi égale à 65 MeV. Compte tenu de la géométrie de ce dispositif, environ 2 fragments de fission  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$  rentrent en collision avec la cible.

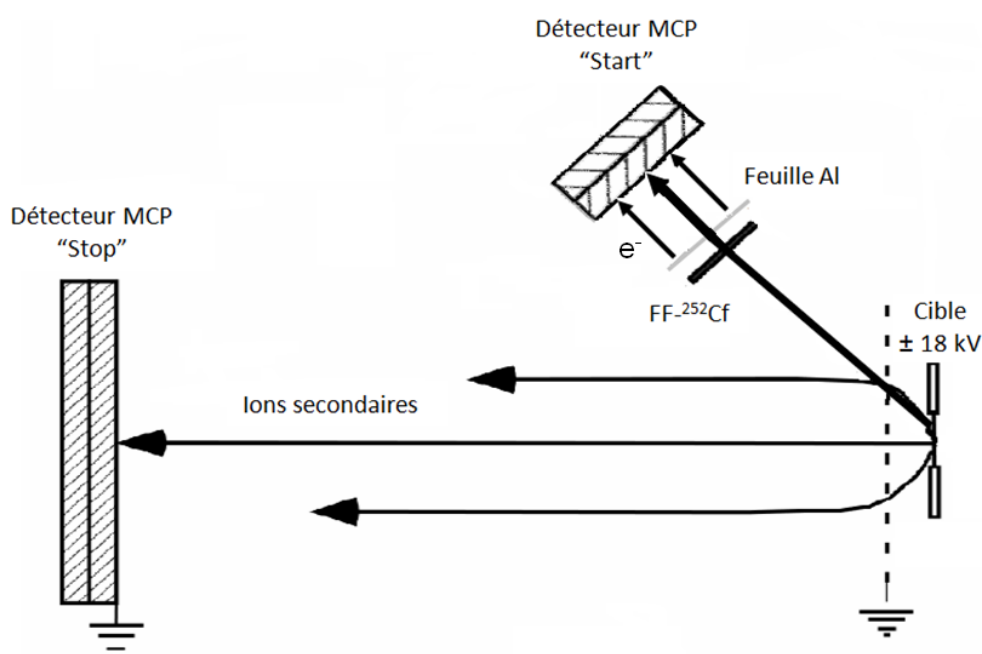


Figure 2-3 : Schéma du dispositif de temps de vol utilisé avec le dispositif PDMS.

Un des fragments, issu de la source de  $^{252}\text{Cf}$ , est utilisé pour générer un signal "start". Le fragment passe à travers une feuille d'aluminium et arrache des électrons (figure 2-3). Les électrons produits sont accélérés vers un détecteur de galettes à micro-canaux (MCP) qui génère le signal "start". L'autre fragment, émis à  $180^\circ$ , est utilisé comme projectile. Les ions secondaires pulvérisés de la cible sont accélérés par un champ électrique de + 18 kV (pour détecter les ions positifs) ou de - 18 kV (pour détecter les ions négatifs) vers une autre paire de galettes. Un signal "stop" est alors généré. Les signaux "start" et "stop" sont utilisés pour calculer le temps de vol (TOF). À partir du temps de vol, il est possible de déterminer les spectres de masses.



## B - Le GANIL

Le plan général du GANIL est présenté sur la figure 2-4.

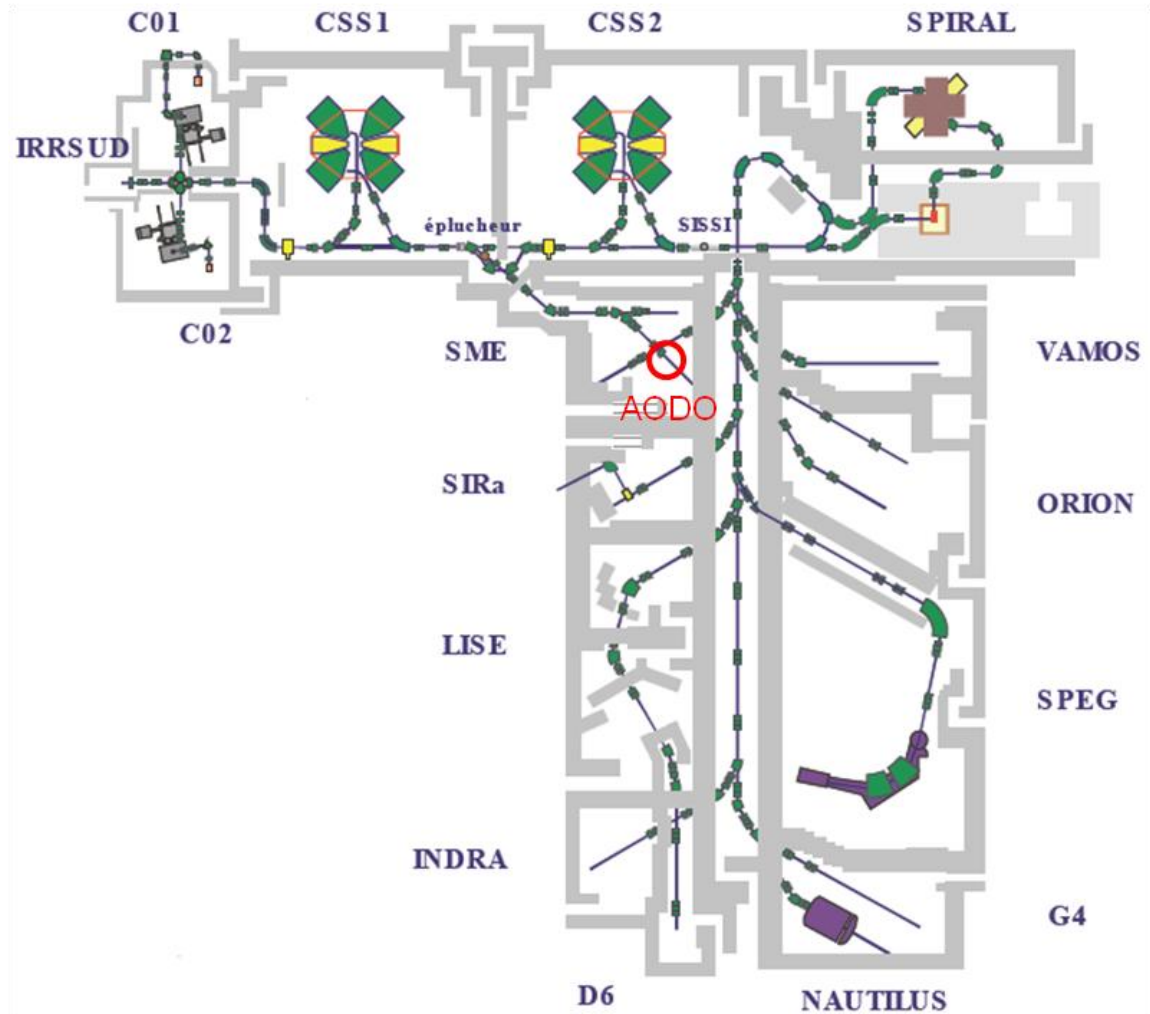


Figure 2-4 : Accélérateur et aires expérimentales de GANIL.

Le GANIL est équipé de sources ECR (“Electron Cyclotron Resonance”) qui produisent des faisceaux d’ions multichargés à partir d’un gaz ou d’un solide. Les ions produits sont ensuite pré accélérés par des cyclotrons injecteurs (C01 ou C02). Puis, ils sont injectés dans le premier Cyclotron à Secteurs Séparés CSS1. Les ions sortant de ce cyclotron possèdent des énergies comprises entre 4 MeV/u et 13 MeV/u. Ces ions passent ensuite à travers une feuille d’épluchage et ressortent avec une distribution de plusieurs états de charge. Un état de charge est envoyé dans un deuxième cyclotron à secteurs séparés CSS2. Un second état de charge, plus faible, est conduit vers la salle D1 (Sortie Moyenne Energie). Le GANIL produit des faisceaux d’ions allant du carbone à l’uranium avec des énergies maximum de l’ordre de 95 MeV/u pour le carbone, à 24 MeV/u pour l’uranium. Les flux varient entre  $10^5$  et  $10^{13}$  ions  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ .

## 1 - Aire expérimentale D1

L'aire expérimentale D1 est dédiée aux expériences de physique interdisciplinaire (figure 2-5).

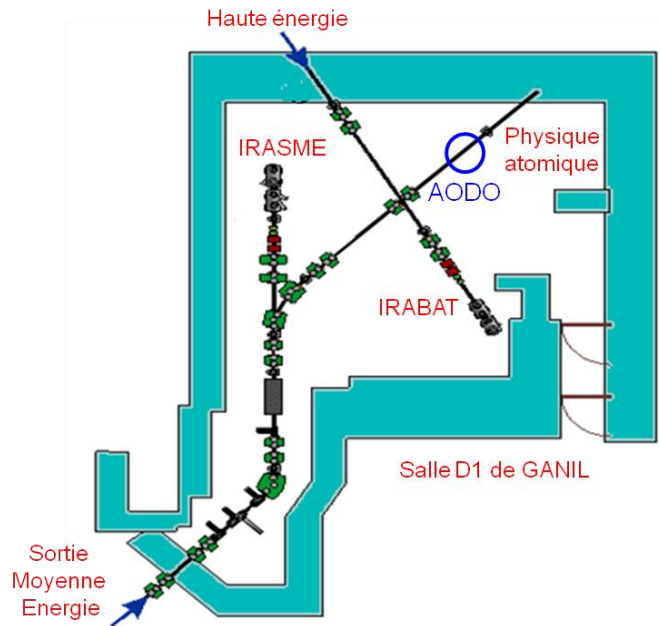


Figure 2-5 : Salle D1 du GANIL.

Elle est constituée de trois lignes d'irradiation. Deux de ces lignes sont des lignes de Moyenne Energie délivrée par CSS1 (~ 10 MeV/u) :

- Une ligne dédiée à la physique atomique.
- Une ligne d'IrrAdiation avec balayage pour la SME (IRASME).

La troisième est une ligne d'Irradiation A Basse Température (IRABAT). Elle peut disposer de faisceaux d'ions de moyenne et de haute énergie.

## 2 - Plateforme ARIBE

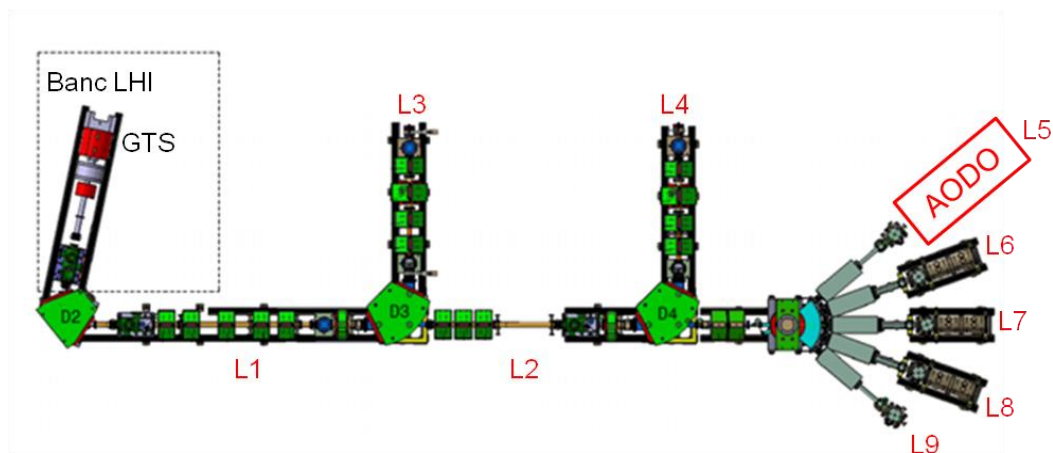


Figure 2-6 : Les différentes lignes de faisceaux LHI de la plateforme ARIBE, numérotées de 1 à 9. Toutes nos expériences ont été réalisées sur la ligne 5.

La plateforme ARIBE est dédiée à la recherche avec des ions de basse énergie. Deux sources sont présentes sur la plateforme, une associée à la ligne LTBE (“Ligne de Très Basse Energie”) et une autre associée aux lignes LHI (“Lignes de faisceaux de Haute Intensité”) (figure 2-6). Ces sources de type ECR produisent des ions multichargés d’énergie comprise entre l’eV et quelques centaines de keV. Les ions de charge  $q$ , en sortie de la source, ont une énergie égale à :

$$E = qV \quad (2-1)$$

Avec  $E$  l’énergie cinétique de l’ion (eV).

$q$  le nombre de charges.

$V$  le potentiel électrique d’extraction de la source (V).

Après une sélection en charge et en masse par un dipôle magnétique, les ions sont guidés à travers les lignes de faisceaux vers les chambres de collision. Le dispositif AODO est installé sur la ligne L5 (figure 2-6).

### C - Système d’imagerie fonctionnant sous ultra- vide : AODO

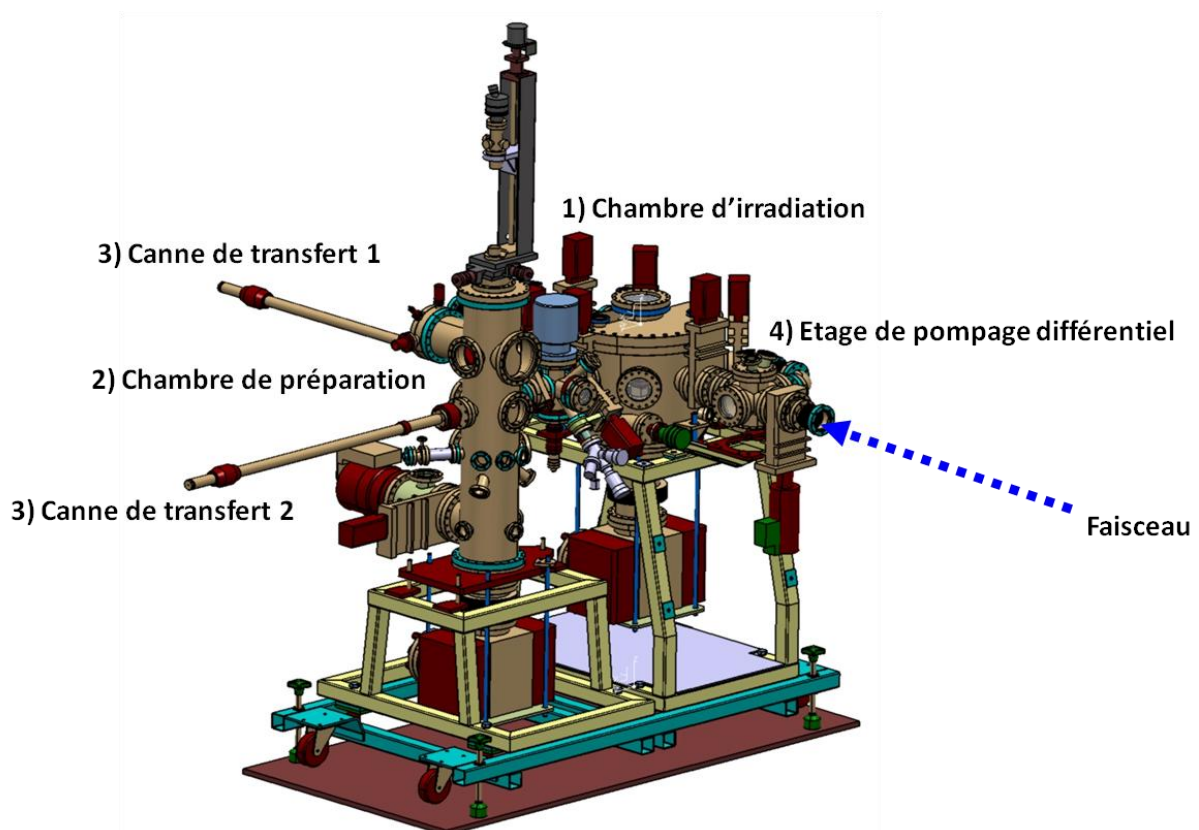


Figure 2-7 : Dispositif ultra-vide AODO [Hijazi 2011b]: 1) Chambre d'irradiation, 2) Chambre de préparation, 3) Cannes de transfert, 4) Etage de pompage différentiel.

## Chapitre 2 : Dispositifs expérimentaux

Toutes les expériences réalisées à GANIL ont été effectuées avec le système d'imagerie fonctionnant sous ultra-vide AODO [Hijazi 2011b]. Elles sont basées sur des mesures de temps.

Le dispositif AODO est composé (figure 2-7) :

- 1) D'une chambre d'irradiation comprenant :
  - a) Deux pompes turbo-moléculaires en série.
  - b) Un dispositif QMS ("Quadrupole Mass Spectrometer").
  - c) Un détecteur d'ions secondaires en temps de vol TOF et en positions XY.
  - d) Une vanne micro fuite.
  - e) Dans la version la plus récente, une tête froide cryogénique permettant l'étude de matériaux à basse température.
- 2) D'une chambre de préparation comportant :
  - a) Une pompe ionique et deux pompes turbo-moléculaires.
  - b) Un dispositif LEED-AES ("Low Energy Electron Diffraction"- "Auger Electron Spectroscopy").
  - c) Un évaporateur à flux d'électron dédié à la production de couches minces.
  - d) Une balance à quartz utilisée pour la mesure d'épaisseurs pendant le dépôt.
- 3) De deux cannes de transfert permettant de déplacer les échantillons dans tout le système ultra-vide AODO.
- 4) D'un étage de pompage différentiel où est présent un channeltron. Ce channeltron permet de déterminer la largeur temporelle du paquet d'ions.
- 5) D'un dispositif de pulsation, décrit en détail dans le paragraphe B-5.

Ce système est dédié à l'étude de la pulvérisation des ions secondaires issue de cibles préparées et contrôlées dans le but de minimiser les contaminations surfaciques. Le dispositif AODO a été monté successivement sur la ligne physique atomique de la SME présente dans l'aire expérimentale D1 et sur la ligne L5 d'ARIBE.

## D - Le spectromètre de temps de vol (TOF) et de positions (XY)

### 1 - Le détecteur d'ions secondaires

L'étude de la pulvérisation est réalisée à l'aide d'un détecteur d'ions secondaires. Ce détecteur est composé de quatre parties (figure 2-8) :

- 1) La cible.
- 2) Une zone d'extraction des ions secondaires éjectés, une zone de vol libre (dans le cas du spectromètre à deux grilles, paragraphe D-2) et une zone de post-accélération.
- 3) Deux galettes à micro canaux ("Micro Channel Plates", MCP) accolées pour la détection des ions pulvérisés et l'amplification du signal électrique collecté.
- 4) Une anode à lignes à retard pour la localisation (XY).

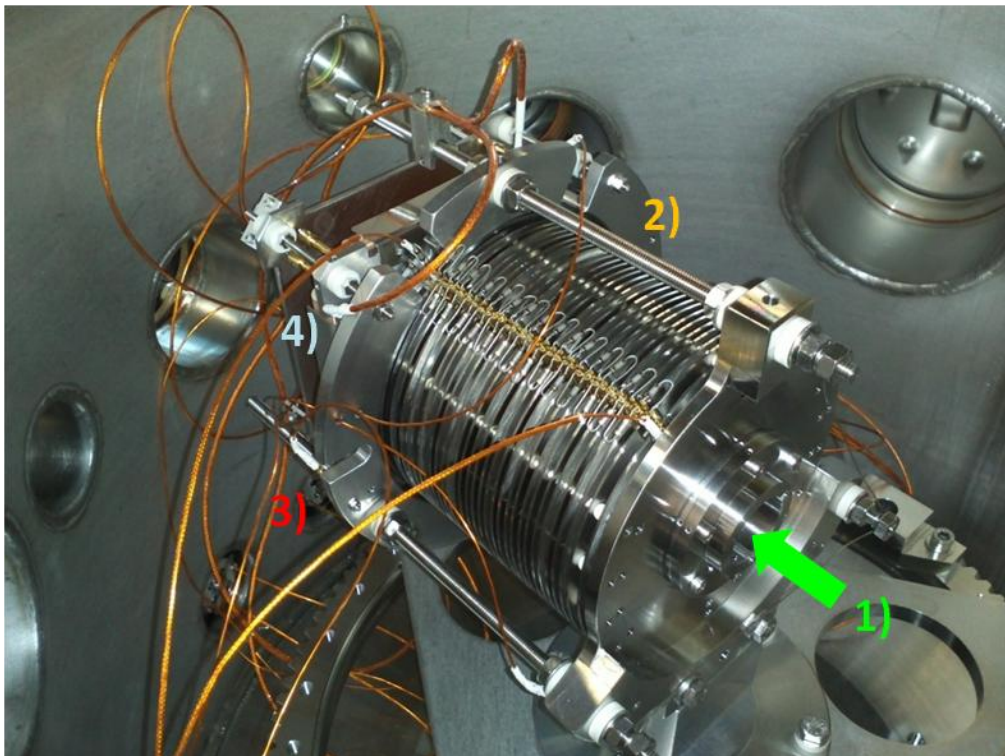


Figure 2-8 : Photographie du détecteur XY-TOF.

## 2 - Extraction des ions secondaires

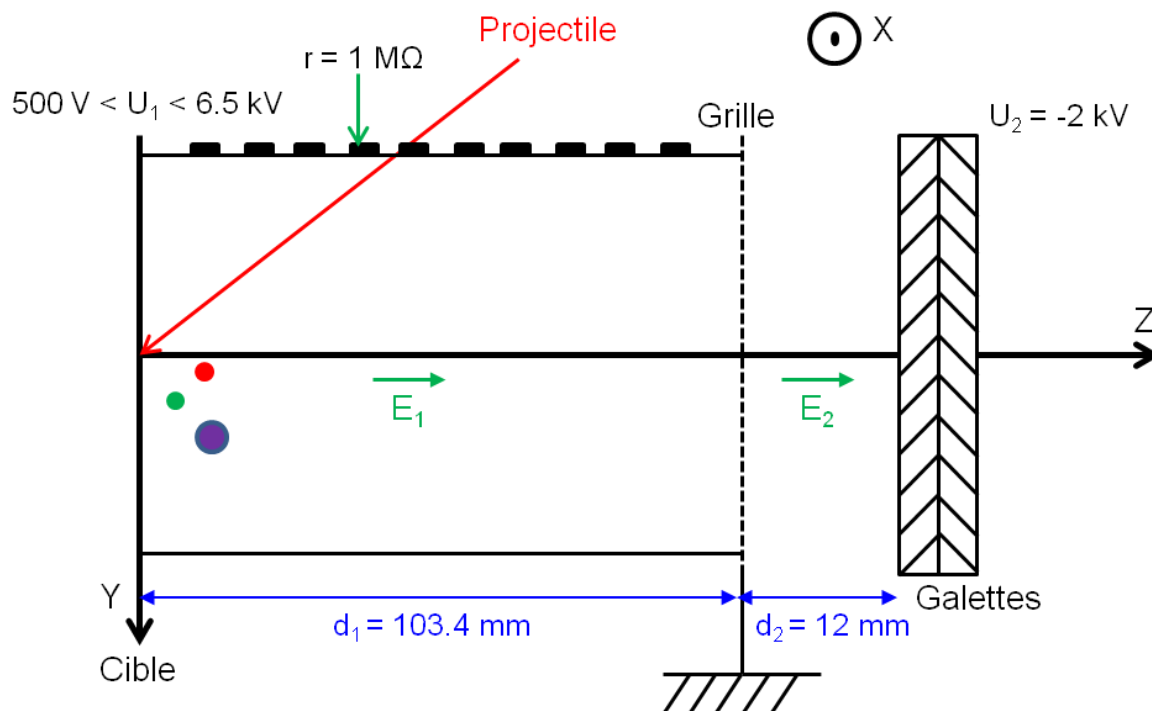


Figure 2-9 : Principe de l'extraction des ions secondaires, de la polarisation et des galettes (plan YZ) pour le spectromètre de temps de vol et de localisation (avant 2013).

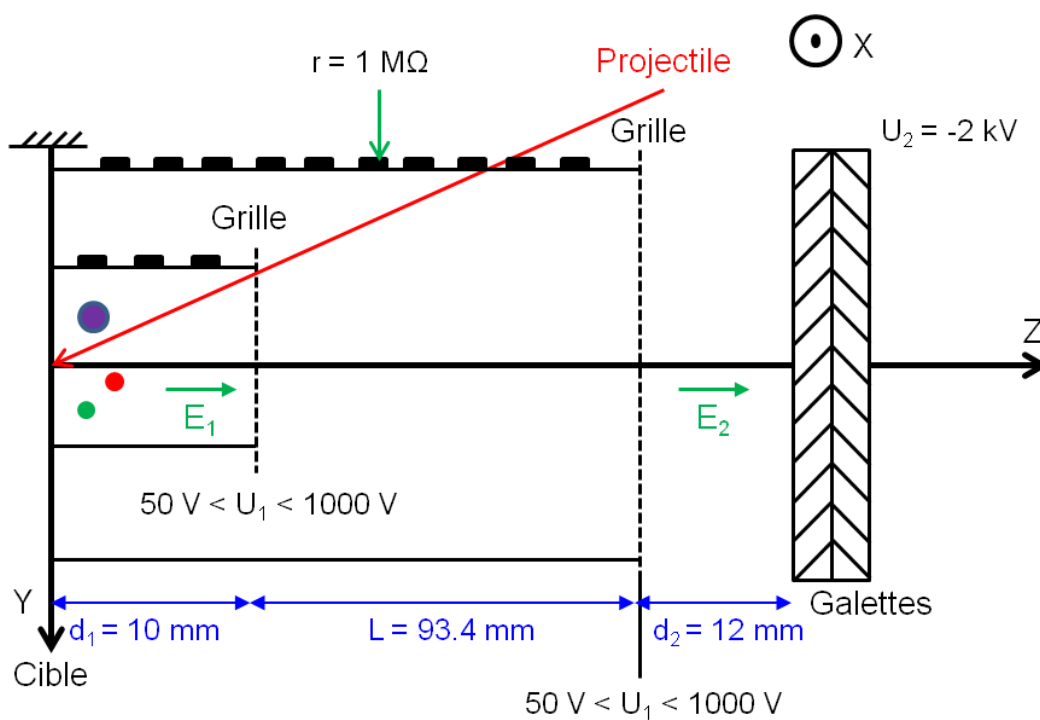


Figure 2-10 : Principe de l'extraction des ions secondaires, de la polarisation et des galettes (plan YZ) pour le spectromètre de temps de vol et de localisation, (effectif depuis 2013).

### a) Spectromètre à une grille

Avant 2013, nous avons utilisé un spectromètre de temps de vol à deux zones (figure 2-9). Le plan de collision de la cible est dans le plan de son support. Les ions secondaires sont extraits par un premier champ électrique uniforme dû à une différence de potentiel  $U_1$  ( $500 \text{ V} < U_1 < 6.5 \text{ kV}$ ) entre la cible et la grille (grille à la masse). L'homogénéité du champ d'extraction est assurée par une succession de trente électrodes équidistantes ( $d_1 = 103.4 \text{ mm}$ ), reliées entre elles par un pont de résistances ( $R = 1 \text{ M}\Omega$ ). L'ion émis traverse cette zone d'accélération en un temps  $t_1$ . L'ion atteint ensuite une zone de post-accélération ( $d_2 = 12 \text{ mm}$ ) où il est accéléré par une tension  $U_2 = -2 \text{ kV}$  afin d'augmenter l'efficacité de détection. L'ion traverse cette seconde zone d'accélération en un temps  $t_2$ . Le temps de vol des ions secondaires est donc égal à :  $TOF_{une\ grille} = t_1 + t_2$  (se référer au paragraphe 3-5-a et à l'annexe 2).

### b) Spectromètre à deux grilles

En 2013, il a été planifié d'installer une tête froide dans la chambre d'irradiation d'AODO permettant la production de glaces. La polarisation de la cible n'est plus possible. En conséquence, une seconde grille a été installée dans le spectromètre, devant la cible à une distance de 10 mm (figure 2-10). Cette grille est polarisée afin de permettre l'extraction des ions.

Le dispositif à une grille est bien adapté pour les projectiles rapides. Par contre, pour les projectiles lents, le champ d'extraction peut dévier le faisceau. Dans la zone de temps de vol, présente dans le cas du spectromètre à deux grilles, aucun champ électrique ne règne. Le faisceau n'est pas dévié. Les ions traversent cette zone en un temps  $t_{1-2}$ .

Le temps de vol des ions est donc égal à :  $TOF_{deux\ grilles} = t_1 + t_{1-2} + t_2$  (se référer au paragraphe 3-5-a et à l'annexe 2).

## 3 - Détection des ions et amplification du signal

Les galettes à micro canaux permettent de détecter les ions secondaires. Lorsqu'un ion entre dans un canal, les électrons secondaires émis à partir de la paroi du canal sont accélérés par un champ électrique.

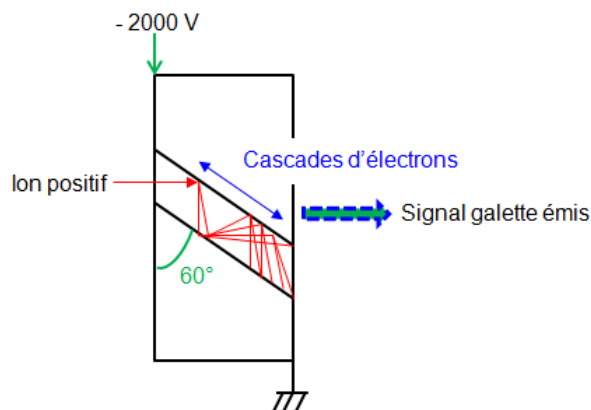


Figure 2-11 : Schéma de l'amplification du signal.

Ces électrons secondaires peuvent induire l'émission d'autres électrons (figure 2-10). Les parois de ces canaux sont inclinées de 60° par rapport à la normale des faces d'entrée afin de garantir que les ions tombent sur les parois de ces canaux et créent une avalanche d'électrons secondaires.

Pour un empilement de deux galettes, le gain total dans la multiplication des électrons est de l'ordre de  $10^6$ - $10^7$  électrons par particule incidente (photons, ions secondaires). L'impulsion générée à partir de la face arrière des galettes est utilisée comme signal "stop" pour la mesure du temps de vol. Cette avalanche d'électrons secondaires est ensuite collectée sur l'anode filaire sensible en position (imagerie XY) (se référer au paragraphe D-6).

Lorsqu'un ion frappe une galette, il n'engendre pas forcément l'émission d'électrons secondaires. Le rendement d'une galette n'est pas de 100 %. L'efficacité d'une galette dépend de la surface couverte par les canaux (efficacité géométrique  $\epsilon_{\text{géométrique}}$ ) et de la probabilité d'émettre au moins un électron et de créer une avalanche d'électrons secondaires (efficacité statistique  $\epsilon_{\text{statistique}}$ ).

L'efficacité géométrique  $\epsilon_{\text{géométrique}}$  de la galette est égale à :

$$\epsilon_{\text{géométrique}} = \frac{\text{Surface des trous}}{\text{Surface totale}} = 57 \% \text{ [Hamamatsu, Krens 2005]}$$

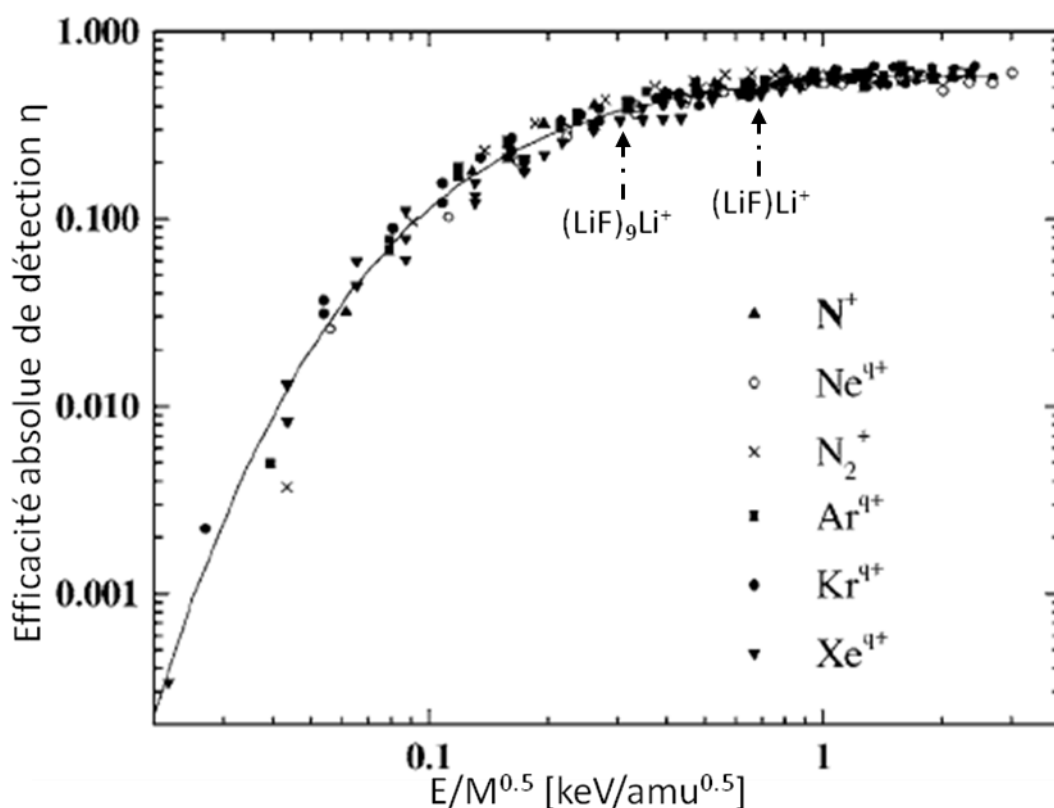


Figure 2-12 : Efficacité absolue de détection des galettes à micro-canaux en fonction de  $E/M^{0.5}$  [Krens 2005].

L'efficacité statistique est fonction de la masse M et de l'énergie cinétique d'un ion secondaire (figure 2-12) [Krens 2005]. Par exemple, l'efficacité absolue de détection de  $(\text{LiF})\text{Li}^+$  et  $(\text{LiF})_9\text{Li}^+$  varie respectivement de 0.54 à 0.39 pour une énergie de 5 keV.



L'efficacité de détection est prise en compte dans le calcul des rendements des ions secondaires. Le calcul des rendements est décrit dans le chapitre 3.

## 4 - Temps de vol TOF (Time Of Flight)

Le temps de vol est déterminé à partir de la différence en temps entre un signal "start" et un signal "stop".

Pour des ions rapides sur la ligne SME, le signal "start" est généré par le détecteur projectile lors du passage de l'ion incident à l'intérieur de celui-ci (signal appelé MCPPROJ) (figure 2-13).

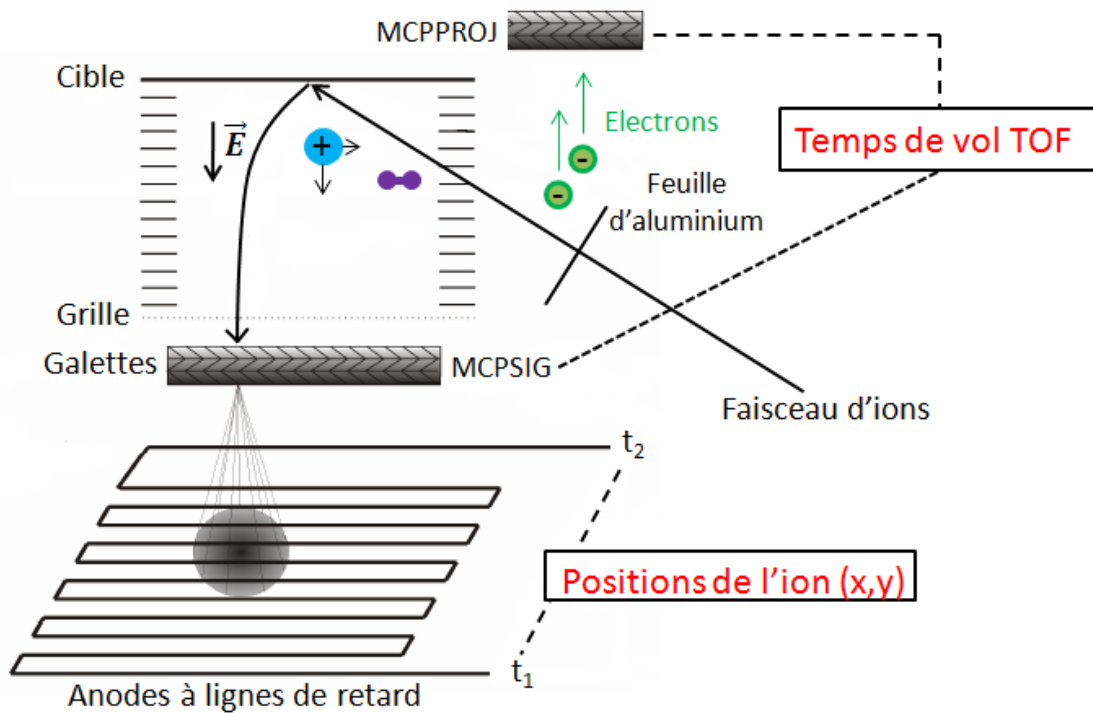


Figure 2-13 : Schéma du dispositif XY-TOF utilisé sur la SME.

Ce détecteur est constitué d'une feuille d'aluminium (épaisseur = 0.8  $\mu\text{m}$ ) et d'une paire de galettes à micro-canaux. Le détecteur projectile permet aussi de contrôler le nombre d'ions projectiles incidents, nécessaire pour la détermination des rendements absolus.

Cette méthode n'est pas applicable avec des ions de basse énergie car le parcours des ions est faible comparé à l'épaisseur de la feuille d'aluminium. Le détecteur projectile doit donc être remplacé par un dispositif qui permet de pulser le faisceau. Le signal "start" sera ainsi produit par le générateur de pulsation (figure 2-14).

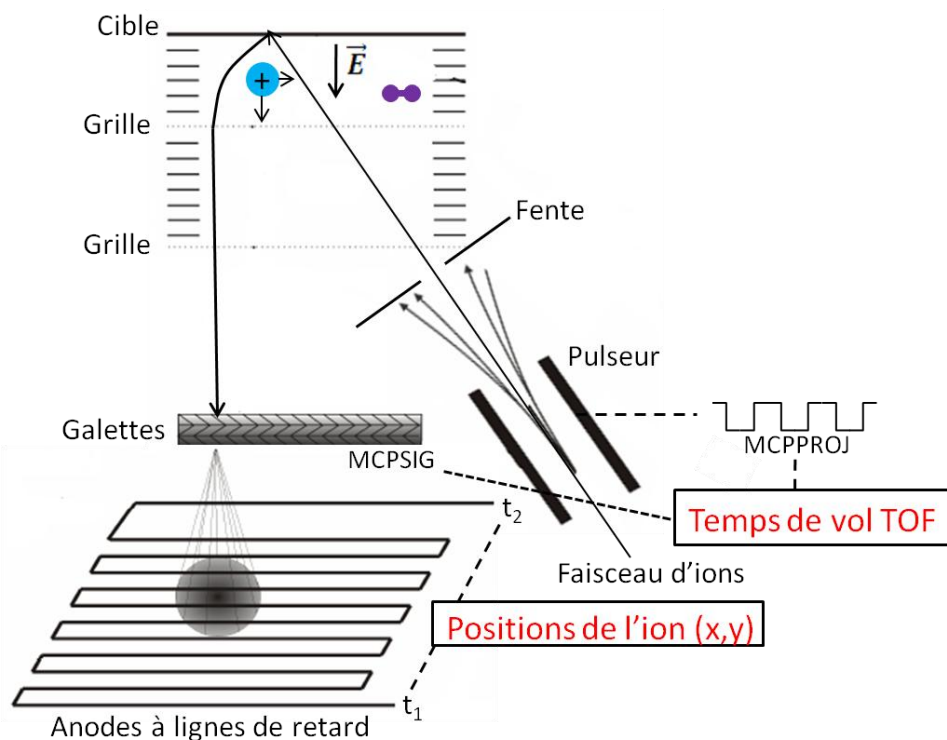


Figure 2-14 : Schéma du dispositif XY-TOF utilisé sur ARIBE.

Le signal "stop" est généré par les galettes à micro-canaux du détecteur des ions secondaires (signal appelé MCPSIG). Le temps de vol TOF est défini comme la différence de temps entre un signal "stop" (MCPSIG) et un signal "start" (MCPPROJ).

## 5 - Pulsation du faisceau

Lors de cette thèse, un important travail de développement expérimental a été réalisé. En particulier, un nouveau dispositif de pulsation a été conçu et fabriqué au CIMAP (figure 2-15). Deux collimateurs (diamètre du trou = 3 mm) permettent de mettre en forme le faisceau. Ce faisceau passe ensuite entre deux plaques, correspondant à la partie mécanique du pulseur (figure 2-15).

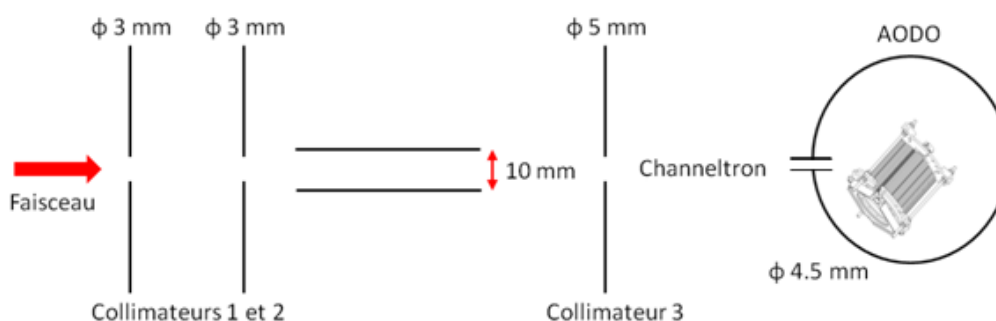


Figure 2-15 : Description schématique du dispositif de pulsation.

## Chapitre 2 : Dispositifs expérimentaux

La taille et la distance entre les plaques et le collimateur 3 (diamètre du trou = 5 mm) ont été déterminées pour que la largeur du paquet d'ions  $\Delta t$  soit inférieure à 10 ns. Cette largeur a été choisie pour que l'incertitude sur les mesures de temps soit la plus faible possible. Le channeltron, installé après le dispositif de pulsation, permet de déterminer cette largeur. Dans le cas précis d'un faisceau de  $\text{Xe}^{20+}$  (300 keV), la largeur du paquet d'ions  $\Delta t$  est égale à 7 ns (figure 2-16). Les différentes expériences ont montré que le système de pulsation fonctionne correctement. Il est placé en amont du dispositif expérimental AODO, à une distance d'environ un mètre.

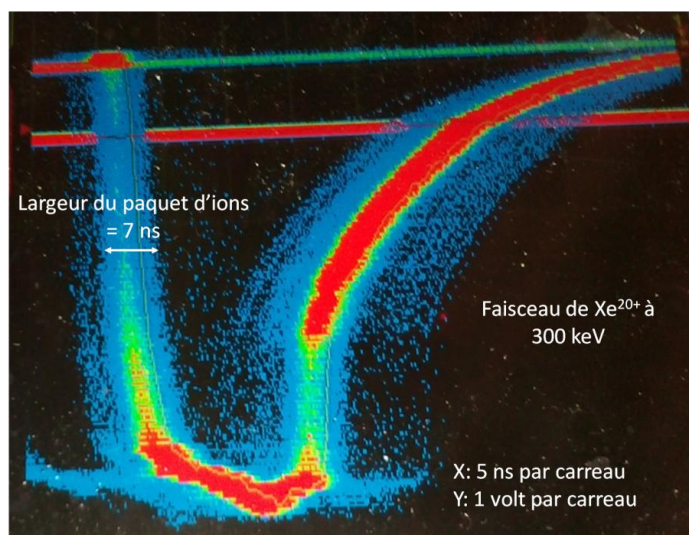


Figure 2-16 : Visualisation du signal obtenu avec le channeltron pour un faisceau de  $\text{Xe}^{20+}$  à 300 keV.

La partie électronique du pulseur est constitué d'une bascule haute tension (système HTS 61-03-gsm fabriqué par BEHLKE) commandée par un générateur de pulsation "Quantum Composur". Un fonctionnement typique du générateur de pulsation correspond à un signal carré de 100 microsecondes de largeur et de période 200 microsecondes (figure 2-17).

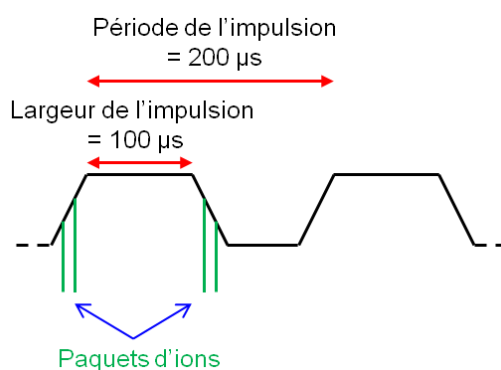


Figure 2-17 : Description du signal généré par le générateur de pulsation.

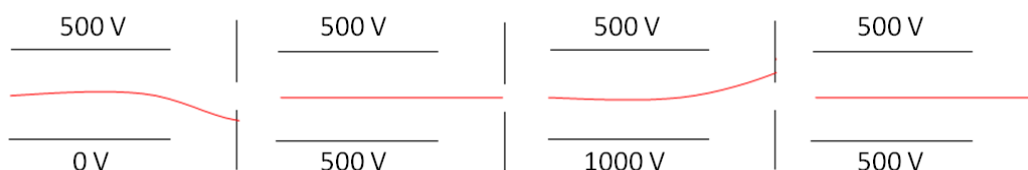


Figure 2-18 : Mode de pulsation.

La figure 2-18 décrit le mode de pulsation utilisé lors de nos expériences. Une plaque est fixée à un potentiel constant de 500 V (figure 2-18). Le potentiel de la seconde plaque, par l'intermédiaire de la bascule HT, varie de 0 à 1000 V. Lorsque les deux plaques sont au même potentiel, le faisceau passe.

Ce dispositif de pulsation, installé en 2014, nous a permis d'obtenir, quelque soit le faisceau d'ions, des largeurs de paquet inférieure à 10 ns. Chaque paquet contient quelques centaines d'ions.

### 6 - Localisation des ions : Anode à lignes de retard

La localisation des ions secondaires est réalisée à l'aide d'une anode à lignes de retard. Cette anode est formée de deux doubles bobinages de deux fils de cuivre, tous de même longueur : un horizontal et un vertical. Les électrons engendrés par les galettes sont collectés par les quatre fils de l'anode. Ils se propagent vers chaque extrémité et génèrent une impulsion électronique. Ces signaux permettent de déterminer le temps de propagation entre le point d'impact sur l'anode et chaque extrémité de chaque fil. À partir de ce temps de propagation, il sera possible de calculer le point d'impact en X et en Y. Huit signaux sont ainsi générés : quatre signaux dits "références" provenant des lignes "références" et quatre autres dits "signaux" provenant des lignes "signaux".

Les différents signaux obtenus sont (figure 2-19) :

- Pour la ligne "référence" verticale:  $X_{1\text{ réf}}$  et  $X_{2\text{ réf}}$
- Pour la ligne "signal" verticale:  $X_{1\text{ sig}}$  et  $X_{2\text{ sig}}$
- Pour la ligne "référence" horizontale:  $Y_{1\text{ réf}}$  et  $Y_{2\text{ réf}}$
- Pour la ligne "signal" horizontale:  $Y_{1\text{ sig}}$  et  $Y_{2\text{ sig}}$

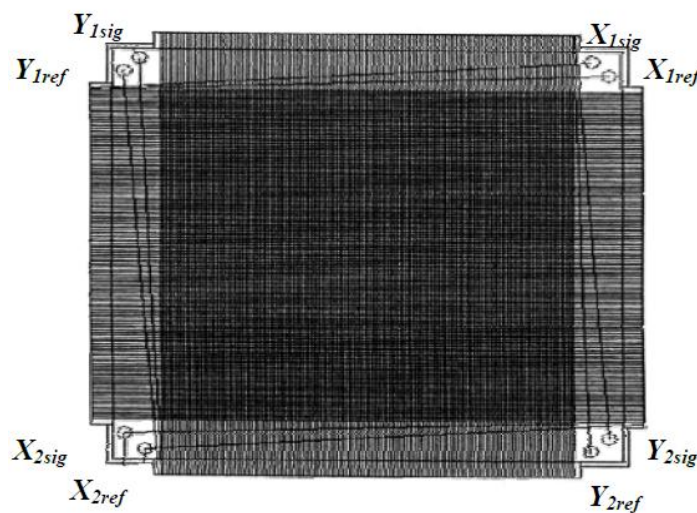


Figure 2-19 : Anode à lignes de retard.

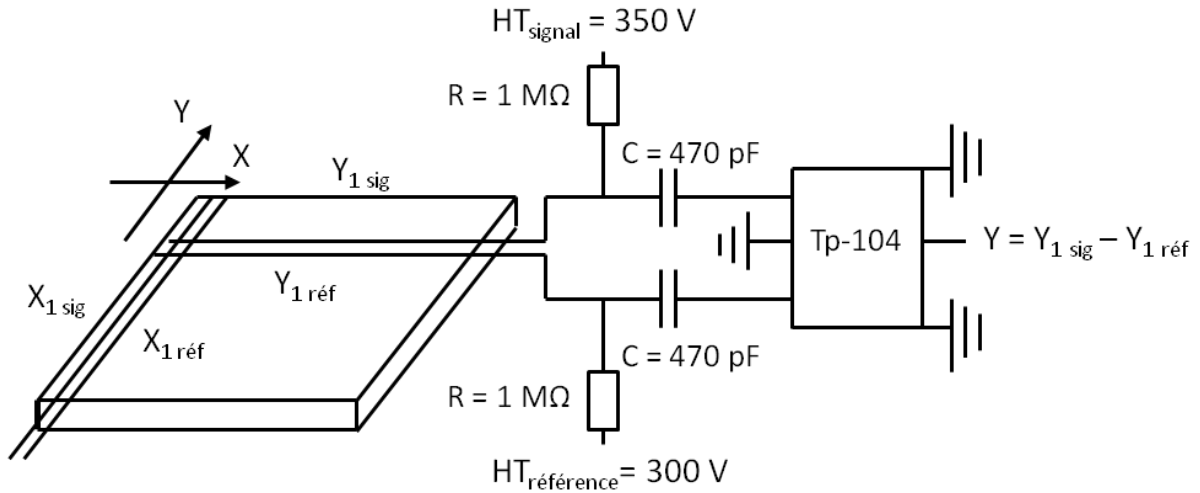


Figure 2-20 : Opération différentielle à partir d'amplificateur TP-104 du signal  $Y = Y_{1 \text{ sig}} - Y_{1 \text{ réf}}$ .

Les lignes “références” et “signaux” sont polarisées respectivement aux tensions positives de 300 V et 350 V. Les signaux sont envoyés vers un boîtier électronique, composé d'amplificateurs différentiels TP-104, qui a pour rôle de réaliser une soustraction entre les signaux “références” et “signaux” (figure 2-20). Il permet d'éliminer le bruit de fond et les signaux parasites. Il ne reste plus que quatre signaux à traiter, correspondant à des impulsions électroniques analogiques :

- $X_1 = X_{1 \text{ sig}} - X_{1 \text{ réf}}$
- $X_2 = X_{2 \text{ sig}} - X_{2 \text{ réf}}$
- $Y_1 = Y_{1 \text{ sig}} - Y_{1 \text{ réf}}$
- $Y_2 = Y_{2 \text{ sig}} - Y_{2 \text{ réf}}$

Afin de mettre en forme les signaux, ils sont traités par l'électronique de détection (paragraphe E).

## E - Electronique de détection et système d'acquisition

Au total, six signaux sont à acquérir et à traiter : ces signaux, correspondant à des temps, seront repérés par rapport à un signal “common stop” (décrit dans la suite de ce paragraphe).

Après détection, six signaux sont amplifiés à l'aide d'amplificateurs rapides (modèle Lecroy FTA 820, gain = 200). Il s'agit du signal “start” (MCPPROJ), du signal “stop” (MCPSIG) et des quatre signaux générés par les anodes à lignes de retard ( $X_1$ ,  $X_2$ ,  $Y_1$  et  $Y_2$ ). L'amplitude des signaux doit être supérieure à 17 mV pour pouvoir utiliser les discriminateurs à fraction constante (“Constant Fraction Discriminator”, CFD, modèle Ortec 935). Ce module permet l'obtention de mesures de temps précises, indépendantes du temps de montée et de l'amplitude des signaux. Le réglage du seuil du CFD permet d'éliminer le bruit de fond ainsi que les rebonds éventuels. Le signal généré par ce module est un signal logique au format “NIM” (signal négatif de - 0.8 V). Le réglage des CFD permet d'avoir une précision de l'ordre de la nanoseconde sur les mesures de temps.

Les signaux issus des CFD sont envoyés sur le TDC (“Time to Digital Converter”, TDC, modèle 3377 de Lecroy). Ce module permet la mesure et le codage d'intervalle de temps. Le TDC fonctionne en mode “common stop” : il code le temps de tous les signaux qui précèdent le signal connecté sur sa voie “common stop”. Il est composé de 32 voies, dont chacune peut enregistrer jusqu'à 16 coups par événement. Un “événement” nécessite un signal “start” et au moins un signal “stop”. Le codage de temps des signaux est réalisé sur une échelle de temps de 16.3  $\mu$ s. Les figures 2-21 et 2-22 présentent les schémas de l'électronique de détection utilisés sur la SME et sur ARIBE.

## Chapitre 2 : Dispositifs expérimentaux

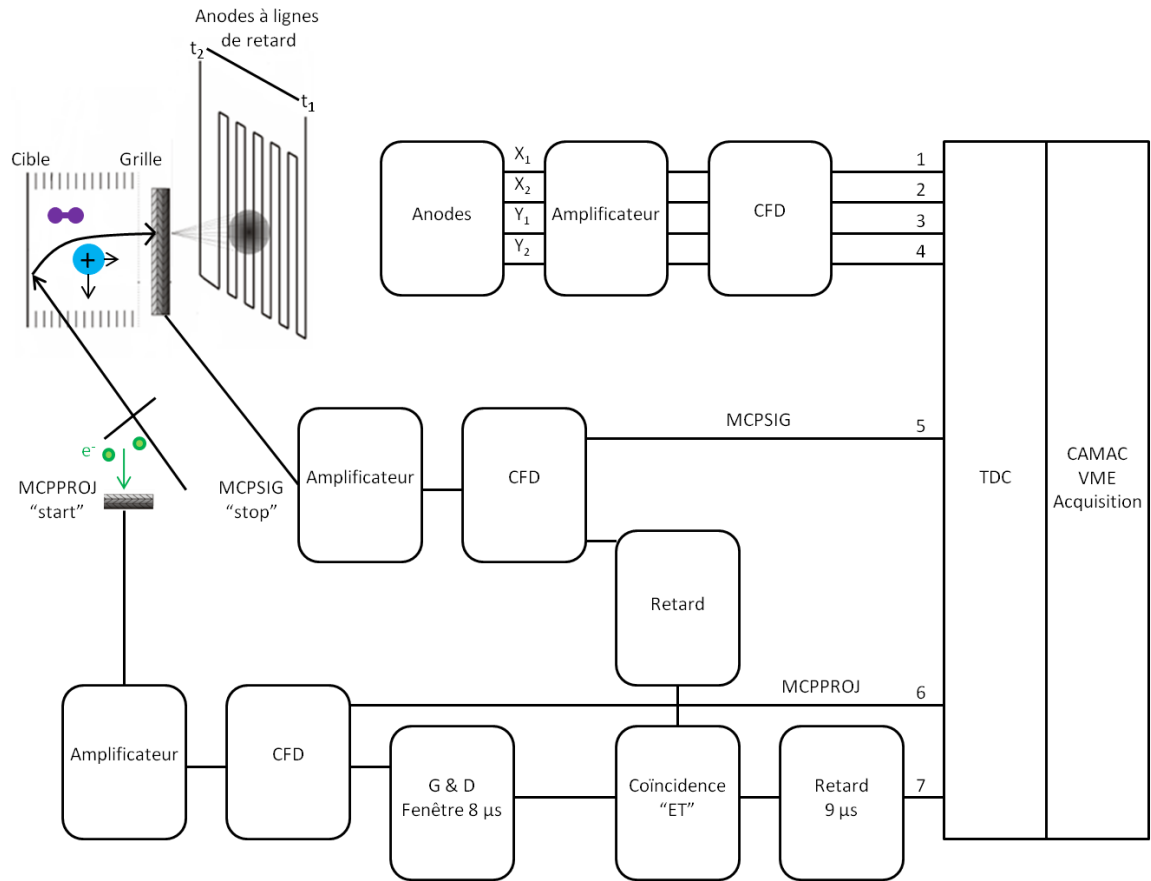


Figure 2-21 : Schéma de l'électronique de détection utilisée sur la SME.

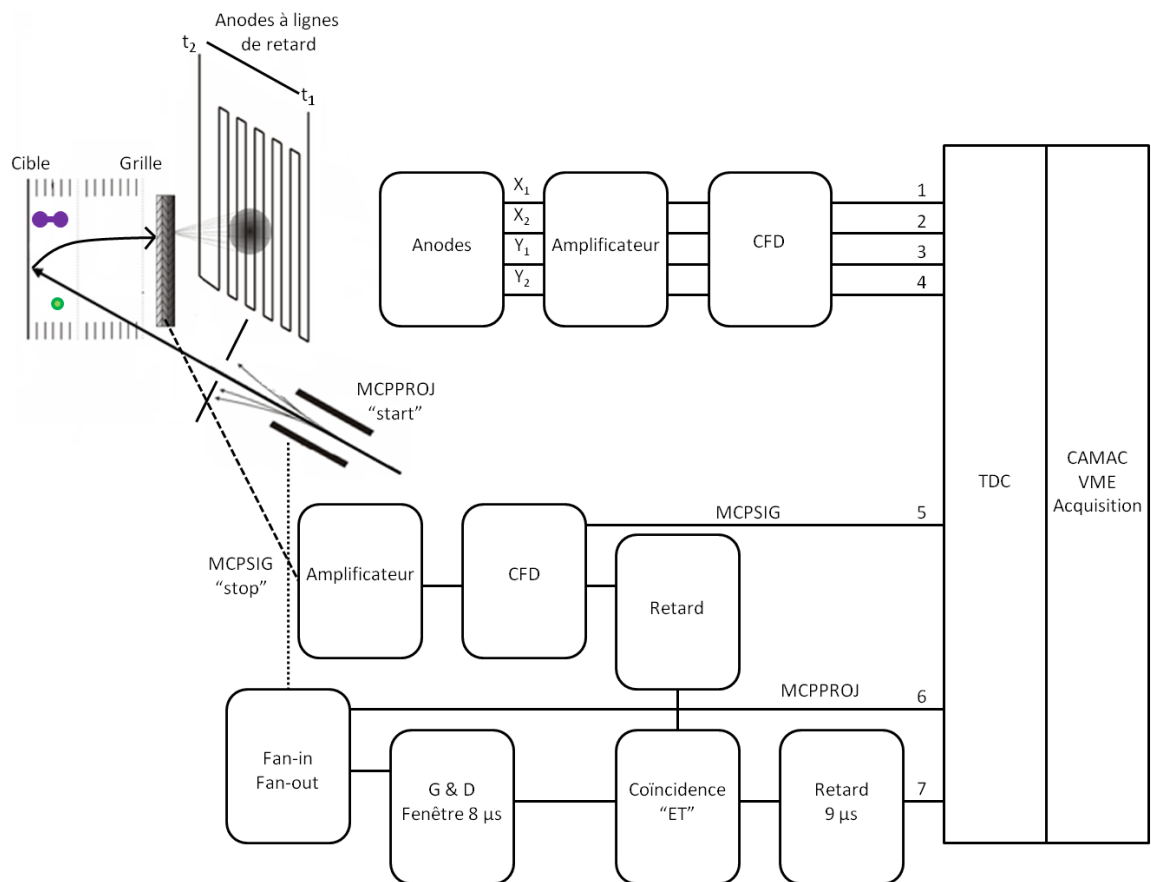


Figure 2-22 : Schéma de l'électronique de détection utilisée sur ARIBE.

## Chapitre 2 : Dispositifs expérimentaux

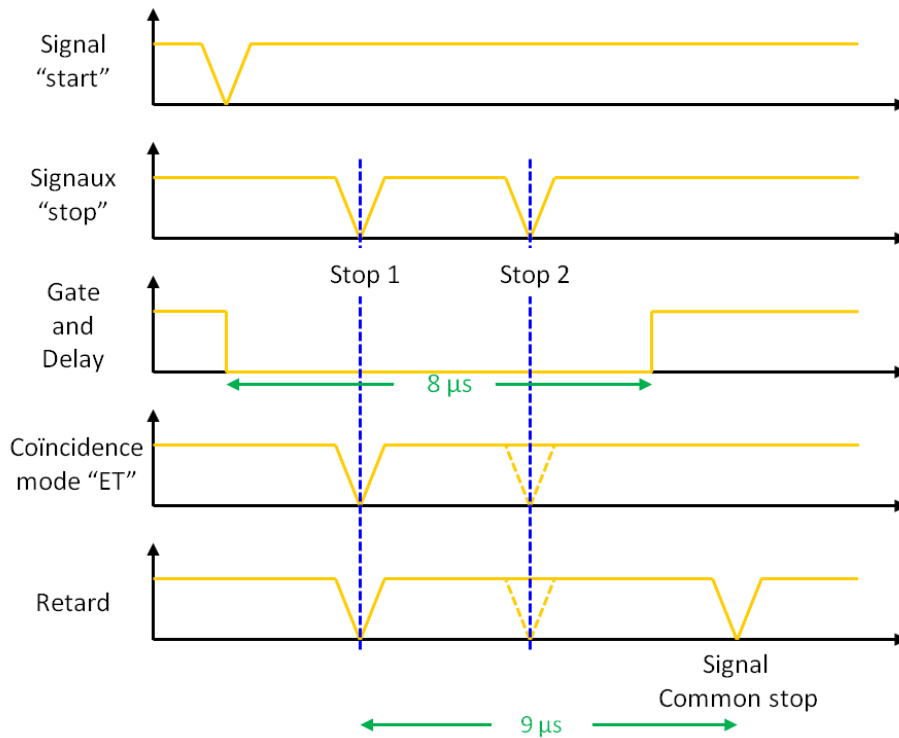


Figure 2-23 : Chronogramme de la sélection des évènements.

Un évènement physique intéressant correspond à l'existence d'un signal "start" et au moins un signal "stop". Afin de sélectionner les bons évènements, une fenêtre de  $8 \mu\text{s}$ , générée par un module "Gate and Delay", est déclenchée à partir du signal "start". Cet intervalle de temps assure la prise en compte de tous les signaux "stop". Une coïncidence en mode "ET" est réalisée ensuite entre le signal "stop" et la fenêtre de  $8 \mu\text{s}$ . Si le signal "stop" est présent en même temps que la fenêtre, il est retardé de  $9 \mu\text{s}$ . Ce signal est appelé "common stop". Il est ensuite envoyé sur l'entrée "common stop" du TDC. Le signal "common stop" sert de référence pour la mesure de temps des différents signaux (MCPPROJ, MCPSIG,  $X_1$ ,  $X_2$ ,  $Y_1$  et  $Y_2$ ). L'enchaînement temporel est schématisé sur la figure 2-23. Les données traitées par le TDC sont ensuite transférées à la station d'acquisition par l'intermédiaire d'un module CAMAC-VME ("Computer Automated Measurement And Control", CAMAC - "Versa Module Eurocard", VME).



## F - Analyse des données : Principe et étalonnage

### 1 - Introduction

Les six signaux bruts sont utilisés pour déterminer le temps de vol TOF et les positions X et Y. Ces paramètres calculés doivent être ensuite étalonnés (paragraphes F-3 et F-4). À partir de ces paramètres, il est possible de déterminer :

- Les spectres de masses et ainsi identifier les ions pulvérisés.
- Les composantes du vecteur vitesse initiale  $v_0$ .
- Les distributions en angle et en énergie.

### 2 - La ligne de gaz

Pour étalonner le système, nous utilisons la méthode de la “ligne de gaz” [Jalowy 2004b]. Un gaz (hélium, néon, argon) est introduit dans l’enceinte de l’expérience par l’intermédiaire d’une microfuite (pression  $\sim 2 \times 10^{-6}$  mbar). Avant d’interagir avec la cible, le faisceau d’ions peut ioniser les atomes du gaz présents dans la zone d’extraction du spectromètre. Ces atomes ionisés sont guidés par le champ d’extraction vers les galettes et détectés. Leur vitesse initiale peut être considérée comme négligeable. Dans les spectres X-TOF et Y-TOF, une ligne, correspondant au processus d’ionisation du gaz, apparaît. Cette ligne est appelée “ligne de gaz”. Elle permet la vérification des paramètres du détecteur (les distances cible/grille  $d_1$  et grille/galettes  $d_2$ , les tensions d’extractions  $U_1$  et  $U_2$ ), l’angle d’incidence du projectile  $\delta$  et la détermination du point d’impact.

#### a) Spectromètre à une grille

Le faisceau projectile ionise un atome de gaz (de coordonnées  $(0, Y_p, Z_p)$ ) à l’instant  $t_s$  avant la collision avec la surface (de coordonnées  $(X_0 = 0, Y_0 = 0, Z_0 = 0)$ ). Le temps  $t_s$  est égal à :

$$t_s = \frac{y_p}{\sin(\delta)v_p}$$

Où  $v_p$  est la vitesse du projectile.  
 $\delta$  l’angle d’incidence du projectile.

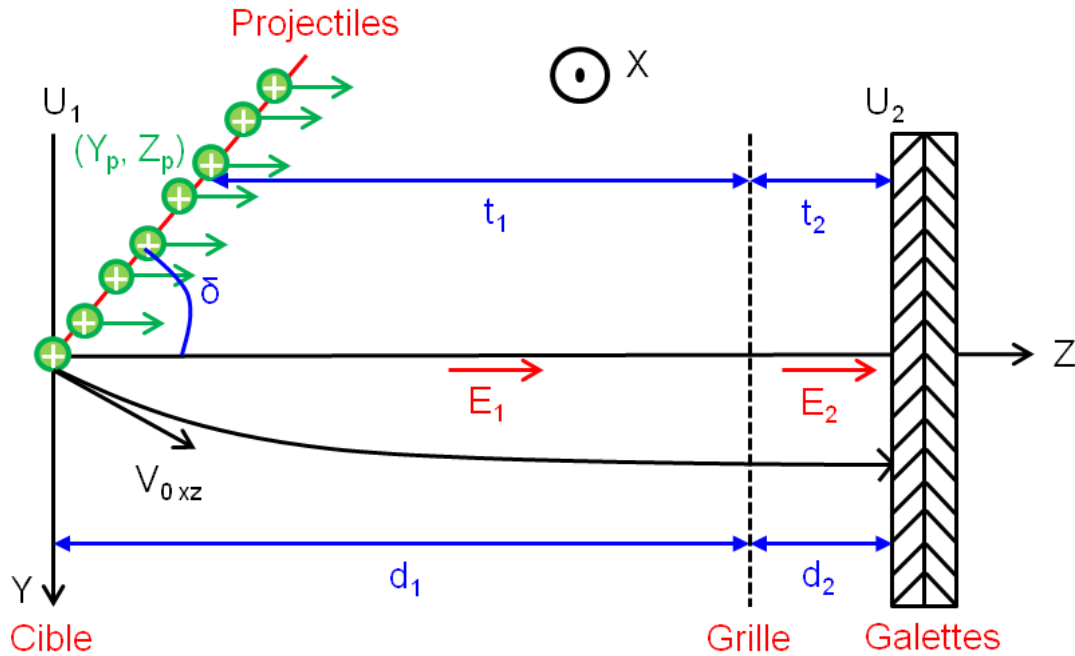


Figure 2-24 : Schéma de l'ionisation du gaz par le faisceau d'ions dans le cas d'un spectromètre à une grille.

Les ions sont tout d'abord extraits par un champ électrique uniforme  $E_1$  (figure 2-24). L'ion traverse cette zone de pré accélération en un temps  $t_1$  sur la distance  $d_1 - z_p$ . Puis dans la zone de post accélération, il est soumis à un champ  $E_2$  pendant un temps  $t_2$ . Les ions sont ensuite détectés par les galettes à micro canaux. Tous les calculs (temps, vitesses et temps de vol) sont décrits dans l'annexe 1.

Le temps de vol des ions est :

$$TOF_{\text{une grille}} = t_1 + t_2 - t_s \quad (2-2)$$

À l'aide des relations de la dynamique, nous en déduisons  $t_1$  et  $t_2$  :

$$t_1 = \frac{2(d_1 - z_p)}{v_1} \quad (2-3)$$

Avec  $v_1$  la vitesse de l'ion au niveau de la grille.

$$v_1 = \sqrt{\frac{2qU_1(d_1 - z_p)}{md_1}} \quad (2-4)$$

$$t_2 = \frac{2d_2}{v_2 + v_1} \quad (2-5)$$

Avec  $v_2$  la vitesse de l'ion au niveau du détecteur.

$$v_2 = \sqrt{\frac{2qU_1}{md_1} + v_1^2} \quad (2-6)$$

Le temps de vol  $TOF_{\text{une grille}}$  est donc égal à :

$$TOF_{\text{une grille}} = \left( \frac{2md_1 |d_1 - \cot(\delta)y_p|}{qU_1} \right)^{1/2} + \frac{md_2}{qU_2} \left[ \left( \frac{2qU_2 |d_1 - y_p \cot(\delta)y_p|}{md_1} \right)^{1/2} - \left( \frac{2qU_1 |d_1 - \cot(\delta)y_p|}{md_1} \right)^{1/2} \right] - \frac{y_p}{\sin(\delta)v_p} \quad (2-7)$$

b) Spectromètre à deux grilles

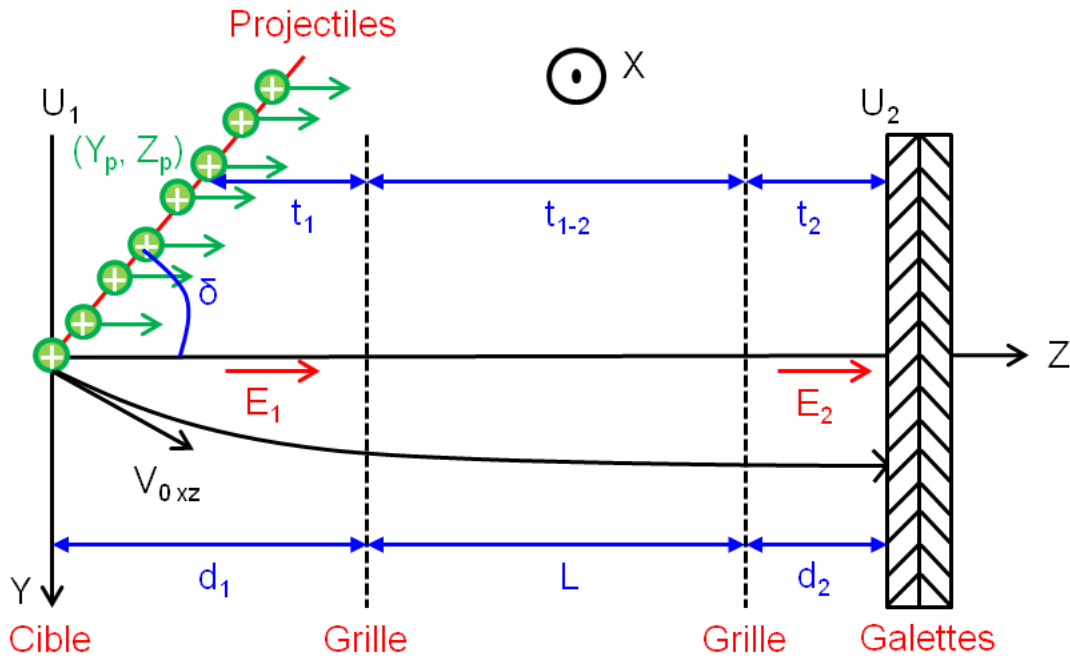


Figure 2-25 : Schéma de l'ionisation du gaz par le faisceau d'ions dans le cas d'un spectromètre à deux grilles.

La présence d'une zone de vol libre supplémentaire revient à ajouter au temps de vol à une grille un terme  $t_{1-2}$  (figure 2-25). Ce terme correspond au temps de passage de l'ion dans la zone de vol libre. Le temps de vol est :

$$TOF_{\text{deux grilles}} = TOF_{\text{une grille}} + t_{1-2} \quad (2-8)$$

$$t_{1-2} = \frac{L}{v_1} = \frac{L}{\sqrt{\frac{2qU_1(d_1 - z_p)}{md_1}}} \quad (2-9)$$

Le temps de vol  $TOF_{\text{deux grilles}}$  est donc égal à:

$$\begin{aligned}
 TOF_{\text{deux grilles}} &= \left( \frac{2md_1 |d_1 - \cot(\delta)y_p|}{qU_1} \right)^{1/2} \\
 &+ \frac{md_2}{qU_2} \left[ \left( \frac{2qU_2 |d_1 - y_p \cot(\delta)y_p|}{md_1} \right)^{1/2} - \left( \frac{2qU_1 |d_1 - \cot(\delta)y_p|}{md_1} \right)^{1/2} \right] \\
 &- \frac{y_p}{\sin(\delta)v_p} + \frac{L}{\sqrt{\frac{2qU_1(d_1 - z_p)}{md_1}}}
 \end{aligned} \tag{2-10}$$

Le protocole décrit dans ce paragraphe n'est valable que si la "ligne de gaz" est présente. Cette "ligne de gaz" n'a été observée que pour des ions de haute énergie (~ 10 MeV/u). Il a été nécessaire d'élaborer une autre méthode d'étalonnage, décrite dans l'annexe 5, pour les ions de basse vitesse.

### 3 - Etalonnage en positions X et Y

#### a) Détermination de l'origine en positions $X_0$ et $Y_0$

Les figures 2-26 et 2-27 présentent les distributions X et Y en fonction du temps de vol TOF pour le système de collision  $Ni^{24+}$  (630 MeV) sur une cible de LiF (épaisseur de 106 nm). Sur ces deux spectres, nous observons la "ligne de gaz" d'hélium (pression d'environ  $2 \times 10^{-6}$  mbar). L'extrémité de la "ligne de gaz" correspond au point d'impact du faisceau avec la surface de la cible ( $X_0, Y_0$ ). Pour les particules secondaires pulvérisées, il sera ainsi possible de calculer leur position par rapport à  $X_0$  et  $Y_0$  sur le détecteur. Ces positions seront ensuite converties et étalonnées.

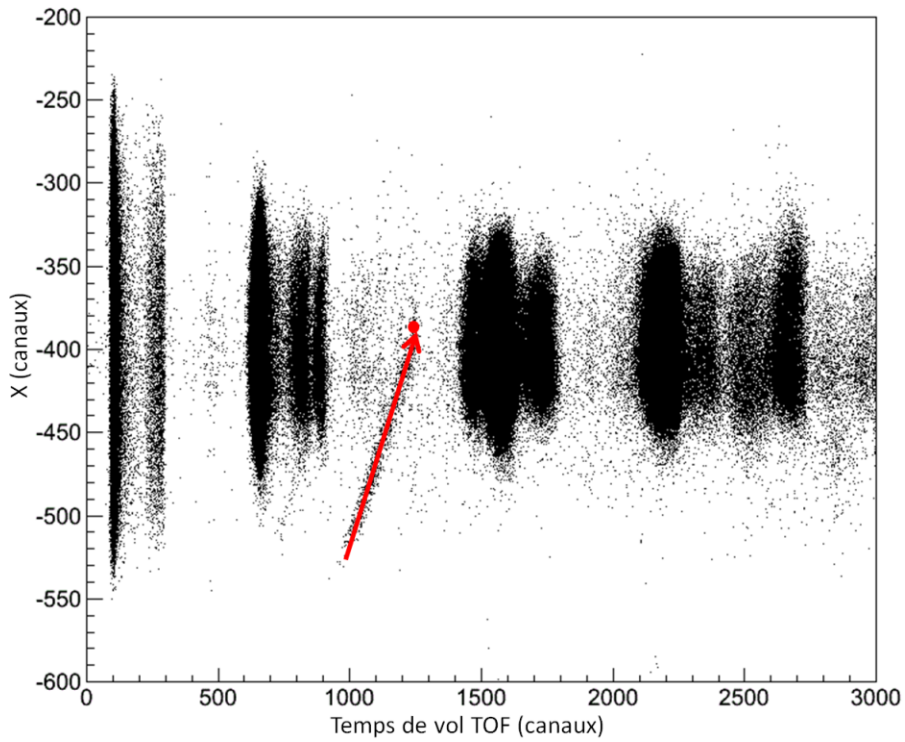


Figure 2-26 : Spectre de la position X en fonction du temps de vol TOF pour le système de collision  $Ni^{24+}$  (630 MeV) sur une cible de LiF (épaisseur de 106 nm). L'extrémité de la ligne de gaz d'hélium avec la surface de la cible est indiquée par un point rouge.

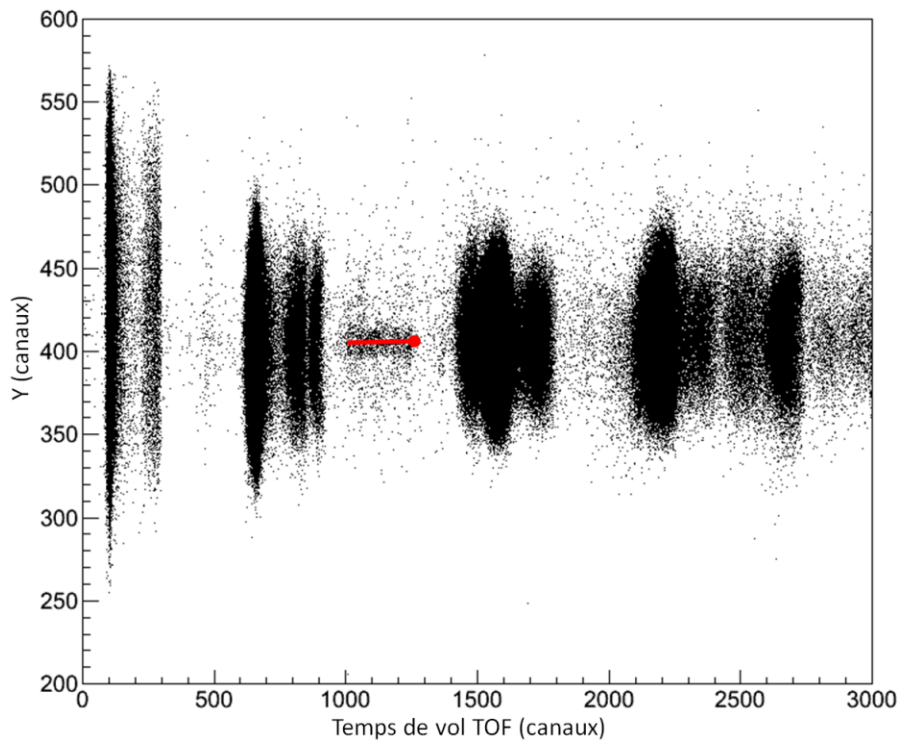


Figure 2-27 : Spectre de la position Y en fonction du temps de vol TOF pour le système de collision  $Ni^{24+}$  (630 MeV) sur une cible de LiF (épaisseur de 106 nm). L'extrémité de la ligne de gaz d'hélium avec la surface de la cible est indiquée par un point rouge.

b) Etalonnage des positions X et Y en mètre

Les positions X et Y (en canaux) se déterminent à l'aide des paramètres bruts  $X_1$ ,  $X_2$ ,  $Y_1$  et  $Y_2$  :

$$X = X_2 - X_1 \quad (2-11)$$

$$Y = Y_2 - Y_1 \quad (2-12)$$

Les positions, suivant les axes X et Y, sont estimées à partir de la différence entre X et  $X_0$ , Y et  $Y_0$ . Ces paramètres calculés sont initialement en canaux et sont donc convertis et étalonnés en mètre à partir des formules ci-dessous. Afin de déterminer ces paramètres, il est nécessaire de connaître le diamètre effectif des galettes d, qui est égal à 0.080 m.

$$X(M) = \frac{d}{(X_{max} - X_{min})} (X - X_0) \quad (2-13)$$

$$Y(M) = \frac{d}{(Y_{max} - Y_{min})} (Y - Y_0) \quad (2-14)$$

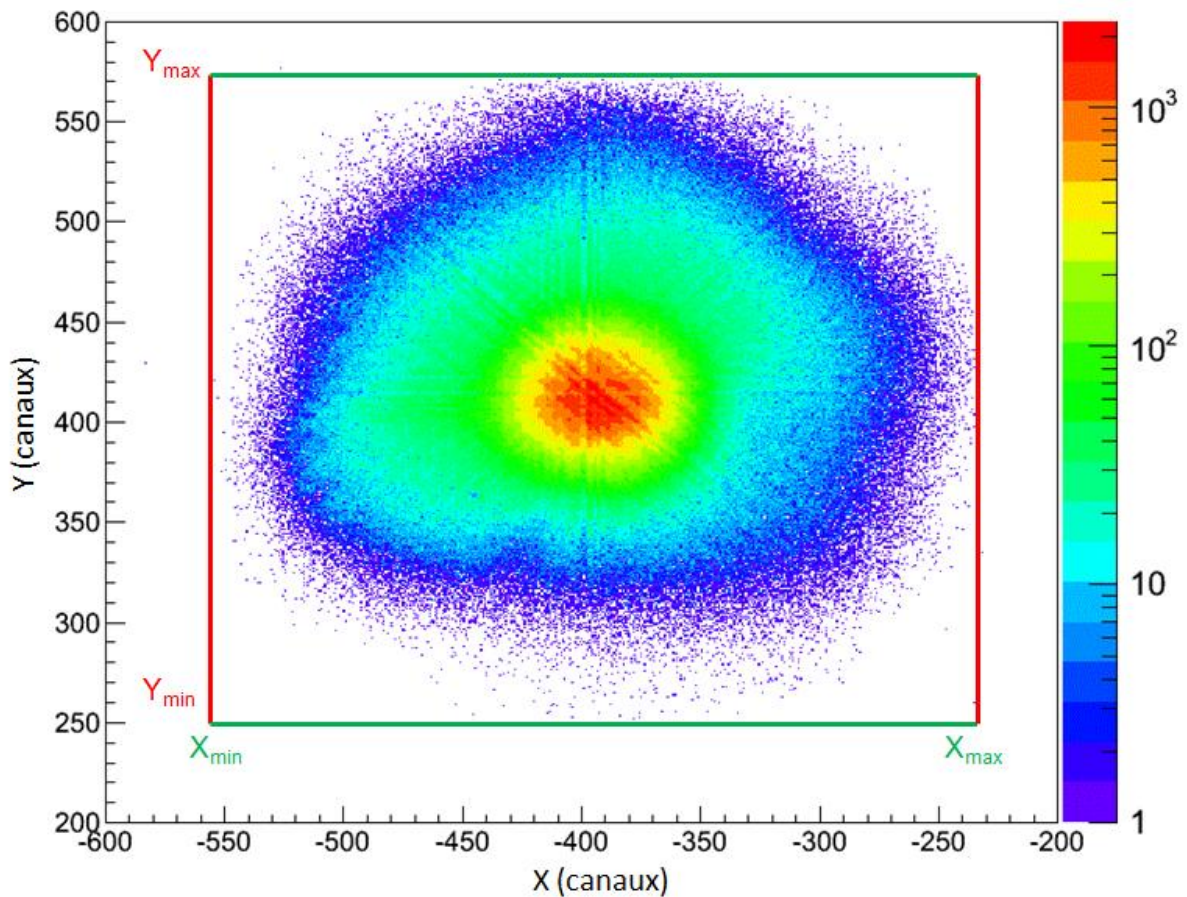


Figure 2-28 : Image du détecteur XY (canaux) avec les paramètres  $X_{min}$ ,  $X_{max}$ ,  $Y_{min}$  et  $Y_{max}$ .

Les paramètres  $X_{min}$ ,  $X_{max}$ ,  $Y_{min}$  et  $Y_{max}$  sont déterminés à l'aide de la largeur de l'image du détecteur (figure 2-28).

## 4 - Etalonnage en temps de vol TOF et en masse

Le spectre de temps de vol, initialement défini en canaux, doit être converti et étalonné en temps. Le codage des temps par le TDC s'effectue sur une échelle de temps de  $16.3 \mu\text{s}$  (32768 canaux). Chaque canal correspond à  $0.5 \text{ ns}$  [Tarisien 2003]. Pour les expériences réalisées sur la SME, l'étalonnage en temps de vol s'effectue à l'aide du pic photon, considéré comme origine du spectre ( $t_0 = 0$ ). Le temps de vol TOF converti et étalonné en temps est calculé à l'aide de la formule suivante :

$$TOF(s) = (TOF - P_{\text{photon}}) \times 0.5 \times 10^{-9} \quad (2-15)$$

Avec  $P_{\text{photon}}$  la position du pic photon (canaux).

En ce qui concerne les expériences effectuées sur ARIBE, le pic photon n'est pas observé sur les spectres. Une autre méthode, décrite dans l'annexe 5, a été développée pour réaliser l'étalonnage en temps de vol.

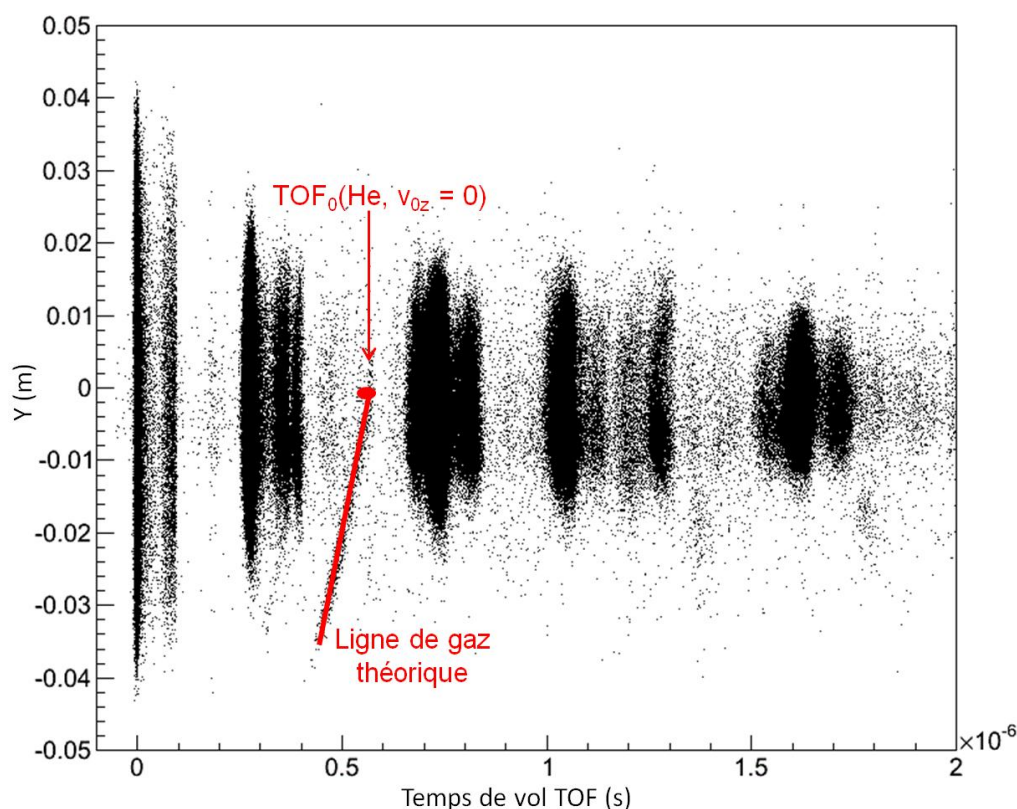


Figure 2-29 : Spectre étalonné en position suivant l'axe Y et en temps de vol pour le système de collision  $\text{Ni}^{24+}$  (630 MeV) sur une cible de LiF (épaisseur de 106 nm) : ajustement théorique de la ligne de gaz d'hélium (ligne rouge).

L'extrémité de la "ligne de gaz" correspond au point d'impact ( $X_0, Y_0$ ) du faisceau avec la surface de la cible. Dans le cas d'un gaz support d'hélium, le calcul du temps de vol pour une masse  $m = 4u$  ayant une vitesse initiale négligeable ( $v_0 = 0$ ), permet de valider l'étalonnage (figure 2-29).

La formule du temps de vol théorique  $TOF_{0 \text{ théorique}}$  est :

$$TOF_0(v_{0z} = 0) = \sqrt{\frac{m}{q}} \left( d_1 \sqrt{\frac{2}{U_1}} + \frac{d_1}{U_2} \sqrt{2U_1 + 2U_2} - \frac{d_1}{U_2} \sqrt{2U_1} \right) = \alpha \sqrt{\frac{m}{q}} \quad (2-16)$$

$$\text{Avec } \alpha = d_1 \sqrt{\frac{2}{U_1}} + \frac{d_1}{U_2} \sqrt{2U_2 + 2U_1} - \frac{d_1}{U_2} \sqrt{2U_1} \text{ (Spectromètre à une grille)}$$

## 5 - Calculs des composantes du vecteur vitesse

Chaque ion secondaire est éjecté avec un vecteur vitesse initiale  $\vec{v}_0 (v_{0x}, v_{0y}, v_{0z})$ . Les champs électriques utilisés pour extraire et post-accélérer les ions secondaires sont définis suivant l'axe z (figures 2-23 et 2-24). Aucune force n'est appliquée suivant les axes x et y. Les composantes radiales ( $v_{0x}$  et  $v_{0y}$ ) sont déterminées à l'aide des formules suivantes :

$$X = v_{0x} TOF \text{ et } v_{0x} = \frac{X}{TOF} \quad (2-17)$$

$$Y = v_{0y} TOF \text{ et } v_{0y} = \frac{Y}{TOF} \quad (2-18)$$

La composante longitudinale ( $v_{0z}$ ) est plus complexe à déterminer ( $TOF = f(v_{0z})$ ).

### a) Spectromètre à une grille

La relation entre le temps de vol  $TOF_{\text{une grille}}$  et la composante longitudinale  $v_{0z}$  est :

$$TOF_{\text{une grille}} = \frac{md_1}{qU_1} \left( \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - v_{0z} \right) + \frac{md_2}{qU_2} \left( \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + \frac{2qU_2}{m} + v_{0z}^2} - \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \right) \quad (2-19)$$

L'annexe 2 présente tous les calculs nécessaire à la détermination de  $TOF_{\text{une grille}}$ .

### b) Spectromètre à deux grilles

La relation entre le temps de vol  $TOF_{\text{deux grilles}}$  et la composante longitudinale  $v_{0z}$  est :

$$TOF_{\text{deux grilles}} = \frac{md_1}{qU_1} \left( \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - v_{0z} \right) + \frac{L}{\sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2}} + \frac{md_2}{qU_2} \left( \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + \frac{2qU_2}{m} + v_{0z}^2} - \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \right) \quad (2-20)$$



## Chapitre 2 : Dispositifs expérimentaux

A partir de ces deux équations, exprimer  $v_{0z}$  en fonction du temps de vol n'est pas aisé. Dans cette optique, un programme informatique a été développé afin de générer une solution à l'aide d'une itération mathématique (annexe 3).

Connaissant les trois composantes du vecteur vitesse ( $v_{0x}$ ,  $v_{0y}$  et  $v_{0z}$ ), il est maintenant possible de déterminer les distributions en énergie et en angle pour chaque espèce ionique. La vitesse initiale  $v_0$  d'un ion secondaire est égale à :

$$v_0 = \sqrt{v_{0x}^2 + v_{0y}^2 + v_{0z}^2} \quad (2-21)$$

Son énergie cinétique E est :

$$E = \frac{1}{2} m v_0^2 \quad (2-22)$$

Pour chaque masse, il est ainsi possible de déterminer les distributions en énergie.

En ce qui concerne les distributions en angle,  $\theta$  est égal à :

$$\theta = \text{tg} \left( \frac{v_t}{v_{0z}} \right) \quad (2-23)$$

Avec  $v_t$  la vitesse transversale

$$v_t = \sqrt{v_{0x}^2 + v_{0y}^2} \quad (2-24)$$

Les calculs d'incertitudes correspondants aux distributions en énergie et en angle sont décrits dans l'annexe 4.

## G - Préparation des échantillons

### 1 - Le fluorure de lithium LiF

Lors de nos expériences, nous avons utilisé différentes cibles de LiF :

- Des cibles monocristallines, achetées chez Korth Kristalle GMBH (Kiel, Allemagne). Ces cibles sont réalisées à partir d'un barreau de LiF. Ce barreau a la forme d'un cylindre de diamètre 15 mm. Pour toutes les expériences, la cible a été clivée dans la direction (100).

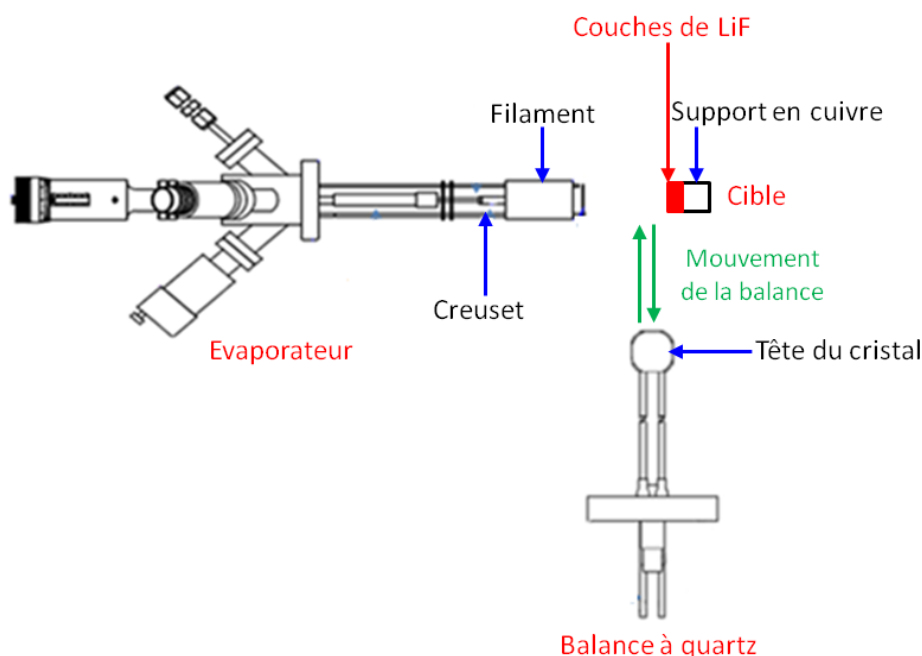


Figure 2-30 : Dispositifs utilisés pour l'évaporation de couches minces.

- Des cibles polycristallines. Les dépôts de couches minces de LiF (polycristallin), enrichi en  $^7\text{Li}$  (99 %) ont été réalisés à l'aide d'un évaporateur à flux d'électrons. La figure 2-30 décrit le dispositif utilisé pour réaliser cette évaporation. À l'aide d'un courant électrique, le filament en tungstène présent dans l'évaporateur est chauffé et émet des électrons. Les électrons sont attirés vers un creuset en molybdène, qui renferme la poudre de LiF, porté à un potentiel de l'ordre du kilovolt. Les électrons chauffent le creuset et génèrent l'évaporation du LiF. Les particules diffusent ensuite vers un substrat de cuivre. L'évaporation est réalisée "in-situ" dans des conditions d'ultra-vide (pression =  $3 \times 10^{-9}$  mbar), afin d'assurer la propreté des surfaces. Pour mesurer l'épaisseur de la cible, nous utilisons une balance à quartz (figure 2-30). Elle est composée d'un quartz plan qui, due à l'effet piézoélectrique, vibre à une fréquence propre de résonance. Lors du dépôt du matériau, la masse de l'ensemble modifie la fréquence de résonance. La mesure de la déviation permet de connaître la masse de matière déposée. L'épaisseur de la couche mince est déterminée avec une incertitude de 10 %. Avant de préparer la cible, il est nécessaire de calibrer, avec la balance à quartz, l'épaisseur déposée en fonction du temps. La cible est ensuite mise à la place de la balance.

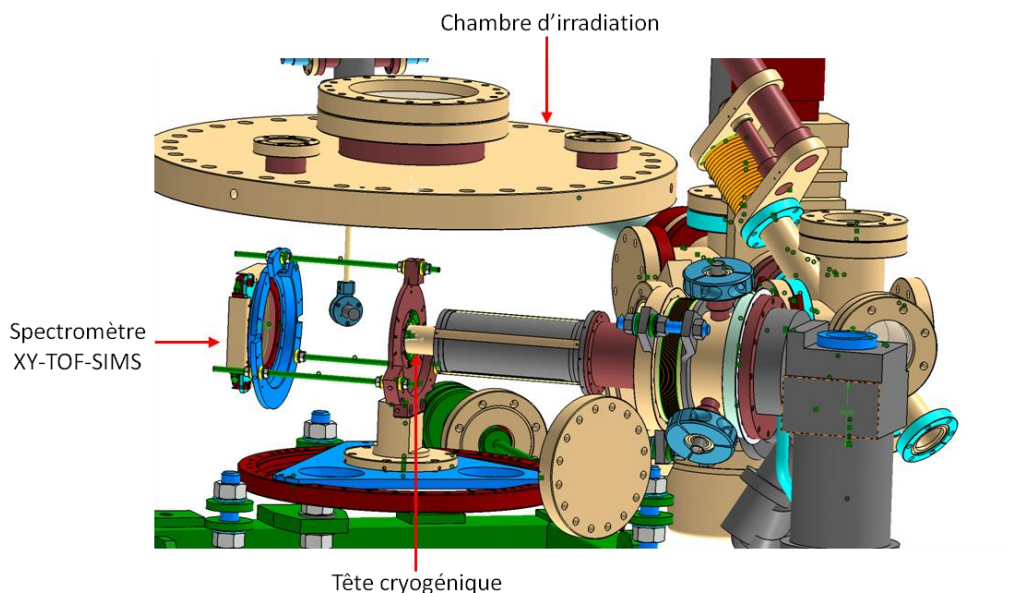
## 2 - Silicates

Lors des expériences réalisées à Caen et à Rio de Janeiro, différentes cibles de silicates ont été irradiées :

- Les cibles de néphéline produites à l'observatoire de Florence par J.R. Brucato. Les échantillons ont été produits à partir d'une roche de néphéline. Des couches de néphéline, d'épaisseur 1  $\mu\text{m}$ , ont été déposées, grâce à un évaporateur à flux d'électrons, sur un "wafer" de silicium.
- Les cibles de néphéline produites à GANIL, Caen. Les échantillons ont été produits à l'aide d'un évaporateur à flux d'électrons (paragraphe G-1) à partir d'une roche de néphéline. Le matériau évaporé a été déposé sur un "wafer" de silicium. L'épaisseur du dépôt est de 20 nm.
- Les cibles de néphéline, de jadéite et d'anorthite préparées à la PUC, Rio. Les différentes roches ont été cassées avec un mortier et transformées en poudre. Les poudres ont ensuite été collées sur une feuille de carbone.

## 3 - Glaces

En Juin 2013, une tête froide cryogénique, permettant la production de glaces, a été installée dans la chambre d'irradiation du dispositif AODO (figure 2-31).



**Figure 2-31 : Dispositif de production de glaces installée dans le dispositif AODO.**

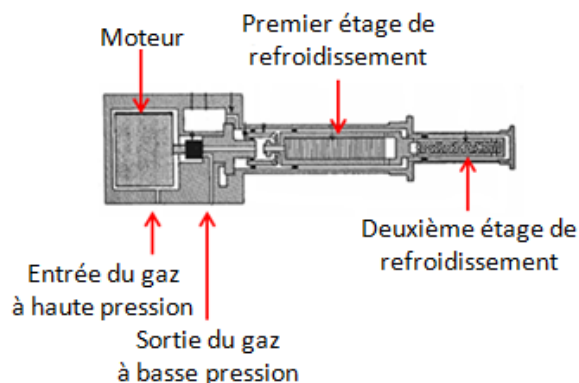


Figure 2-32 : Schéma de principe de la tête cryogénique.

La tête froide se compose de deux étages de refroidissement (figure 2-32). Par l'intermédiaire d'un circuit fermé d'hélium, ces étages sont refroidis. La température minimale atteinte est de l'ordre de 10 K. Deux sondes sont utilisées afin de déterminer la température au niveau de la tête froide (figure 2-33) : une sonde à résistance de carbone et une sonde CLTS ("Cryogenic Linear Temperature Sensor"). Les sondes mesurent des résistances qui sont ensuite converties en température à l'aide de courbes d'étalonnage.

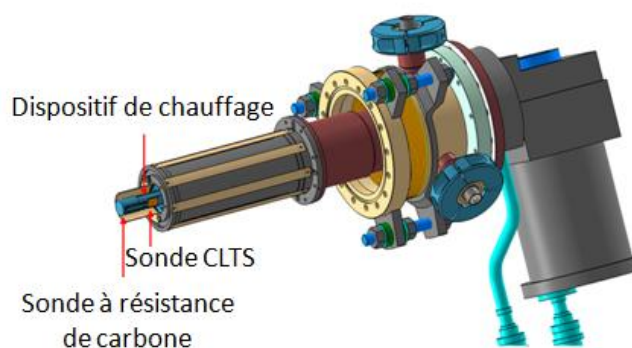


Figure 2-33 : Schéma de la tête cryogénique et de l'ensemble sondes-dispositif de chauffage.

Par l'intermédiaire d'une microfuite, le gaz ( $H_2O$ ,  $CO$ ,  $CO_2$ , ...) est introduit dans la chambre. Ce gaz se condense sur la tête cryogénique refroidie à la température désirée. Le nombre de monocouches déposées est déterminé à l'aide de la formule suivante [Kadish 2003, Sen 2006] :

$$N_{monocouches} = \frac{tSP}{(2\pi mkT)^{1/2}} \quad (2-25)$$

avec  $t$  le temps de dépôt (s),  
 $S$  la probabilité de collage,  
 $P$  la pression du gaz ( $N\ m^{-2}$ ),  
 $m$  la masse moléculaire du gaz (kg),  
 $k$  la constante de Maxwell-Boltzmann,  
 $T$  la température de la tête cryogénique (K).

Il est possible de contrôler et de faire varier la température de la tête froide de 10 K à 300 K, modifiant ainsi l'état et la structure de la glace. Des glaces de  $H_2O$ ,  $CO_2$ , Ar,  $CH_4$  d'une épaisseur de l'ordre de 500 nm - 1  $\mu m$  ont été préparées pour tester le système. Le QMS a été utilisé pour valider les températures de sublimation des différentes glaces.



Chapitre 3  
Emission des agrégats :  
Fluorure de lithium et glaces  
d'eau

## Introduction

Les mécanismes de base d'excitation conduisant à la pulvérisation et à l'émission des agrégats ne sont pas encore totalement compris. Dans ce chapitre, nous nous focaliserons, tout particulièrement, sur l'émission d'agrégats issus de différents matériaux tels que le LiF et les glaces d'intérêt astrophysique.

Ce chapitre débutera par la présentation des résultats concernant le LiF, isolant cristallin modèle à gap élevé  $E_g \sim 14$  eV. Ce matériau a fait l'objet de nombreuses études au cours des dernières décennies [Pereira 1998, Toulemonde 2003, Hijazi 2011a, Hijazi 2011b, Hijazi 2014a]. Il nous a permis, en outre, de mettre au point le dispositif expérimental AODO. Dans la première partie de ce chapitre, nous nous focaliserons sur l'interaction entre les ions rapides et des cibles de LiF polycristallin. Ces expériences nous permettront d'étudier l'effet de l'épaisseur de la cible sur l'émission d'agrégats. Nous présenterons les spectres de masses, les rendements et les distributions en énergie. Une étude préliminaire sur l'émission des agrégats en fonction de l'épaisseur a été présentée dans la thèse de H. Hijazi [Hijazi 2011a]. Une analyse plus approfondie sera proposée dans ce chapitre.

La deuxième partie de ce chapitre décrira l'effet des ions "lents" sur des cibles de LiF monocristallin. Nous nous intéresserons aux spectres de masses, aux rendements et aux distributions en énergie. L'étude de l'interaction entre les ions lents et une cible de LiF monocristallin a déjà été réalisée au CIMAP [Lenoir 2007]. Mais, ces expériences ont été effectuées avec un vide standard d'environ  $10^{-6}$  mbar. De nombreuses pollutions surfaciques ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{C}_n\text{H}_m^+$ ) ont été observées [Lenoir 2007]. Elles perturbent l'émission des particules secondaires [Hijazi 2011b]. Cette remarque est aussi valable pour d'autres matériaux tels que les glaces [Farenzena 2005, Martinez 2006].

Les glaces d'eau sont présentes dans de nombreux objets du milieu interstellaire [d'Hendecourt 2001, Palumbo 2008a, Burke 2010] et du système solaire [Fornasier 2004, Palumbo 2008a, Bennett 2013]. Elles sont exposées en permanence à des particules chargées (rayons cosmiques, vent solaire, ...). La figure 3-1 présente, comme exemple, les taux de pulvérisation de la glace d'eau calculés théoriquement par Cassidy et collaborateurs [Cassidy 2013] en fonction de la position sur Europa. Nous avons simulé en laboratoire l'effet des ions lents sur ces glaces d'eau. Les expériences nous permettront, en particulier, d'estimer les taux de pulvérisation induits par l'irradiation des ions de la magnétosphère de Jupiter sur la surface d'Europa. La présentation des spectres de masses ainsi que des rendements conclura ce chapitre.

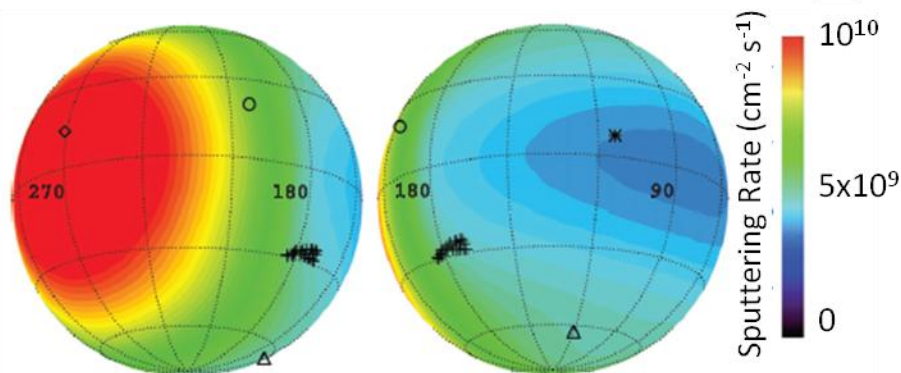


Figure 3-1 : Taux de pulvérisation à la surface d'Europa [Cassidy 2013].

# A- Effets des ions rapides sur des cibles de LiF polycristallin

## 1 - Distributions en masse

Des cibles de LiF de différentes épaisseurs (0.6 nm à 106 nm) ont été irradiées par des ions lourds rapides sur la ligne SME du GANIL, dans des conditions d'ultravide (pression  $\approx 3 \times 10^{-9}$  mbar). La préparation des échantillons est décrite dans le chapitre 2. Le tableau 3-1 résume les différents paramètres des faisceaux utilisés : le type d'ion projectile, leur charge  $q$ , leur énergie cinétique  $E_c$ , le pouvoir d'arrêt électronique  $S_e$  et "nucléaire"  $S_n$  du LiF et la profondeur de pénétration.

Faisceaux	$E_c$ (MeV)	$S_e$ (keV/nm) [Ziegler 1985]	$S_n$ (keV/nm) [Ziegler 1985]	Profondeur de pénétration (mm) [Ziegler 1985]
Ge <sup>28+</sup>	690	7.1	$4.1 \times 10^{-3}$	0.08
Ni <sup>24+</sup>	630	5.3	$2.8 \times 10^{-3}$	0.10

Tableau 3-1 : Caractéristiques des ions projectiles utilisés sur la ligne SME (GANIL, Caen).

Quelque soit l'ion, le pouvoir d'arrêt "nucléaire" est négligeable devant le pouvoir d'arrêt électronique. Les ions déposent donc leur énergie sur les électrons de la cible. Pour chaque expérience, nous avons gardé les mêmes paramètres d'extraction des ions secondaires (chapitre 2). L'angle d'incidence par rapport à la normale à la surface est égal à 35°.

La figure 3-2 présente les spectres de masses des ions positifs secondaires pour des cibles d'épaisseurs a)  $2 \pm 0.2$  nm, b)  $11.4 \pm 1.5$  nm et c)  $106 \pm 10$  nm irradiées par des faisceaux de Ge<sup>28+</sup> (690 MeV) (a et c) et de Ni<sup>24+</sup> (630 MeV) (b). Pour toutes ces cibles, le nombre de projectiles est comparable.

Le monomère <sup>7</sup>Li<sup>+</sup>, de masse 7, est présent sur les spectres de masses. Deux séries d'agrégats sont observées :

- La série Li<sub>m</sub><sup>+</sup> ( $m = 2-3$ ).
- La série (LiF)<sub>n</sub>Li<sup>+</sup>. Pour de faibles épaisseurs de LiF (2 et 4 nm), cinq agrégats sont observés. Pour l'épaisseur de 11.4 nm, les agrégats sont au nombre de six. Neuf agrégats sont présents pour les cibles d'épaisseur supérieure ou égale à 30 nm. La distribution en taille des agrégats, pour des épaisseurs n'excédant pas 30 nm, dépend de l'épaisseur de la cible. Au-delà de 30 nm, la distribution en taille semble se stabiliser.

Dans les différents spectres, les pollutions surfaciques (C<sub>n</sub>H<sub>n</sub><sup>+</sup>) ne sont pas apparentes, excepté pour les cibles d'épaisseurs les plus faibles (< 1.6 nm). Les spectres de masses correspondants aux épaisseurs 0.6 et 1.6 nm sont présentés dans l'annexe 7. Les dépôts de LiF ne sont probablement pas homogènes. Le substrat doit être recouvert d'ilots de LiF dans le cas des deux cibles les plus minces. Lors de l'irradiation, des hydrocarbures provenant du substrat



de cuivre peuvent donc être éjectés en même temps que les particules issues du LiF. En conséquence, ces cibles n'ont pas été prises en compte pour l'étude en fonction de l'épaisseur.

Les agrégats  $\text{Li}_m^+$  et  $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$  représentent environ 68 % des particules pulvérisées. La prépondérance de l'émission sous forme d'agrégats a déjà été observée pour d'autres matériaux comme l' $\text{UO}_2$  [Boudjadar 2005, Schlutig 2001] et les glaces [Farenzena 2005, Ponciano 2005].

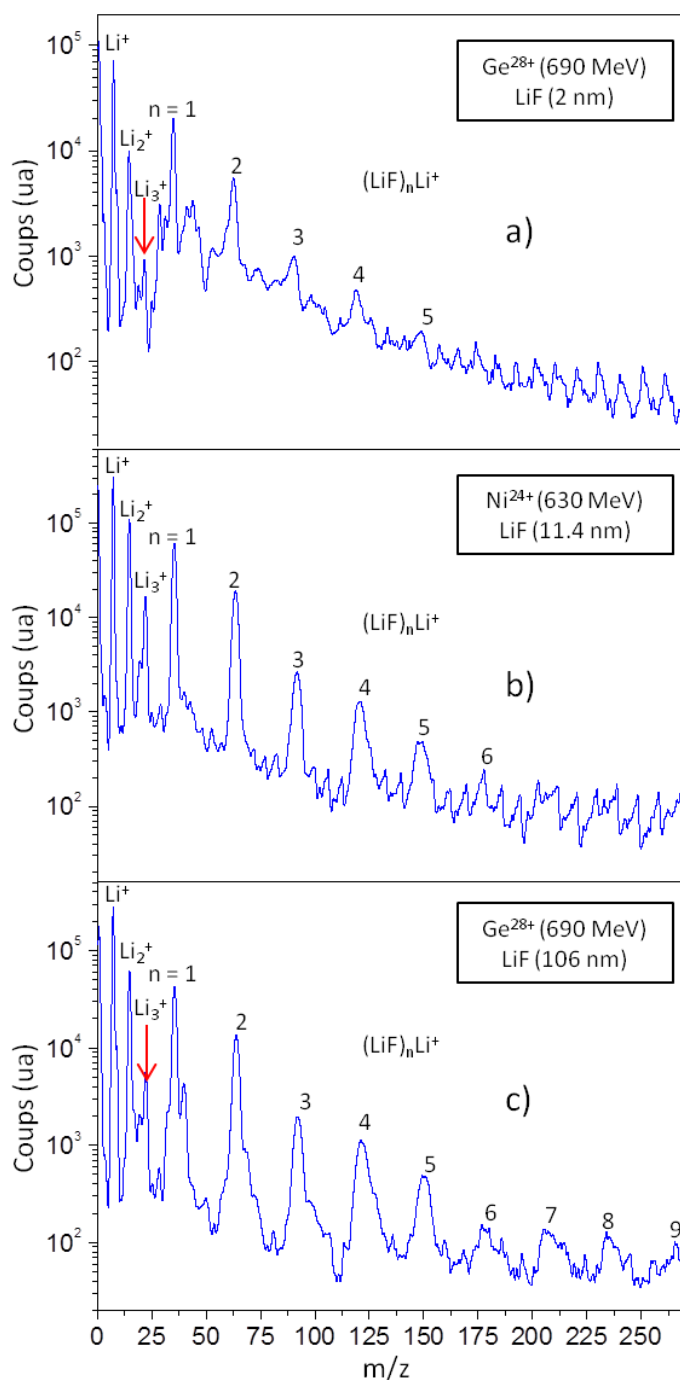


Figure 3-2 : Spectres de masses pour les systèmes de collision  $\text{Ge}^{28+}$  (690 MeV) (a et c) et  $\text{Ni}^{24+}$  (630 MeV) (b) sur des cibles de LiF polycristallin d'épaisseur (a) 2 nm, (b) 11.4 nm et (c) 106 nm.

## 2 - Evolution des rendements en fonction de la taille des agrégats et de l'épaisseur de la cible

Pour chaque épaisseur de cible, il est possible de déterminer les rendements des agrégats  $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$  en fonction de leur taille  $n$ . Le rendement ("Yield")  $Y(n)$  est défini comme étant le nombre de particules secondaires pulvérisées par projectile incident. Le rendement est déterminé à l'aide de la formule suivante :

$$Y = \left( \frac{\text{aire du pic} \times \text{nombre d'événements/s}}{\text{aire totale} \times \text{nombre de projectiles/s}} \right) \times \varepsilon_{\text{totale}} \quad (3-1)$$

avec  $\varepsilon_{\text{totale}}$  : l'efficacité des galettes, se référer au chapitre 2, paragraphe D-3,  
nombre d'événements/s : nombre de signaux "common stop" par seconde.

L'incertitude sur les rendements est de l'ordre de 20 % et est déterminée de la manière suivante :

$$\Delta Y = Y \times \left( \frac{\Delta \text{aire du pic}}{\text{aire du pic}} + \frac{\Delta \text{aire totale}}{\text{aire totale}} + \frac{\Delta \text{nombre de projectiles/s}}{\text{nombre de projectiles/s}} \right) \quad (3-2)$$

avec  $\Delta$  aire du pic : l'incertitude sur l'aire du pic,  
 $\Delta$  aire totale : l'incertitude sur l'aire totale,  
 $\Delta$  nombre de projectiles/s : l'incertitude sur le nombre de projectiles/s.

L'évolution des rendements des agrégats en fonction du pouvoir d'arrêt électronique a été étudiée par Hijazi et collaborateurs [Hijazi 2014a]. Ils démontrent que les rendements des agrégats suivent une loi de la forme  $Y \sim S_e^2$ , pour des pouvoirs d'arrêt électronique inférieurs à  $8 \text{ keV nm}^{-1}$  [Hijazi 2014a]. Afin de pouvoir comparer les expériences réalisées avec les faisceaux de  $\text{Ge}^{28+}$  et de  $\text{Ni}^{24+}$ , de pouvoir d'arrêt électronique différent, les rendements ont été ajustés selon cette loi. Cet ajustement a été effectué sur les rendements des agrégats correspondant au faisceau de  $\text{Ge}^{28+}$ . La formule 3-3 a été utilisée, pour calculer les rendements corrigés, correspondant au faisceau de  $\text{Ni}^{24+}$  :

$$Y_{\text{Ni corrigé}} = \left( \frac{S_{e \text{ Ge}}}{S_{e \text{ Ni}}} \right)^2 Y_{\text{Ni}} = 1.8 \times Y_{\text{Ni}} \quad (3-3)$$

avec  $Y_{\text{Ni corrigé}}$  : les rendements des agrégats, obtenus avec le faisceau de  $\text{Ni}^{24+}$ , ajustés selon la loi de la forme  $Y \sim S_e^2$ ,  
 $S_{e \text{ Ge}}$  et  $S_{e \text{ Ni}}$  : les pouvoirs d'arrêt électronique correspondants aux faisceaux de  $\text{Ge}^{28+}$  et de  $\text{Ni}^{24+}$  dans le LiF,  
 $Y_{\text{Ni}}$  : les rendements des agrégats, obtenus avec le faisceau de  $\text{Ni}^{24+}$ .

La figure 3 montre la distribution des rendements des agrégats  $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$  en fonction de leur taille pour différentes épaisseurs de LiF (2 nm à 106 nm).

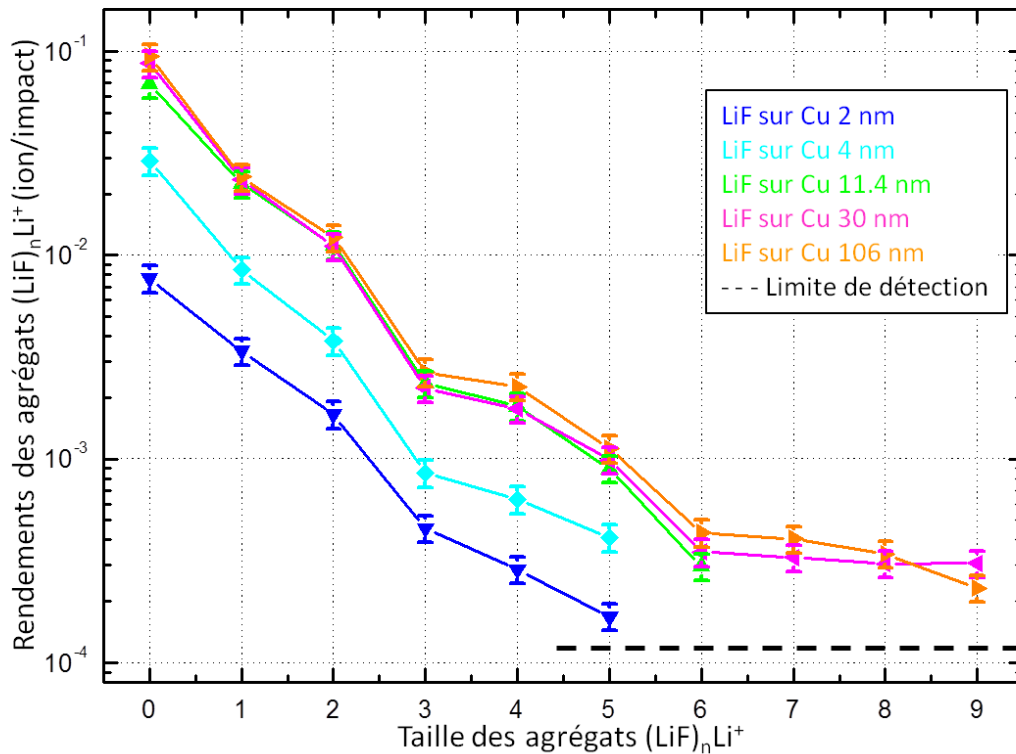


Figure 3-3 : Rendements des agrégats  $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$  en fonction de leur taille pour des cibles de LiF polycristallin d'épaisseur variant de 2 nm à 106 nm. Le trait noir en pointillé montre la limite de détection.

Pour déterminer la limite de détection (figure 3-3), nous avons évalué le seuil de décision à partir du bruit de fond [Cassette 2004, Panza 2012]. Le seuil de décision est le seuil pour lequel il est possible d'assurer qu'un pic est présent sur le spectre de masse et ne correspond pas au bruit de fond. La limite de détection est égale à deux fois le seuil de décision [Millies-Lacroix 1994]. Pour l'épaisseur de 2 nm, compte tenu de la limite de détection, les agrégats de taille supérieure à  $n = 5$  ne peuvent pas être observés. En ce qui concerne les épaisseurs les plus importantes, 30 et 106 nm, les agrégats de taille  $n > 9$  devraient être détectés. Cela signifie que le temps d'acquisition ne doit pas être suffisant. Cette hypothèse est confirmée par Hijazi et collaborateurs [Hijazi 2011c]. Ils ont observé des agrégats de taille maximale  $n = 40$  pour des cibles de LiF polycristallin de 100 nm d'épaisseur.

Quelque soit l'épaisseur de la cible, les rendements des agrégats diminuent en fonction de leur taille. Des résultats similaires ont été obtenus par Hijazi et collaborateurs [Hijazi 2011c]. Les rendements, caractéristiques d'un agrégat, augmentent aussi en fonction de l'épaisseur de la cible.

L'émission d'agrégats est décrite, dans la littérature, par plusieurs modèles :

- Les modèles "collectifs" d'éjection : modèle de pulvérisation par onde de choc [Bitensky 1987] et transition thermodynamique de phase liquide-gaz [Urbassek 1988]. Ils décrivent l'émission d'agrégats par une loi de puissance  $Y(n) \sim n^{-\delta}$ , avec  $\delta = 2$  (pulvérisation par onde de choc) et  $\delta = 7/3$  (transition thermodynamique de phase liquide-gaz).
- Les modèles statistiques (agrégation des atomes au cours du processus d'éjection) prédisent une dépendance en exponentielle de  $Y(n)$  en fonction de la taille de l'agrégat [Können 1974, Gerhard 1975]. Il existe cependant d'autres distributions statistiques telles que la fonction lognormale et la distribution gaussienne [Espiau de Lamaestre 2006].

Les données expérimentales, correspondantes aux grandes épaisseurs (30 et 106 nm), sont ajustées par une loi de la forme  $Y(n) \sim n^{-\delta}$  (modèles "collectifs" d'éjection) et par la fonction  $Y(n) = Y_F e^{-K_F n} + Y_S e^{-K_S n}$  (modèles statistiques) (figure 3-4).

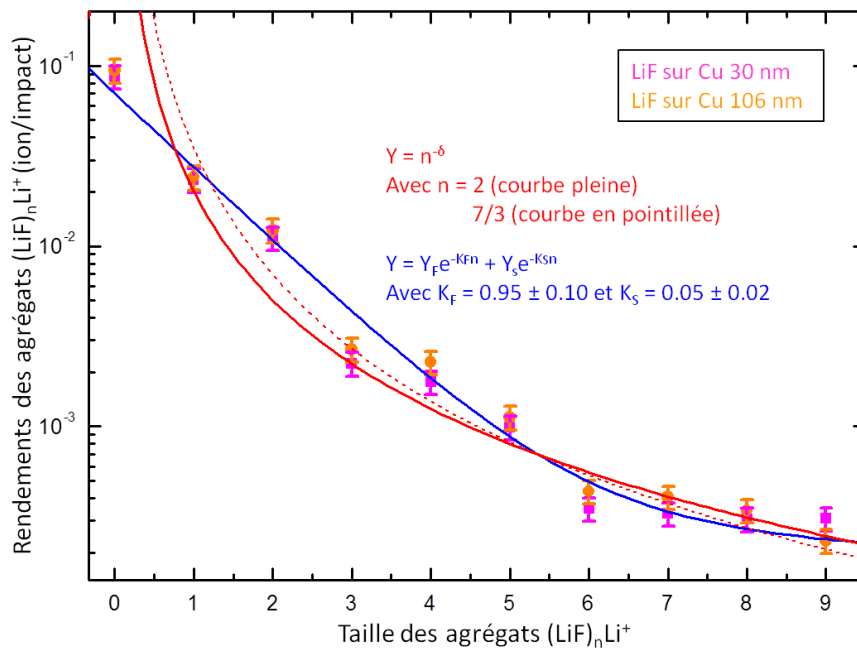


Figure 3-4 : Rendement des agrégats  $(LiF)_n Li^+$  en fonction de leur taille pour le système de collision  $Ge^{28+}$  (690 MeV) sur du LiF polycristallin d'épaisseur 30 nm (rose) et 106 nm (orange). Les données expérimentales sont ajustées par une loi de la forme  $Y(n) \sim n^{-\delta}$  (modèles "collectifs" d'éjection) et par la fonction  $Y(n) = Y_F e^{-K_F n} + Y_S e^{-K_S n}$  (modèles statistiques).

Les distributions de  $Y(n)$  ne peuvent pas être décrites par une loi de la forme  $Y(n) \sim n^{-\delta}$  (figure 3-4, courbes rouges). Elles sont bien ajustées par la fonction  $Y(n) = Y_F e^{-K_F n} + Y_S e^{-K_S n}$  (figure 3-4, courbe bleue). Chaque exponentielle correspond aux deux régimes d'émission d'agrégats :

- Le premier régime, caractéristique des petits agrégats ( $n < 6$ ), forte pente.
- Le deuxième régime, caractéristique des gros agrégats ( $n \geq 6$ ), faible pente.

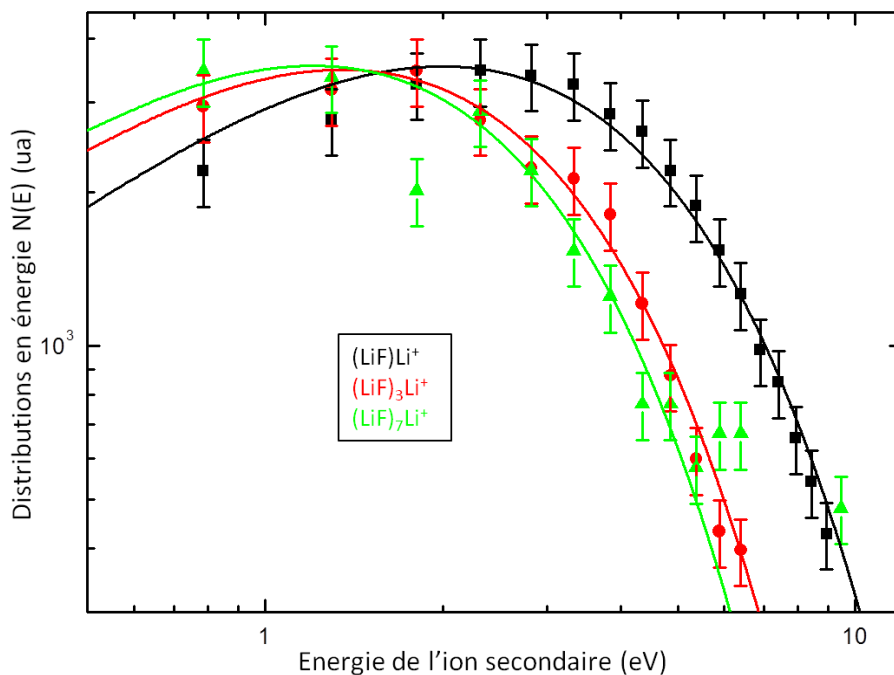
Les modèles statistiques décrivent la formation des agrégats par agrégation. Dans le premier régime, les agrégats sont formés à partir du monomère. En ce qui concerne le second régime, ils sont produits à partir des petits agrégats déjà formés [Hijazi 2011c]. Ce phénomène d'agrégation suppose que le matériau soit à l'équilibre thermodynamique.

Les coefficients  $K_F$  et  $K_S$  sont similaires pour des cibles monocristallines et polycristallines [Hijazi 2011a]. Les régimes de formation des agrégats ne dépendent pas de la structure du matériau.

Hijazi et collaborateurs ont montré l'existence d'un seuil du pouvoir d'arrêt électronique pour l'émission des gros agrégats ( $n \geq 6$ ) à environ  $S_e \sim 5 \text{ keV nm}^{-1}$  [Hijazi 2014a]. Afin de produire les gros agrégats, deux conditions sont nécessaires : le nombre d'atomes disponibles et l'énergie fournie au système doivent être suffisants.

### 3 - Distributions en énergie

a) En fonction de la taille de l'agrégat



**Figure 3-5 : Distributions en énergie des agrégats  $(LiF)_nLi^+$  ( $n = 1, 3, 7$ ) pour le système de collision  $Ge^{28+}$  (690 MeV) sur une cible de LiF polycristallin (épaisseur de 106 nm). Les données expérimentales sont ajustées par une distribution de Maxwell-Boltzmann.**

A partir des positions X, Y et du temps de vol TOF, les distributions en énergie de chaque espèce ionique peuvent être déterminées (se référer au chapitre 2, paragraphe F-5).

La figure 3-5 présente les distributions en énergie des agrégats  $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$  ( $n = 1$  le plus abondant,  $n = 3$  caractéristique du premier régime,  $n = 7$  caractéristique du second régime) pour le système de collision  $\text{Ge}^{28+}$  (690 MeV) sur une cible de LiF polycristallin (106 nm d'épaisseur). Les distributions sont normalisées sur la même amplitude.

Quelque soit l'agrégat étudié, les distributions en énergie présentent des formes comparables.

Les distributions en énergie possèdent chacune un maximum. En ce qui concerne l'agrégat  $(\text{LiF})\text{Li}^+$ , son maximum est à  $2.3 \pm 0.2$  eV. Pour l'agrégat  $(\text{LiF})_7\text{Li}^+$ , il est à  $0.8 \pm 0.1$  eV. L'énergie  $E(N_{\text{max}})$  correspondant au maximum  $N_{\text{max}}$  de la distribution diminue avec la taille de l'agrégat.

Il a été démontré que les distributions en énergie, dans le domaine de la pulvérisation électronique, peuvent être bien approximées par une distribution de Maxwell-Boltzmann de la forme [Thompson 1987, Hijazi 2012] :

$$N(E) = AE e^{-\beta E} \quad (3-4)$$

avec A l'amplitude.

E l'énergie et  $\beta = \frac{1}{k_B T}$ .

$k_B$  étant la constante de Maxwell-Boltzmann.

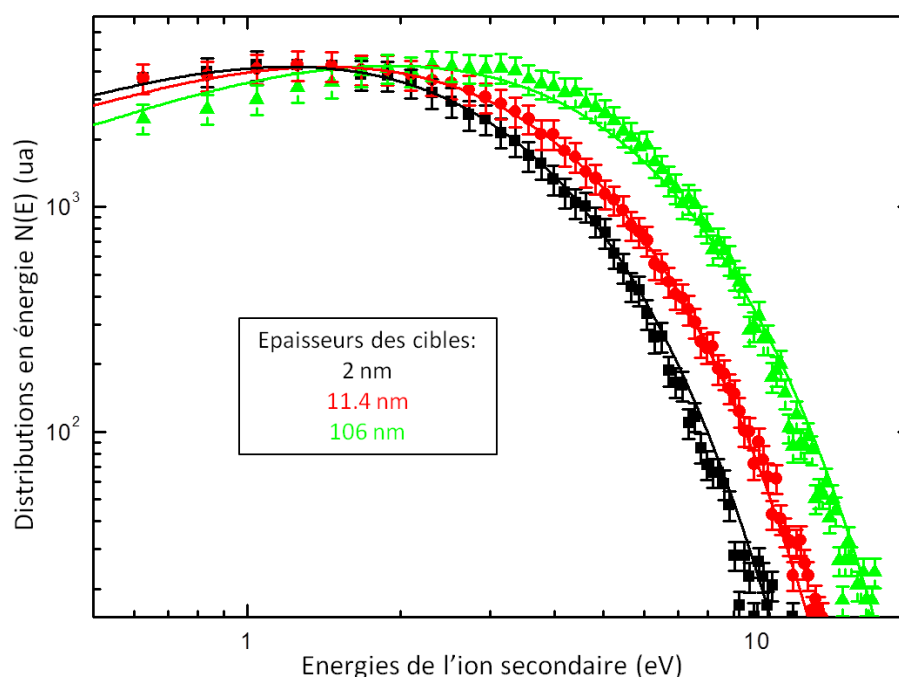
L'approximation par une distribution de Maxwell-Boltzmann peut signifier que le processus générant la pulvérisation est d'origine thermique. Le long de son passage dans la cible, le faisceau d'ion doit créer une zone chaude, excitée, comparable à un plasma [Costa 1927]. A partir de ces distributions de Maxwell-Boltzmann, il est possible de déduire les "températures" des ions secondaires (figure 3-5) :

- $T_{(\text{LiF})\text{Li}^+} = 22300 \pm 4500$  K
- $T_{(\text{LiF})_3\text{Li}^+} = 15700 \pm 3100$  K
- $T_{(\text{LiF})_7\text{Li}^+} = 14000 \pm 2800$  K

Ces valeurs ne sont pas des "températures" comme définies par la physique statistique, qui ne sont valables que pour un nombre infini de particules, et thermodynamiquement à l'équilibre. Quelque soit la taille de l'agrégat, les "températures" obtenues sont supérieures aux températures d'ébullition  $T_{\text{LiF ébullition}} \approx 1949$  K et de sublimation  $T_{\text{LiF sublimation}} \approx 1980$  K du LiF [Hijazi 2012].

b) En fonction de l'épaisseur de la cible

Dans ce paragraphe, nous nous intéresserons à l'effet de l'épaisseur de la cible sur les distributions en énergie. La figure 3-6 montre les distributions en énergie du premier agrégat (LiF)Li<sup>+</sup> pour des épaisseurs de cible de LiF de 2, 11.4 et 106 nm.



**Figure 3-6 : Distributions en énergie des agrégats (LiF)Li<sup>+</sup> pour des cibles d'épaisseurs 2, 11.4 et 106 nm irradiées par des faisceaux de Ge<sup>28+</sup> (690 MeV) (2 et 106 nm) et de Ni<sup>24+</sup> (630 MeV) (11.4 nm). Les données expérimentales sont "ajustées" par une distribution de Maxwell-Boltzmann.**

L'énergie  $E(N_{\max})$  correspondant au maximum  $N_{\max}$  de la distribution en énergie, pour une cible de 106 nm d'épaisseur, est  $2.3 \pm 0.2$  eV. En ce qui concerne l'épaisseur la plus faible, 2 nm, l'énergie est égale à  $1 \pm 0.1$  eV. Les énergies  $E(N_{\max})$  augmentent donc avec l'épaisseur de la cible.

Les "températures" déduites des distributions de Maxwell-Boltzmann sont :

- $T_{106 \text{ nm}} = 22300 \pm 4500$  K
- $T_{11.4 \text{ nm}} = 16600 \pm 3300$  K
- $T_{2 \text{ nm}} = 14000 \pm 2800$  K

Les résultats obtenus reflètent l'augmentation de l'énergie perdue, qui est proportionnelle à l'épaisseur de la cible.

## B - Effets des ions lents sur des cibles de LiF monocristallin

### 1 - Distributions en masse

Des cibles de LiF monocristallin ont été irradiées par des faisceaux d'ions "lents" multichargés sur ARIBE (pression  $\approx 2 \times 10^{-8}$  mbar). Les principales caractéristiques des projectiles utilisés sont décrites dans les tableaux 3-2 et 3-3.

Faisceaux	$E_c$ (keV)	$E_p$ (keV) [Dreebit 2008]	$S_e$ (keV/nm) [Ziegler 1985]	$S_n$ (keV/nm) [Ziegler 1985]	Profondeur de pénétration ( $\mu\text{m}$ ) [Ziegler 1985]
Xe <sup>15+</sup>	225	2	0.41	2.6	0.08
Xe <sup>20+</sup>	300	5	0.43	2.5	0.11
Xe <sup>25+</sup>	300	8	0.43	2.5	0.11
Xe <sup>25+</sup>	375	8	0.46	2.4	0.13
Xe <sup>26+</sup>	390	10	0.48	2.4	0.14

Tableau 3-2 : Caractéristiques des ions projectiles utilisées sur les lignes d'ARIBE (GANIL, Caen).

Faisceaux	Angle d'incidence (degré) par rapport à la normale à la surface	Tension d'extraction (V) (spectromètre à une grille, à deux grilles)
Xe <sup>15+</sup>	35°, 40°, 41°, 43°, 47°, 55°, 58°, 60°	50, 100, 150, 200, 300, 400, 500, 2000
Xe <sup>20+</sup>	41°, 55°	200
Xe <sup>25+</sup>	37°, 40°, 45°, 51°, 55°	200
Xe <sup>26+</sup>	35°	2000, 3000

Tableau 3-3 : Angles d'incidences et tensions d'extractions utilisés avec les ions projectiles utilisés sur les lignes d'ARIBE (GANIL, Caen).

Le pouvoir d'arrêt "nucléaire" pour les différents systèmes de collision est environ 5 à 6 fois plus important que le pouvoir d'arrêt électronique. Le pouvoir d'arrêt "nucléaire" contribue majoritairement à la pulvérisation, mais l'énergie potentielle [Aumayr 2003, Haranger 2007] et le pouvoir d'arrêt électronique peuvent apporter des contributions non négligeables.



La figure 3-7 présente un spectre de masses des ions positifs pulvérisés pour le système de collision  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur une cible de LiF monocristallin.

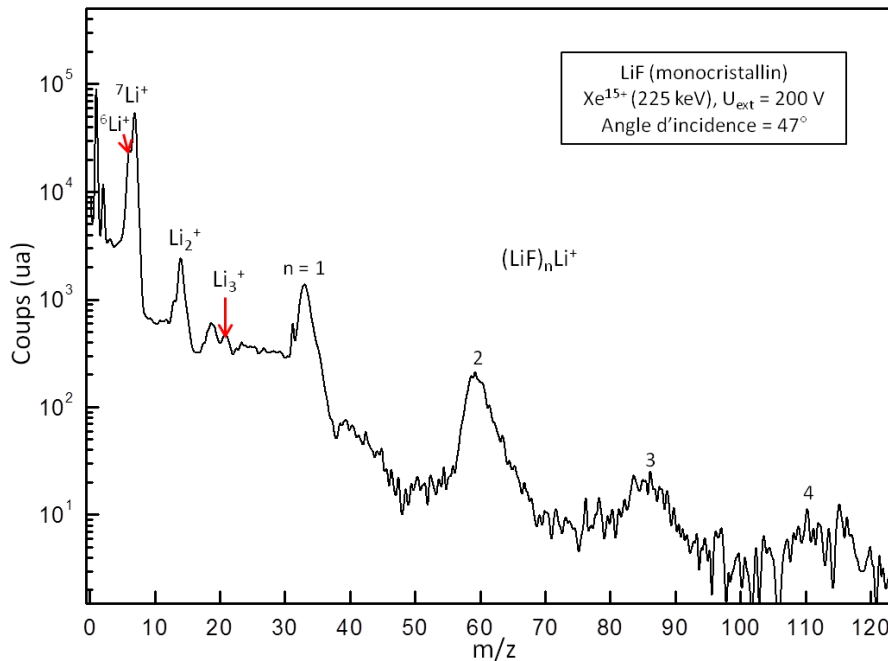


Figure 3-7 : Spectre de masses pour le système de collision  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur une cible de LiF (pression  $\approx 2 \times 10^{-8}$  mbar), avec une tension d'extraction de 200 V et un angle d'incidence de 47° par rapport à la normale à la surface.

Les pics correspondant aux masses 6 et 7 sont attribués aux deux isotopes du  $\text{Li}^+$  :  $^6\text{Li}^+$  et  $^7\text{Li}^+$ . Deux séries d'agrégats sont observées :  $\text{Li}_m^+$  ( $m = 2-3$ ) et  $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$  ( $n = 1-4$ ). Contrairement aux expériences de haute énergie, où 68 % des particules pulvérisées sont des agrégats, la contribution des agrégats n'est seulement que de 30 % avec les ions de basses énergies. Ces résultats démontrent que l'émission des agrégats dépend du régime du pouvoir d'arrêt. Les pollutions surfaciques ( $\text{C}_n\text{H}_n^+$ ) ne sont pas observables sur ces spectres.

## 2 - Evolution des rendements en fonction de la taille des agrégats

À partir des spectres de masses obtenus par temps de vol, le rendement total de chaque ion émis par projectile incident peut être déterminé. Le calcul des rendements est réalisé à l'aide de la formule 3-1.

Pour déterminer le nombre de projectiles par seconde, il faut tenir compte de plusieurs paramètres liés à la pulsation (figure 2-17). La formule 3-5 présente le calcul du nombre de projectiles par seconde :

$$\text{nombre de projectiles/s} = \frac{2 \times \text{nombre de projectiles dans un paquet}}{\text{période de l'impulsion}} \quad (3-5)$$

Avant d'entrer en collision avec la cible, le faisceau d'ions projectile passe à travers une grille, placée 1 cm avant la cible (se référer à la figure 2-10 présente dans le chapitre 2). En fonction de l'angle, une partie du faisceau est arrêtée par la grille. Lors du calcul des rendements, un facteur de correction dépendant de l'angle d'incidence du faisceau a donc été appliqué. Pour un angle d'incidence compris entre 40° et 60°, le facteur de correction sur le nombre de projectile/s varie de 0.5 à 0.77.

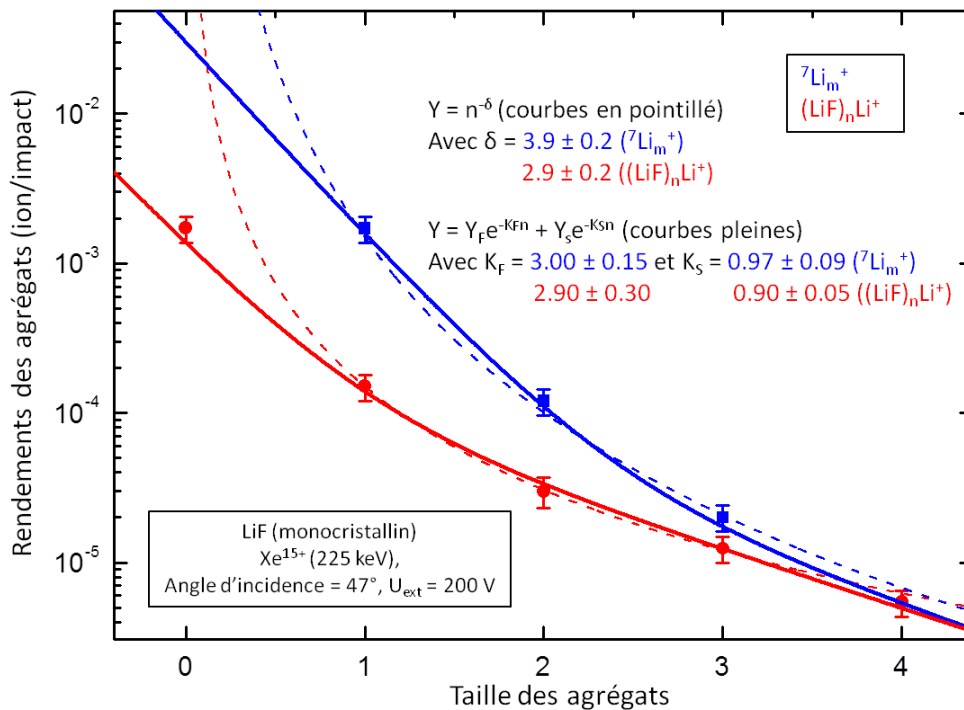


Figure 3-8 : Rendements des agrégats  ${}^7\text{Li}_m^+$  et  $(\text{LiF})_n \text{Li}^+$  en fonction de leur taille pour le système de collision  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur une cible de LiF (tension d'extraction = 200 V, angle d'incidence = 47°). Les données expérimentales sont ajustées par une fonction de la forme  $Y(n) = Y_F e^{-K_F n} + Y_S e^{-K_S n}$  (modèles statistiques, courbes pleines) et une loi de la forme  $Y(n) \sim n^{-\delta}$  (modèles "collectifs" d'éjection, courbes en pointillé).

La figure 3-8 montre la distribution des rendements des agrégats  $\text{Li}_m^+$  et  $(\text{LiF})_n \text{Li}^+$  en fonction de leur taille pour le système de collision  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur une cible de LiF monocristallin (tension d'extraction = 200 V, angle d'incidence = 47°). L'incertitude sur les rendements est de l'ordre de 25 %.

Quelque soit la série  $\text{Li}_m^+$  ou  $(\text{LiF})_n \text{Li}^+$ , le rendement des agrégats diminue en fonction de leur taille. Les données expérimentales peuvent être bien "ajustées" par la fonction  $Y(n) = Y_F e^{-K_F n} + Y_S e^{-K_S n}$  (modèles statistiques) [Können 1974, Gerhard 1975] et par une loi de la forme  $Y(n) \sim n^{-\delta}$  (modèles "collectifs" d'éjection) (à l'exception de  $n = 0$ ) [Bitensky 1987, Urbassek 1988] (figure 3-8). Cette anomalie à  $n = 0$  a déjà été observée, dans le régime du pouvoir d'arrêt nucléaire, pour des cibles d' $\text{UO}_2$  [Boudjadar 2005]. Dans le domaine du pouvoir d'arrêt nucléaire, la loi  $Y(n) \sim n^{-\delta}$  a été exposée comme la meilleure pour décrire la dépendance de la taille de l'agrégat pour des cibles telles que  $\text{UO}_2$ , Ag et Al [Wucher 1996, Boudjadar 2005, Wucher 2006]. Pour nos expériences, nous ne sommes pas en mesure de décider lequel des deux modèles est le plus adapté pour décrire la dépendance de la taille de l'agrégat.

Winter et collaborateurs ont étudié la pulvérisation des neutres issus de cibles de LiF, dans le domaine du pouvoir d'arrêt nucléaire [Winter 2000]. Ils obtiennent, pour un faisceau de Xe<sup>14+</sup> à 300 keV, un rendement de neutres  $Y_{neutres}$  égal à 30 LiF par impact. Le rendement total des ions positifs  $Y_{ions}$ , dans le cas d'un faisceau de Xe<sup>15+</sup> à 225 keV, est de l'ordre de  $2.5 \times 10^{-3}$  ions par impact. Pour des faisceaux de charge et d'énergie équivalents à 25 % près, il est possible de déterminer la proportion de neutres par rapport aux ions. Elle est ainsi égale à :

$$\frac{Y_{neutres}}{Y_{ions}} = 10^4 \quad (3-6)$$

Dans le domaine du pouvoir d'arrêt électronique, il a été démontré que le rapport neutre/ion, pour une cible de LiF, est égal à  $10^6$ . Selon le domaine, nucléaire ou électronique, la proportion entre les neutres et les ions est donc différente.

### 3 - Effets de la charge et de l'énergie cinétique sur les rendements

Dans ce paragraphe, nous décrivons l'effet de la charge et de l'énergie cinétique sur les rendements. Les rendements du monomère <sup>7</sup>Li<sup>+</sup> pour les systèmes de collisions Xe<sup>20+</sup> (300 keV), Xe<sup>25+</sup> (300 keV) et Xe<sup>25+</sup> (375 keV) sur une cible de LiF (tension d'extraction = 200 V, angle d'incidence = 55°) sont présentés dans le tableau 3-4.

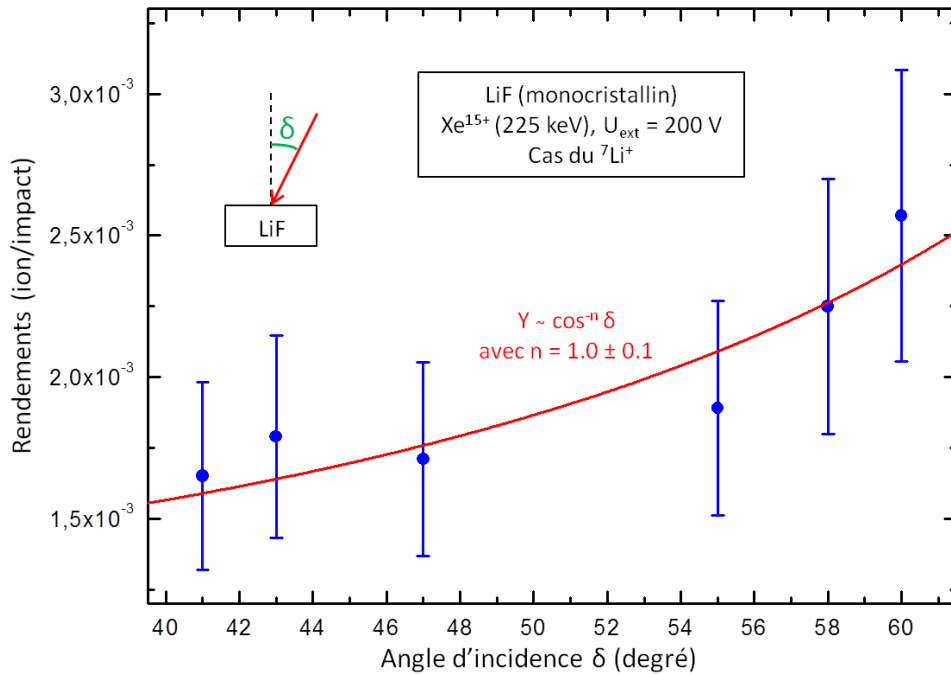
Faisceaux	Charge	E <sub>c</sub> (keV)	E <sub>p</sub> (keV)	Rendements (ion/impact)
Xe	20	300	5	$1.73 \times 10^{-5} \pm 0.43 \times 10^{-5}$
Xe	25	300	8	$5.62 \times 10^{-5} \pm 1.41 \times 10^{-5}$
Xe	25	375	8	$6.63 \times 10^{-5} \pm 1.66 \times 10^{-5}$

Tableau 3-4 : Rendements de Li<sup>+</sup> pour trois faisceaux Xe<sup>20+</sup> (300 keV), Xe<sup>25+</sup> (300 keV) et Xe<sup>25+</sup> (375 keV) sur une cible de LiF (tension d'extraction = 200 V, angle d'incidence = 55°).

Les rendements du monomère <sup>7</sup>Li<sup>+</sup>, pour des faisceaux de même masse et de même vitesse, augmentent avec la charge du projectile. Des résultats similaires ont déjà été observés avec des ions lents multichargés pour les rendements des neutres, avec des cibles de LiF, SiO<sub>2</sub> et UO<sub>2</sub> [Sporn 1997, Aumayr 2003, Haranger 2003]. Pour des ions de même masse et de même charge, les rendements semblent augmenter en fonction de l'énergie cinétique des faisceaux, aux incertitudes expérimentales près. Quelques expériences ont déjà démontré cette évolution pour des matériaux comme le LiF et les glaces d'eau [Neidhart 1995, Aumayr 1999, Baragiola 2003].

## 4 - Rendements du monomère $\text{Li}^+$ en fonction de l'angle d'incidence $\delta$

La figure 3-9 présente l'évolution des rendements du monomère  ${}^7\text{Li}^+$  en fonction de l'angle  $\delta$  du projectile (l'angle d'incidence par rapport à la normale à la surface) pour le système de collision  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur une cible de LiF monocristallin (tension d'extraction = 200 V). L'angle  $\delta$  varie de  $41^\circ$  à  $60^\circ$ .



**Figure 3-9 :** Rendements de  $\text{Li}^+$  en fonction de l'angle d'incidence pour le système de collision  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur une cible de LiF (tension d'extraction = 200 V). Les données expérimentales sont ajustées par une loi de la forme  $Y(\delta) \sim \cos^{-n} \delta$  (courbe rouge).

Les rendements  $Y$  augmentent avec l'angle d'incidence  $\delta$  suivant une loi de la forme :

$$Y(\delta) = Y(\delta = 0)(\cos \delta)^{-n} \text{ avec } n = 1.0 \pm 0.1 \quad (3-7)$$

Nos résultats sont en accord avec les différentes études réalisées. Ces études, théoriques et expérimentales, décrivent une dépendance des rendements en  $(\cos \delta)^{-n}$  avec  $1 < n < 2$  dans les régimes du pouvoir d'arrêt nucléaire et électronique [Aoyama 1996, Assmann 2007, Wei 2008, Hijazi 2011a, Johnson 2013]. Ces résultats ont été obtenus pour différents matériaux comme le LiF et les glaces d'eau.

Lorsqu'un ion pénètre dans le matériau avec une incidence différente de la normale, il parcourt une distance plus grande sous la surface. En faisant l'hypothèse que la profondeur d'échappement est constante, le dépôt d'énergie par unité de profondeur devient de plus en plus important avec l'augmentation de l'angle d'incidence. La distribution  $Y(\delta)$  est alors proportionnelle à  $\cos^{-1} \delta$ .

## 5 - Distributions en énergie

La figure 3-10 montre la distribution en énergie du monomère  ${}^7\text{Li}^+$  pour le système de collision  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur une cible de LiF monocristallin.

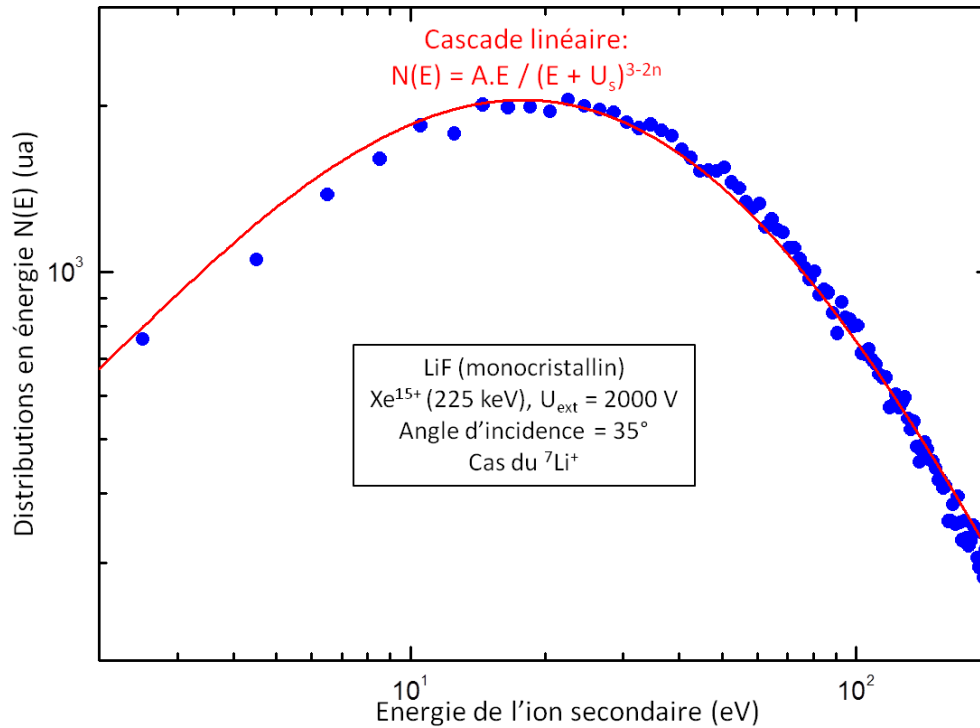


Figure 3-10 : Distributions en énergie du monomère  ${}^7\text{Li}^+$  pour les systèmes de collision  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur une cible de LiF monocristallin. Les données expérimentales sont "ajustées" par le modèle de la cascade linéaire.

Cette distribution en énergie peut être bien reproduite par le modèle de la cascade linéaire développé par P. Sigmund [Sigmund 1969], de la forme :

$$N(E) = \frac{AE}{(E+U_S)^{3-2m}} \quad (3-8)$$

Il a été démontré que les données expérimentales des neutres éjectés de cibles d'aluminium, d'argent et de calcium sont bien décrites par le modèle de la cascade linéaire [Husinsky 1993, Wahl 1994, Hansen 1998]. Dans ce domaine d'énergie, il est remarquable de constater que les distributions en énergie des neutres et des ions possèdent des comportements similaires.

L'énergie du maximum de la distribution est égale à  $22 \pm 18$  eV. Dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique, les énergies sont de l'ordre de quelques eV.

## C - Effets des ions lents sur des glaces d'intérêt astrophysique : H<sub>2</sub>O

### 1 - Distributions en masse

La planète Jupiter est entourée de lunes glacées (Europa, Ganymède, Io et Callisto). Ces lunes constituent l'objectif de la prochaine grande mission scientifique JUICE ("Jupiter ICy moons Explorer") de l'agence spatiale européenne ("ESA"). Ces lunes sont essentiellement couvertes de glace d'eau mais elles contiennent aussi des molécules simples comme le dioxyde de carbone, le dioxyde de soufre ou l'acide sulfurique [Palumbo 2008a, Lv 2012]. Elles subissent les effets des particules présentes dans la magnétosphère de Jupiter. La magnétosphère est constituée principalement d'ions issus du vent solaire et de l'injection de soufre ou de carbone par volcanisme provenant notamment de la lune Io [Johnson 1992]. Suite au dépôt d'énergie des particules incidentes, les surfaces des lunes sont altérées chimiquement (radiolyse) et physiquement par la production de défauts et par l'éjection d'atomes et de molécules (pulvérisation). Les particules éjectées peuvent ainsi contribuer à la création d'une atmosphère, et à l'enrichissement de la magnétosphère de Jupiter. Nous avons simulé en laboratoire l'interaction des ions lents avec des glaces d'eau (température = 10 K). Les caractéristiques des faisceaux utilisés sont décrites dans le tableau 3-5.

Faisceaux	$E_c$ (keV)	$E_p$ (keV) [Dreebit 2008]	$S_c$ (keV/nm) [Ziegler 1985]	$S_n$ (keV/nm) [Ziegler 1985]	Profondeur de pénétration ( $\mu\text{m}$ ) [Ziegler 1985]
Xe <sup>15+</sup>	225	2.2	0.22	1.16	0.2
O <sup>6+</sup>	90	0.4	0.13	0.06	0.4

Tableau 3-5 : Caractéristiques des ions projectiles utilisés sur les lignes d'ARIBE (GANIL, Caen).

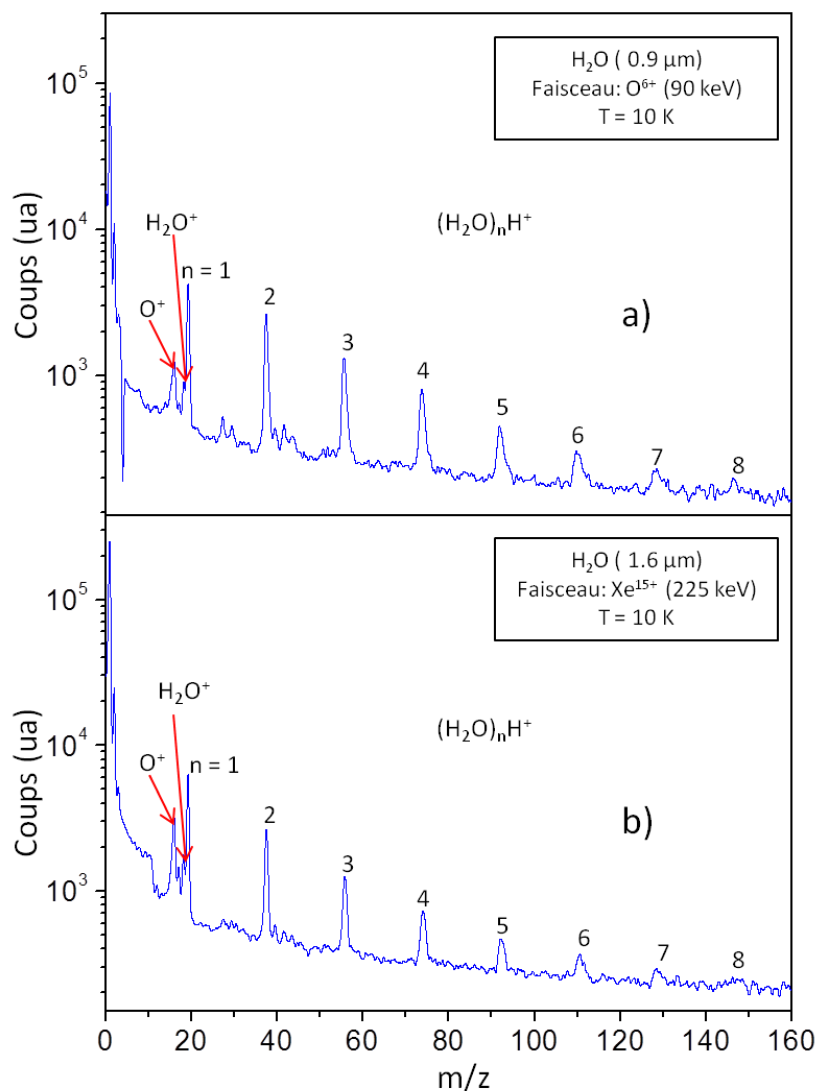


Figure 3-11 : Spectres de masses des ions positifs éjectés de glaces d'eau ( $T = 10$  K) irradiée par un faisceau a) d' $O^{6+}$  (90 keV) et b) de  $Xe^{15+}$  (225 keV).

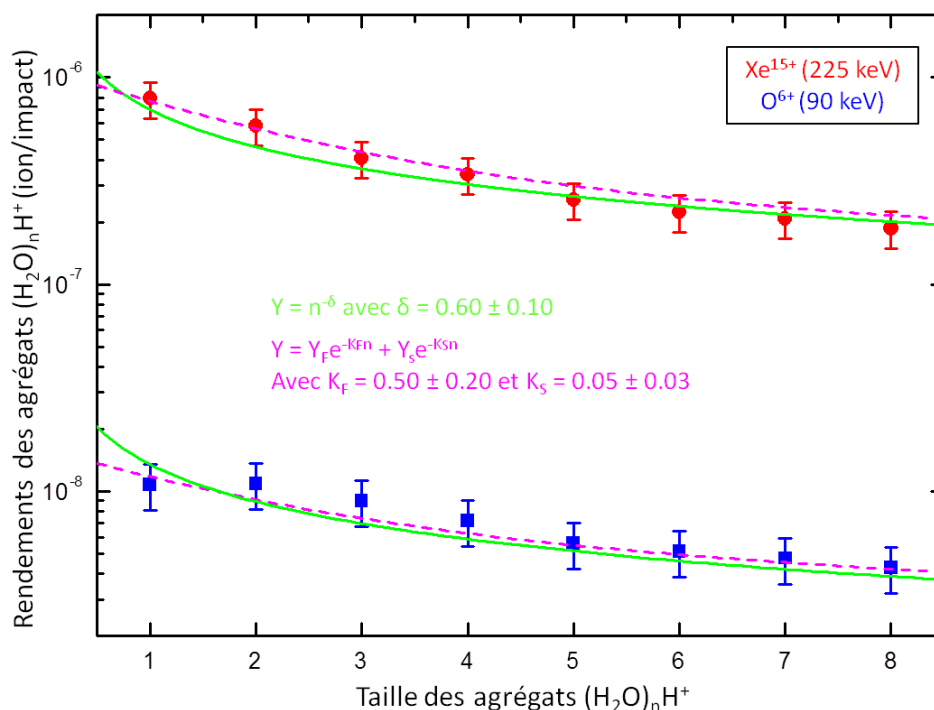
La figure 3-11 présente les spectres de masses des ions secondaires positifs issus de cibles de  $H_2O$ , à une température de 10 K, irradiées par des faisceaux a) d' $O^{6+}$  (90 keV) et b) de  $Xe^{15+}$  (225 keV).

Les spectres de temps de vol sont caractérisés par la série d'agrégats  $(H_2O)_nH^+$ , avec  $1 \leq n \leq 8$ . Les pics associés aux masses 16 et 18 sont attribués à  $O^+$  et  $H_2O^+$ .

Les agrégats  $(H_2O)_nH^+$  représentent  $\sim 95$  % des particules pulvérisées. Cette série d'agrégats a déjà été observée dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique [Collado 2004]. Ils démontrent que  $\sim 90$  % des particules pulvérisées sont des agrégats. La majorité des particules pulvérisées dans le cas de la glace d'eau, dans le régime du pouvoir d'arrêt nucléaire ou électronique, sont des agrégats. Ce résultat est intéressant et surprenant compte tenu des résultats obtenus avec le LiF. Nous avons observé que les proportions des agrégats sont très différentes en fonction du régime de pouvoir d'arrêt pour le LiF.

## 2 - Evolution des rendements en fonction de la taille des agrégats

Les distributions en taille des agrégats  $(\text{H}_2\text{O})_n\text{H}^+$ , pour les systèmes de collision  $\text{O}^{6+}$  (90 keV) et  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur des glaces d'eau (température = 10 K), sont présentées sur la figure 3-12.



**Figure 3-12 : Rendements des agrégats  $(\text{H}_2\text{O})_n\text{H}^+$  en fonction de leur taille pour les systèmes de collision  $\text{O}^{6+}$  (90 keV) (données bleues) et  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) (données rouges) sur une cible d'eau à  $T = 10$  K (tension d'extraction = 500 V, angle d'incidence =  $45^\circ$ ). Les données expérimentales sont ajustées par une fonction de la forme  $Y(n) = Y_F e^{-K_F n} + Y_S e^{-K_S n}$  (modèles statistiques, courbe rose en pointillé) et par une loi de la forme  $Y(n) \sim n^{-\delta}$  (modèles "collectifs" d'éjection, courbe verte pleine).**

Les données expérimentales sont ajustées par une loi de la forme  $Y(n) \sim n^{-\delta}$  (modèles "collectifs" d'éjection) et par la fonction  $Y(n) = Y_F e^{-K_F n} + Y_S e^{-K_S n}$  (modèles statistiques) (figure 3-12).

Les données expérimentales peuvent être bien "ajustées" par une loi de la forme  $Y(n) \sim n^{-\delta}$  et par la fonction  $Y(n) = Y_F e^{-K_F n} + Y_S e^{-K_S n}$  (figure 3-12). Comme dans le cas du LiF, nous ne pouvons pas décider lequel des deux modèles est le plus adapté pour décrire la dépendance de la taille de l'agrégat. Les coefficients  $\delta$ ,  $K_F$  et  $K_S$  sont similaires quelque soit le projectile. Dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique, Collado et collaborateurs [Collado 2004] obtiennent des coefficients  $K_F$  et  $K_S$  équivalents à nos résultats, aux incertitudes de mesure près. Cette observation est en opposition avec les résultats obtenus avec le LiF, où les coefficients sont différents selon le régime du pouvoir d'arrêt.



Baragiola et collaborateurs [Baragiola 2003] ont étudié la pulvérisation des neutres issus de cibles d'eau, irradiées par des ions lents. Ils déterminent, dans le cas d'un faisceau d' $O^+$  à 80 keV, que le rendement total des neutres  $Y_{neutres}$  est de l'ordre de 10 molécules par impact. Dans le cas d'un faisceau d' $O^{6+}$  à 90 keV, le rendement total  $Y_{ions}$  est égal à  $5 \times 10^{-7}$  ions positifs par impact. Pour des faisceaux d'énergie équivalente à 10 % près et en faisant l'hypothèse que l'effet de la charge est négligeable, nous pouvons en déduire la proportion neutre/ion. Elle est égale à :

$$\frac{Y_{neutres}}{Y_{ions}} = 2 \times 10^7 \quad (3-9)$$

Avec  $Y_{neutres}$  = rendement total des neutres [Baragiola 2003],  
 $Y_{ions}$  = rendement total des ions.

Il a été observé, dans le domaine du pouvoir d'arrêt électronique, que la proportion neutre/ion, pour la glace d'eau, est égale à  $10^3$ - $10^4$  [Collado 2004]. En fonction du régime du pouvoir d'arrêt, nucléaire ou électronique, comme pour le LiF, le rapport entre les neutres et les ions est différent.

### 3 - Contribution des ions de la magnétosphère de Jupiter à la pulvérisation

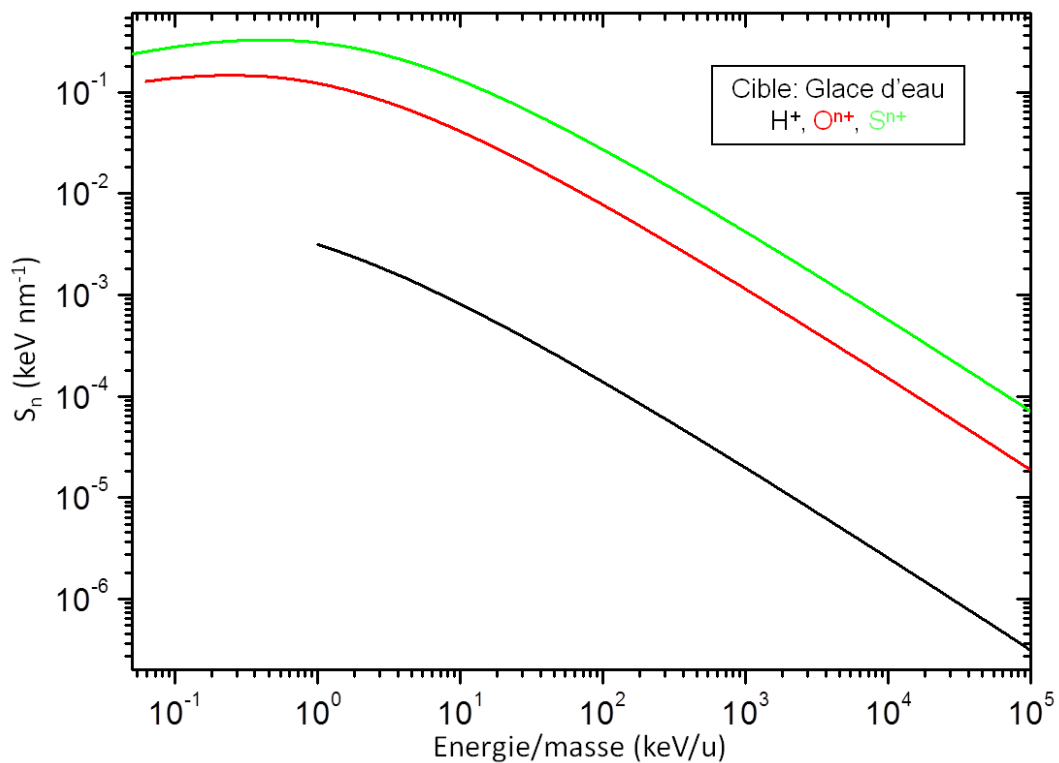


Figure 3-13 : Pouvoirs d'arrêt nucléaire  $S_n$  en fonction de  $E/m$  pour les différents ions présents dans la magnétosphère de Jupiter pour une glace d'eau [Ziegler 1985].

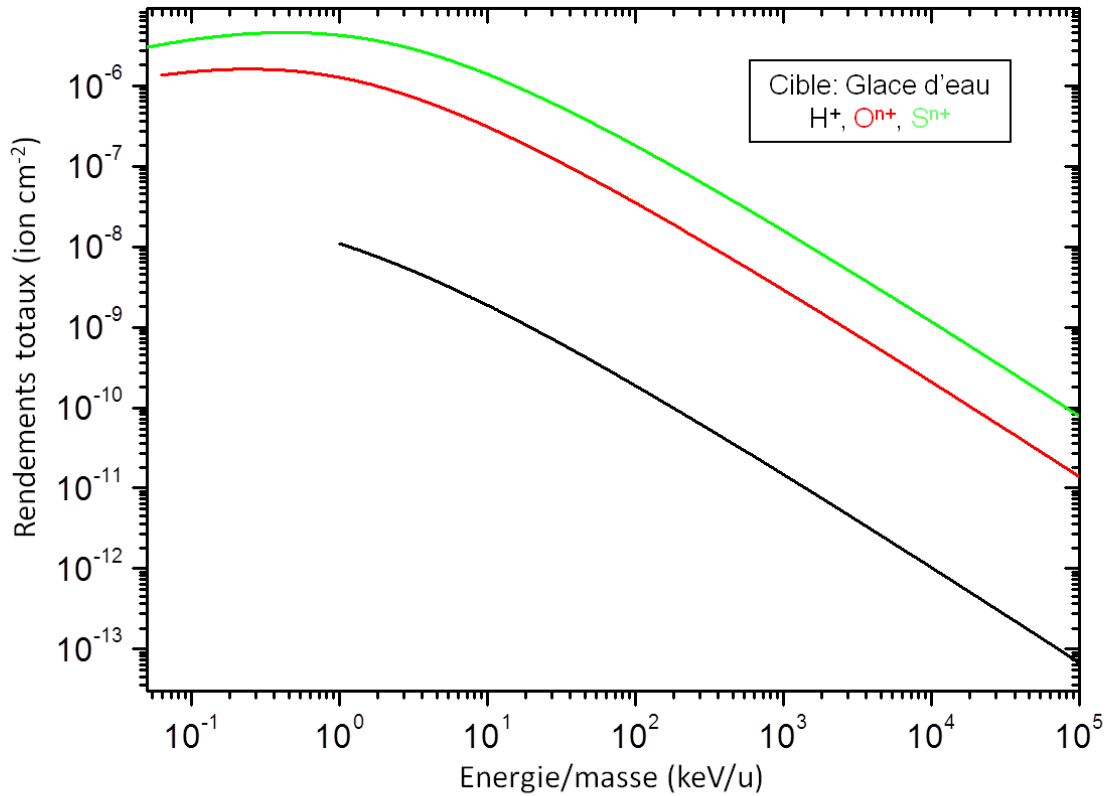


Figure 3-14 : Rendements de pulvérisation totaux des ions secondaires issus de l'interaction entre la glace d'eau et les différents ions constitutifs de la magnétosphère de Jupiter en fonction de  $E/m$ .

La surface d'Europa est bombardée en permanence par des ions  $H^+$ ,  $O^{n+}$  et  $S^{n+}$  issus de la magnétosphère de Jupiter [Cooper 2001]. Dans ce paragraphe, nous nous intéresserons à la contribution de chaque espèce ionique sur la pulvérisation.

Les rendements des ions secondaires, pour la cible d'eau, sont égaux, respectivement pour les faisceaux de xénon et d'oxygène, de pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique connus, à  $2.3 \times 10^{-5}$  et  $4.9 \times 10^{-7}$  ions/impact. À partir des rendements et des pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique, nous avons essayé de déterminer la loi régissant l'évolution de ces rendements en fonction de  $S_n$  et de  $S_e$ . Baragiola et collaborateurs [Baragiola 2003] ont proposé une relation du type  $Y = AS_n + BS_e + CS_e^2$ . Pour des ions multichargés de basse énergie, un terme supplémentaire de la forme  $DEp^n$  peut être ajouté. Par exemple, il a été montré que  $n = 0.7$  pour des cibles d'anorthite [Hijazi 2014b] et  $n = 1$  pour le LiF (se référer à la figure 1-4) [Neidhart 1995]. Compte tenu du faible nombre d'expériences, nous ne sommes pas en mesure de fitter tous les paramètres. Nous avons considéré en première approximation que les rendements dépendent seulement de  $S_n$ . Les rendements des ions varient ainsi en :

$$Y(\text{ion}/\text{impact}) = AS_n^{1.3} = 2 \times 10^{-5} S_n^{1.3} \quad (3-10)$$

Dans le régime de pulvérisation nucléaire, P. Sigmund prédit une dépendance linéaire des rendements en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire [Sigmund 1981b]. Nos résultats, aux incertitudes de mesure près, sont en accord avec le modèle de Sigmund. Les pouvoirs d'arrêt nucléaire  $S_n$ , fonction de l'énergie du projectile, sont calculés à l'aide du programme SRIM2013 [Ziegler 1985]. La figure 3-13 présente les pouvoirs d'arrêt nucléaire  $S_n$  en fonction de  $E/m$ , pour les différents ions présents dans la magnétosphère de Jupiter.

À l'aide de la formule 3-10, nous pouvons calculer les rendements en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire. Le programme SRIM2013 estime, en fonction de  $E/m$ , les pouvoirs d'arrêt nucléaire. Il est donc possible de déterminer les rendements en fonction de  $E/m$ . Les rendements sont présentés en fonction de  $E/m$  dans la figure 3-14.

Afin de déterminer les taux réels de pulvérisation des ions secondaires, il est nécessaire de connaître l'abondance des différents constituants de la magnétosphère. Les flux correspondants sont représentés en fonction de  $E/m$  dans la figure 3-15.

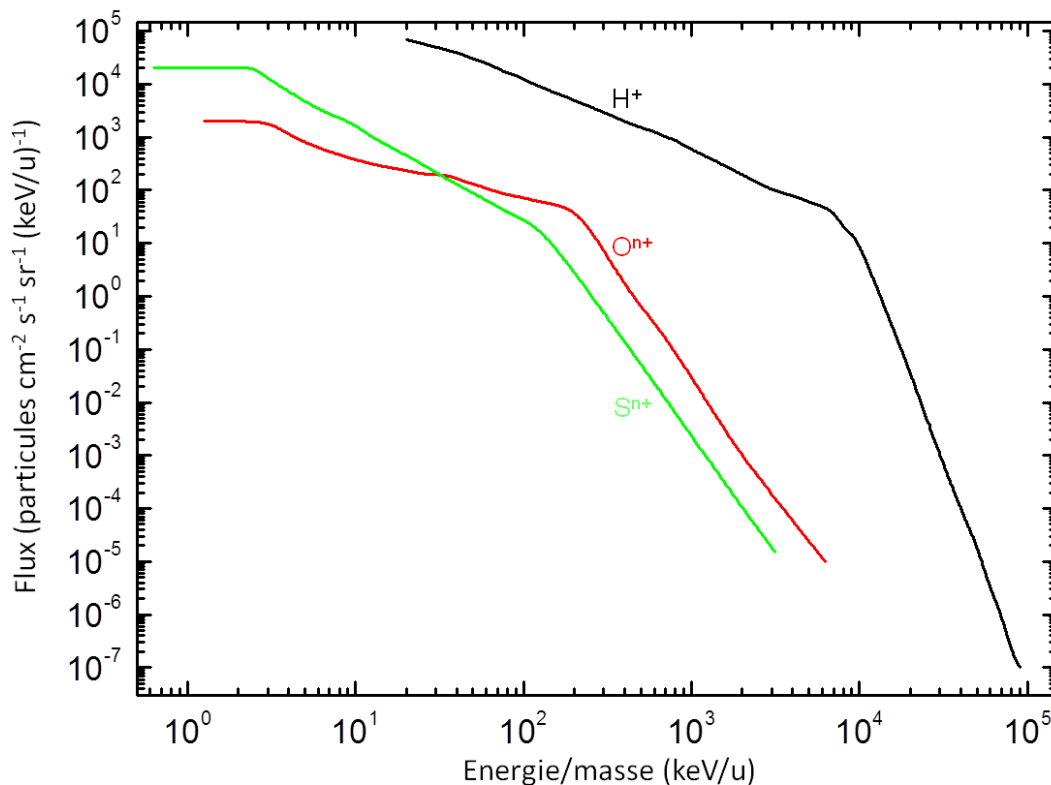


Figure 3-15 : Flux des principaux ions de la magnétosphère de Jupiter en fonction de  $E/m$  [Cooper 2001].

Les taux de pulvérisation sont égaux aux rendements multipliés par les flux. Ils sont calculés sur un intervalle d'énergie comprise entre 0.6 et 10<sup>5</sup> keV/u. Cet intervalle d'énergie correspond au domaine proposé par Cooper et collaborateurs [Cooper 2001].

La figure 3-16 présente les taux de pulvérisation des ions secondaires issus de l'irradiation de la glace d'eau par les ions de la magnétosphère de Jupiter. Dans la gamme d'énergie comprise entre 0.6 et 140 keV/u, la contribution du soufre à la pulvérisation est plus importante que celle attribuée à l'oxygène et au proton. Au delà de 140 keV/u, la contribution du proton est majoritaire. Le taux de pulvérisation total, associé au soufre, est 200 fois plus grand que le taux associé au proton. Bien qu'ils soient moins abondants, les effets des ions lourds sont plus importants que ceux des ions légers.

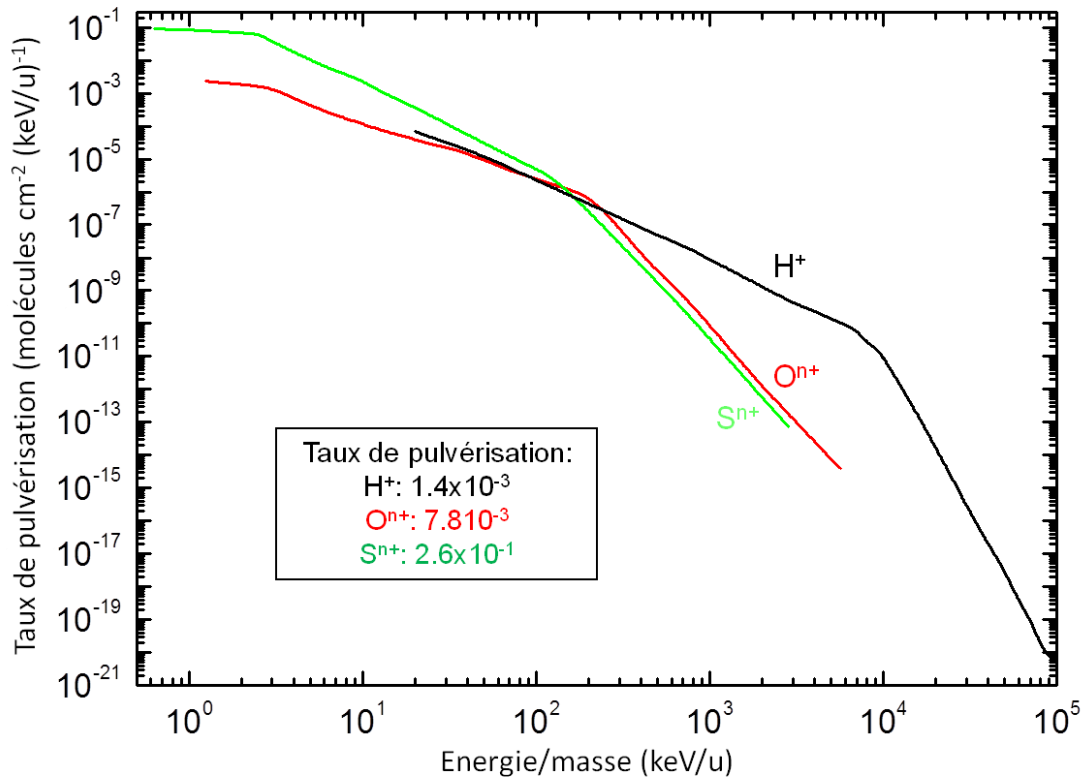


Figure 3-16 : Taux de pulvérisation des ions secondaires issus de l'irradiation de la glace d'eau par les ions de la magnétosphère de Jupiter en fonction de E/m.

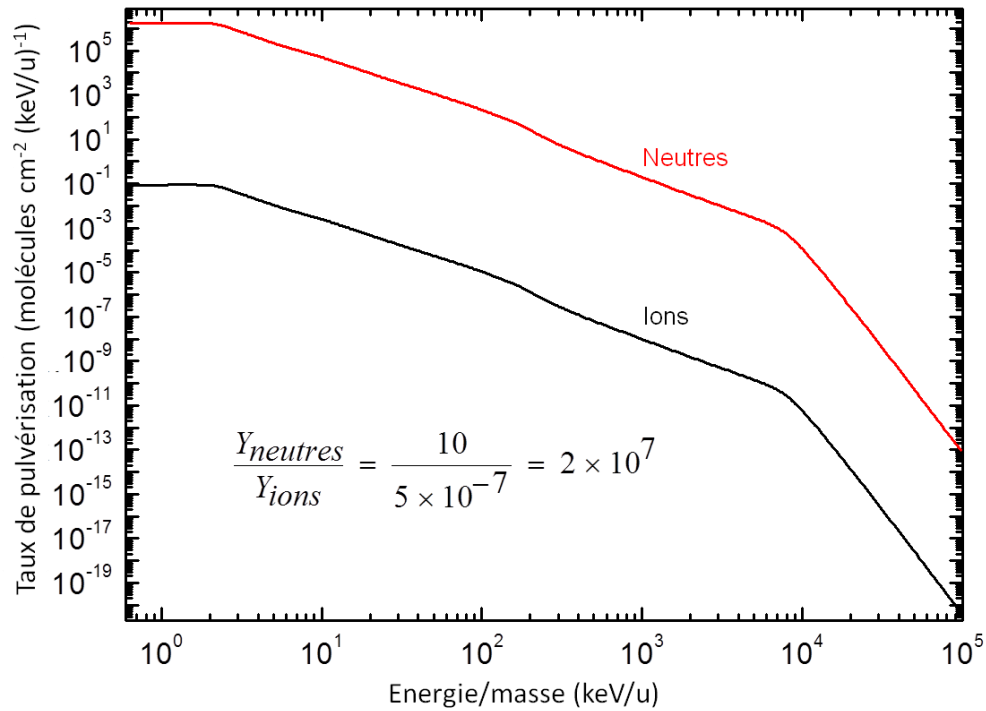


Figure 3-17 : Taux de pulvérisation totaux des ions et des neutres pour une glace d'eau (température = 10 K) irradiée par les ions de la magnétosphère de Jupiter en fonction de E/m.

Le taux de pulvérisation total des ions secondaires est obtenu en sommant toutes les contributions des ions constitutifs de la magnétosphère de Jupiter. Le taux total de neutres pulvérisés est  $2 \times 10^7$  fois plus important que celui des ions (formule 3-9). Ces taux de pulvérisation sont présentés dans la figure 3-17. En intégrant sur toute la gamme d'énergie, les taux de pulvérisation sont égaux à  $2.7 \times 10^{-1}$  ions cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> et  $5.4 \times 10^6$  neutres cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>. En considérant la surface totale d'Europa, environ  $1.7 \times 10^{24}$  neutres s<sup>-1</sup> sont éjectés. Plusieurs études ont été réalisées sur la pulvérisation des neutres issue de la surface d'Europa. Par exemple, Cassidy et collaborateurs [Cassidy 2013] ont calculé théoriquement un taux de pulvérisation de l'ordre de  $2 \times 10^{27}$  neutres s<sup>-1</sup>. Expérimentalement, nous avons obtenu un taux environ  $10^3$  fois plus petit que celui déterminé par Cassidy. Deux explications peuvent être envisagées :

- Nous avons supposé, en première approximation, que les rendements varient en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire. Il serait intéressant de réaliser de nouvelles expériences afin de déterminer : le rôle des différents processus (pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique, énergie potentielle) qui contribuent à la pulvérisation et la loi  $Y = AS_n + BS_e + CS_e^2 + DE_p^n$  [Neidhart 1995, Baragiola 2003, Hijazi 2014b].
- Nous avons fait l'hypothèse, dans le régime du pouvoir d'arrêt nucléaire, que l'évolution des rendements des neutres et des ions en fonction du pouvoir d'arrêt est la même. Nous ne sommes pas en mesure à l'heure actuelle, par l'intermédiaire de nos expériences et de la littérature, de valider ou non cette hypothèse.

Shi et collaborateurs [Shi 1995], par l'intermédiaire d'observations spatiales, corrélées à des simulations en laboratoire, ont démontré que les taux de pulvérisation, induits par les ions et les photons, sont de l'ordre de  $1 \text{ à } 5 \times 10^{28}$  molécules  $\text{s}^{-1}$ . Compte tenu de nos résultats, la contribution des ions à la pulvérisation semble minoritaire. La plus grande partie des particules pulvérisées pourrait provenir de l'irradiation par les photons.

## D - Bilan

A partir des différentes expériences réalisées, nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

- Quelque soit le régime de vitesse du projectile, une partie importante des particules pulvérisées est émise sous forme d'agrégats (30 % pour le LiF et 95 % pour la glace d'eau dans le régime du pouvoir d'arrêt nucléaire, 68 % pour le LiF dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique).
- Dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique, en ce qui concerne le LiF, deux régimes d'émission des agrégats ont été observés : un régime caractéristique des petits agrégats ( $n < 6$ , épaisseurs de 2 et 4 nm) et un second pour les gros agrégats ( $n \geq 6$ , épaisseur supérieure à 11.4 nm). Les mécanismes de création/formation des agrégats dépendent de deux paramètres : l'épaisseur de cible et le pouvoir d'arrêt électronique. Afin de produire les gros agrégats ( $n \geq 6$ ), une certaine quantité de matière est nécessaire. Ils commencent à se former à partir d'une épaisseur de cible de LiF de 11.4 nm. Pour obtenir les agrégats, il est aussi nécessaire de fournir au système une énergie suffisante, supérieure à  $5 \text{ keV nm}^{-1}$ . De plus, nous avons démontré que les distributions en énergie évoluent en fonction de la taille de l'éjecta et de l'épaisseur de la cible.
- Dans le régime du pouvoir d'arrêt nucléaire, les rendements des ions secondaires évoluent en fonction de la charge du projectile (énergie potentielle), de l'énergie cinétique et de l'angle d'incidence  $\delta$ . Les différents résultats obtenus avec le LiF et la glace d'eau (distribution en énergie, évolution des rendements en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire) permettent de valider le modèle de la cascade linéaire de P. Sigmund. Les neutres et les ions, en ce qui concerne les distributions en énergie, possèdent des comportements comparables.



# Chapitre 4

## Simulation en laboratoire des effets des ions lourds sur des silicates d'intérêt astrophysique



## Introduction

Les silicates sont présents dans de nombreux environnements du système solaire et du milieu interstellaire [Madey 2002, Shimoda 2005, Cecchi-Pestellini 2012]. En fonction du milieu, ils sont soumis à différents rayonnements tels que le vent solaire et les rayons cosmiques. Ces rayonnements induisent, en particulier, la pulvérisation de neutres et d'ions. La majorité des particules pulvérisées sont des neutres. Typiquement, le rapport entre les neutres et les particules chargées est de l'ordre de  $10^1$  à  $10^7$  (se référer au chapitre 3 et à [Collado 2004, Dukes 2011]). Dans certains cas relevant de l'astrophysique, il a été démontré que les rendements des ions sont du même ordre de grandeur que ceux des neutres [Dukes 2011], attestant l'intérêt d'étudier l'émission ionique secondaire.

Ce chapitre est dédié à la présentation et à l'analyse des résultats expérimentaux obtenus avec les silicates. Il se scinde en deux parties :

- Dans la première partie, nous nous intéresserons à l'effet des ions rapides, comme une simulation de l'interaction entre les rayons cosmiques et la surface des météorites. Nous présenterons les expériences réalisées à l'université catholique de Rio de Janeiro et sur la ligne SME du GANIL. Nous nous focaliserons sur les spectres de masses et les rendements.
- La deuxième partie de ce chapitre concernera l'effet des ions lents sur les silicates comme la néphéline, matériaux modèles des surfaces de Mercure. Nous nous intéresserons aux spectres de masses, aux rendements ainsi qu'aux distributions en énergie. Une procédure a été développée au CIMAP afin d'étudier l'évolution de la stœchiométrie de la surface en fonction de la fluence. Cette procédure consiste à alterner des mesures avec des faisceaux de très basse intensité, de l'ordre de  $2 \times 10^4$  particules  $s^{-1}$  (qui ne modifie pas la composition ou la structure des surfaces) et des irradiations avec des faisceaux d'intensité élevée, de quelques  $10^8$  particules  $s^{-1}$ . De tels cycles sont répétés aussi souvent que nécessaire pour simuler l'exposition des surfaces au vent solaire ou aux rayons cosmiques pendant une durée à l'échelle astrophysique.

## A - Simulation en laboratoire des effets des rayons cosmiques sur des surfaces de météorites : effets des ions rapides sur la néphéline

Depuis quelques années, l'intérêt scientifique concernant les météorites s'est considérablement accru [Strazzulla 2005, Dehant 2012, Orthous-Daunay 2013]. L'étude de météorites, de type chondrite, peut apporter des informations sur les processus de formation et d'évolution du système solaire [Dobrică 2010]. Certaines de ces météorites, il y a quelques milliards d'années, ont peut-être amené sur la Terre jeune les molécules complexes à l'origine de la vie.

Les météorites, au cours de leur voyage dans l'espace, sont irradiées, en particulier par les rayons cosmiques. Ces irradiations mènent à une érosion de la surface des matériaux et l'éjection de particules. L'étude de ces phénomènes permet de comprendre l'évolution des surfaces de météorites en fonction de l'irradiation.

Dans cette optique, nous avons simulé en laboratoire les effets des rayons cosmiques sur les analogues des matériaux présents à la surface de météorites. Cette première partie présentera les effets des ions rapides sur la néphéline. La néphéline est un silicate d'aluminium contenant du sodium et du potassium. Il est présent à la surface des chondrites [Young 1998, Shimoda 2005, Dobrică 2010].

Des expériences d'irradiation avec des ions rapides ont été effectuées sur la ligne SME du GANIL et à l'université catholique de Rio de Janeiro. Les expériences ont été réalisées sous ultravide (pression  $\approx 2 \times 10^{-9}$  mbar) à Caen et sous vide standard (pression  $\approx 7 \times 10^{-6}$  mbar) à Rio de Janeiro. Le tableau 4-1 résume les principaux paramètres des projectiles qui ont été utilisés lors des expériences : le type d'ions projectiles, leur charge  $q$ , leur énergie cinétique  $E_c$ , leur pouvoir d'arrêt électronique  $S_e$  et "nucléaire"  $S_n$  et l'angle d'incidence  $\delta$  (par rapport à la normale à la surface).

Faisceaux	Energie (MeV)	$S_e$ (keV/nm) [Ziegler 1985]	$S_n$ (keV/nm) [Ziegler 1985]	Fluences (particules/cm <sup>2</sup> )	Angle d'incidence $\delta$ par rapport à la normale à la surface (degré)
FF- <sup>252</sup> Cf	$\langle E \rangle \approx 65$	$\langle S_e \rangle \approx 10.0$	$\langle S_n \rangle \approx 0.12$	$2 \times 10^5$	45
<sup>76</sup> Ge <sup>28+</sup>	690	7.0	0.004	$5 \times 10^9$	35
<sup>58</sup> Ni <sup>24+</sup>	630	5.3	0.003	$10^{10}$ à $6 \times 10^{12}$	35

**Tableau 4-1 : Caractéristiques des ions projectiles utilisées avec les fragments de fission (FF) du dispositif PDMS (Rio de Janeiro) et sur la ligne SME du GANIL (Caen). Afin de calculer les pouvoirs d'arrêt, nous avons fait l'hypothèse que la stœchiométrie de la néphéline est  $Na_3KAl_4Si_4O_{16}$ .**

L'élément lourd le plus abondant dans les rayons cosmiques est le fer. Les expériences réalisées par exemple avec le nickel, de pouvoir d'arrêt électronique très proche du fer, représentent une bonne simulation des effets induits par les ions lourds.

Chapitre 4 : Simulation en laboratoire des effets des ions lourds sur des silicates d'intérêt astrophysique

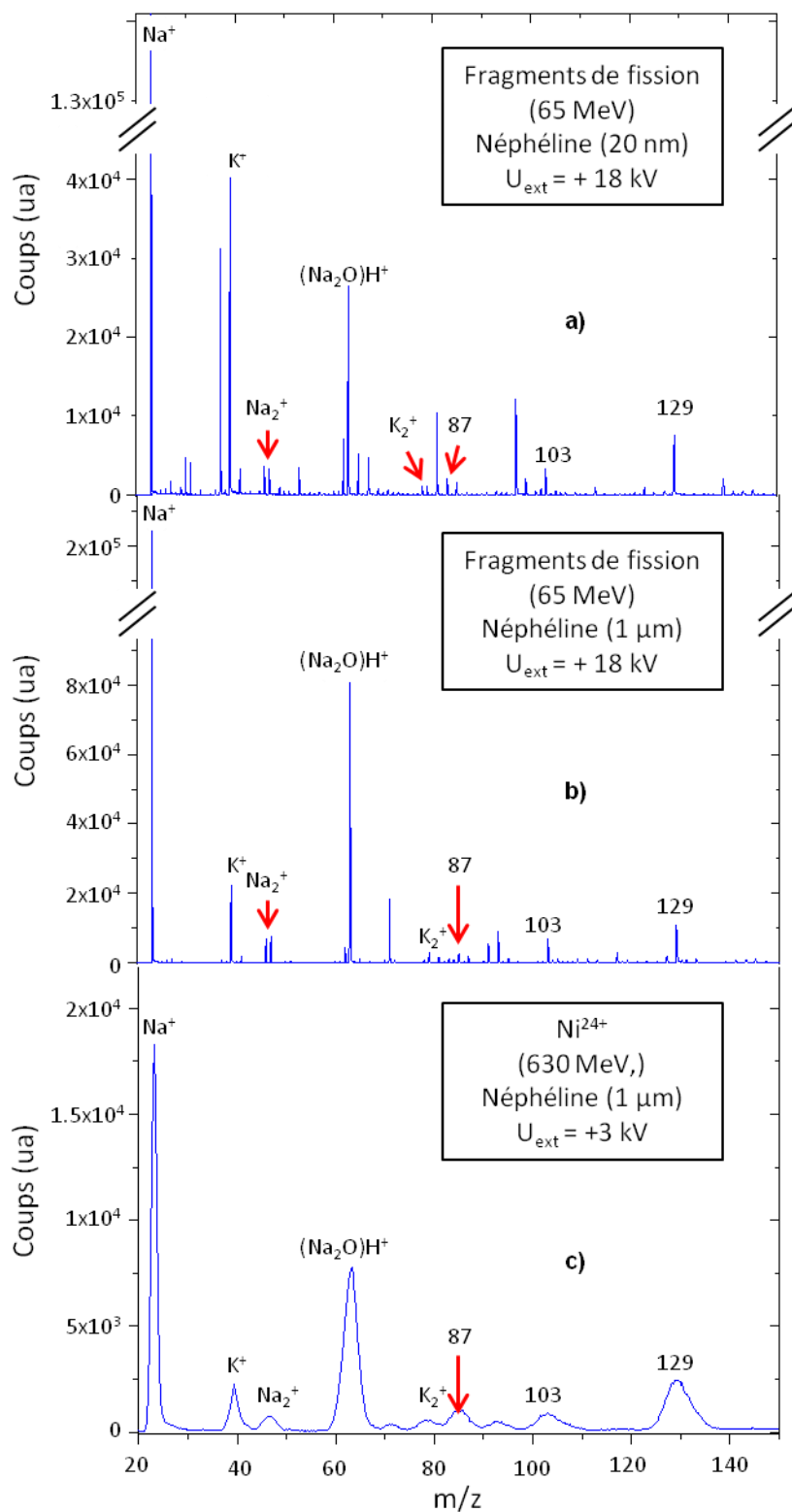


Figure 4-1 : Spectres de masses des ions positifs éjectés de la néphéline (d'épaisseur a) 20 nm et b) 1 μm) irradiée par des fragments de fissions ( $\langle E \rangle = 65$  MeV) et de la néphéline d'épaisseur 1 μm irradiée par un faisceau de Ni<sup>24+</sup> (630 MeV).

## 1 - Distribution en masse des ions positifs

La figure 4-1 présente les spectres de masses des ions positifs éjectés de la néphéline d'épaisseur a) 20 nm et b) 1  $\mu\text{m}$  irradiée par des fragments de fissions ( $\langle E \rangle = 65 \text{ MeV}$ ) ainsi que de la néphéline d'épaisseur c) 1  $\mu\text{m}$  irradiée par un faisceau de  $\text{Ni}^{24+}$  (630 MeV).

La tension d'extraction utilisée avec le dispositif de temps de vol présent à Rio de Janeiro est très élevée (18 kV). Ces fortes valeurs d'extraction génèrent une meilleure résolution en  $q/m$ . Il est ainsi possible de séparer les isotopes d'une même espèce, par exemple  $^{39}\text{K}$  et  $^{41}\text{K}$ . Cette meilleure résolution facilite l'identification des pics. À Caen, les tensions d'extraction ont été choisies pour obtenir un bon compromis entre la séparation des masses légères et la possibilité de pouvoir déterminer les distributions en énergie.

Dans les spectres de masses, les espèces  $\text{Na}_n^+$  et  $\text{K}_n^+$ ,  $n$  variant de 1 à 2, sont observées. Le pic de masse 63 est attribué à  $(\text{Na}_2\text{O})\text{H}^+$ . Quant aux pics de masse 87, 103 et 129, ils ne sont pas encore identifiés. Quelque soit l'épaisseur de la cible, les particules pulvérisées sont similaires pour des projectiles du domaine du pouvoir d'arrêt électronique.

## 2 - Rendements des ions secondaires positifs

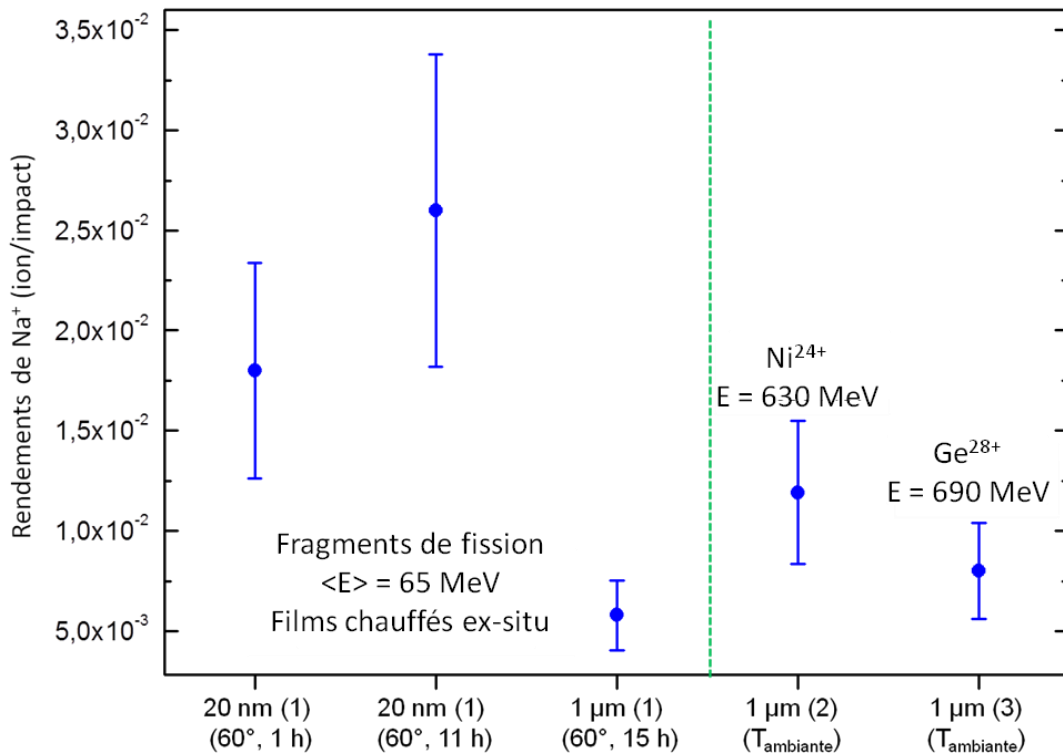


Figure 4-2 : Rendements absolus de  $\text{Na}^+$  pour les différentes cibles de néphéline irradiées à Rio de Janeiro et à Caen.

## Chapitre 4 : Simulation en laboratoire des effets des ions lourds sur des silicates d'intérêt astrophysique

À partir des spectres de masses, nous pouvons calculer les rendements absolus de  $\text{Na}^+$ . En ce qui concerne les expériences réalisées à Caen, les rendements sont déterminés à l'aide de la formule 3-1 décrite dans le chapitre 3. Pour les expériences faites à Rio, les rendements sont calculés avec la formule suivante :

$$Y = \left( \frac{\text{aire du pic}}{\text{nombre de projectile/s} \times t_{\text{acquisition}}} \right) \varepsilon_{\text{totale}} \quad (4-1)$$

avec  $t$  : le temps d'acquisition.

L'incertitude sur les rendements est de l'ordre de 25 %. Elle est déterminée à l'aide de la formule 4-2 :

$$\Delta Y = Y \left( \frac{\Delta \text{aire du pic}}{\text{aire du pic}} + \frac{\Delta \text{nombre de projectile/s}}{\text{nombre de projectile/s}} + \frac{\Delta t_{\text{acquisition}}}{t_{\text{acquisition}}} \right) \quad (4-2)$$

avec  $\Delta t_{\text{acquisition}}$  : l'incertitude sur le temps d'acquisition.

La figure 4-2 montre les rendements absolus de  $\text{Na}^+$  issus de cibles d'épaisseurs 20 nm et 1  $\mu\text{m}$ , irradiées par des fragments de fissions ( $\langle E \rangle = 65 \text{ MeV}$ ) et par des faisceaux de  $\text{Ni}^{24+}$  ( $E = 630 \text{ MeV}$ ) et de  $\text{Ge}^{28+}$  ( $E = 690 \text{ MeV}$ ).

À Rio, le vide primaire dans le dispositif PDMS est obtenu à l'aide des pompes à palettes lubrifiées à l'huile. Ces pompes induisent l'éjection d'huile dans le dispositif. De nombreuses pollutions surfaciques, de type  $\text{C}_n\text{H}_m^+$ , sont ainsi déposées à la surface des échantillons. Afin de diminuer les contaminations surfaciques, les cibles ont été chauffées ex-situ, puis réintroduites via un sas rapide dans le dispositif PDMS et étudiées encore chaudes.

En ce qui concerne l'épaisseur de 1  $\mu\text{m}$ , quelque soit le projectile, les rendements absolus de  $\text{Na}^+$ , aux incertitudes près, sont de l'ordre de  $10^{-2}$  ion/impact. Les rendements associés aux épaisseurs de 20 nm sont supérieurs à ceux correspondant aux cibles de 1  $\mu\text{m}$ . Ces observations sont en contradiction avec les résultats obtenus avec les cibles de LiF. Nous avons démontré, dans le chapitre 3, que les rendements augmentent avec l'épaisseur de la cible. Pour expliquer ces résultats, deux hypothèses sont envisagées :

- Les cibles ont été préparées dans des conditions différentes (se référer au chapitre 2, paragraphe G-2). La stœchiométrie des cibles pourrait être différente.
- Les incertitudes sont sous-estimées.

### 3 - Pulvérisation : contribution des rayons cosmiques

Nous allons déterminer, dans ce paragraphe, la contribution des rayons cosmiques à la pulvérisation de la néphéline présente à la surface des météorites.

Les rendements de  $\text{Na}^+$  obtenus avec les projectiles de Ni, de Ge et les fragments de fission, de pouvoirs d'arrêt électronique différents, sont équivalents aux incertitudes de mesure près. Il n'est pas possible de déterminer, comme dans le cas des glaces (chapitre 3, paragraphe C-3), une relation entre les rendements et les pouvoirs d'arrêt électronique.

Dans le régime de pulvérisation électronique, il a été démontré que les rendements varient :

- linéairement avec le pouvoir d'arrêt électronique  $S_e$  dans le cas de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  [Qiu 1982],
- quadratiquement avec le pouvoir d'arrêt électronique  $S_e$  dans le cas des glaces [Brown 1980a, Brown 1980b, Seperuelo Duarte 2010].

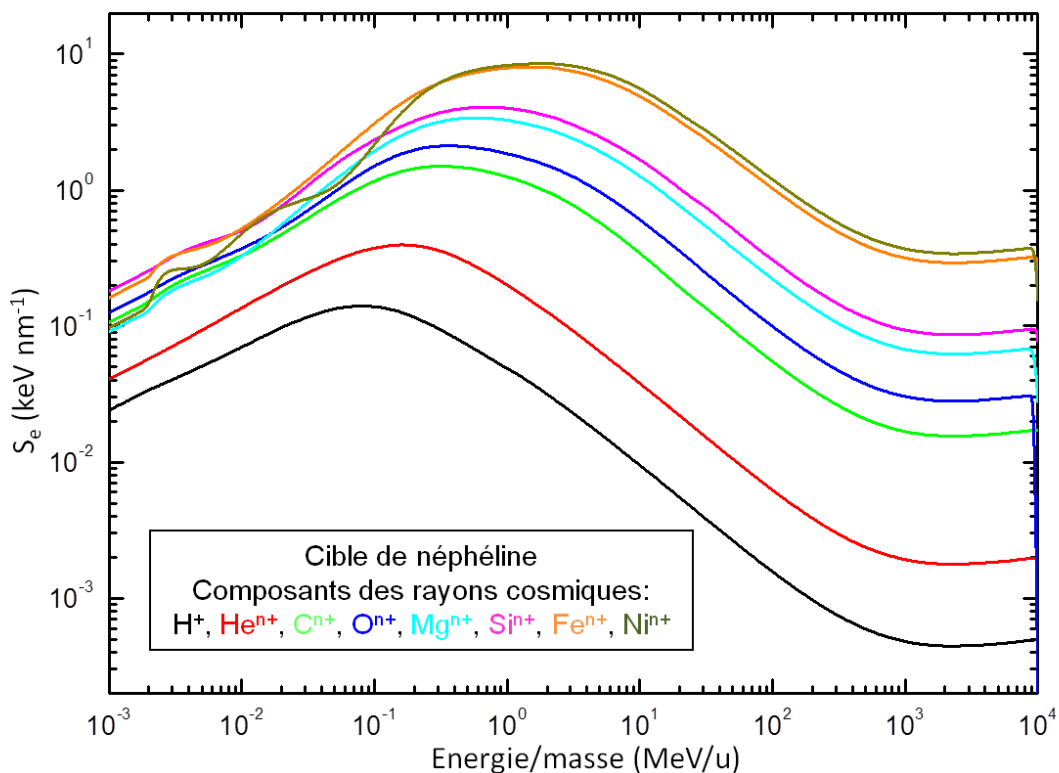


Figure 4-3 : Pouvoirs d'arrêt électronique  $S_e$  en fonction de  $E/m$  pour les différents constituants des rayons cosmiques sur une cible de néphéline. Nous avons fait l'hypothèse que la stœchiométrie de la néphéline est  $\text{Na}_3\text{KAl}_4\text{Si}_4\text{O}_{16}$ .

Pour calculer les taux de pulvérisation, nous faisons l'hypothèse que les rendements varient linéairement (formule 4-3) et quadratiquement (formule 4-4) avec le pouvoir d'arrêt

Chapitre 4 : Simulation en laboratoire des effets des ions lourds sur des silicates d'intérêt astrophysique

électronique. À partir du rendement de pulvérisation de  $\text{Na}^+$  associé au faisceau de nickel, 0.012 ions/impact, de pouvoir d'arrêt électronique  $5.3 \text{ keV nm}^{-1}$ , nous avons déterminé les coefficients  $A_1$  et  $A_2$ .

$$Y(\text{ion}/\text{impact}) = A_1 S_e = 2.3 \times 10^{-3} S_e \quad (4-3)$$

$$Y(\text{ion}/\text{impact}) = A_2 S_e^2 = 4.3 \times 10^{-4} S_e^2 \quad (4-4)$$

Les pouvoirs d'arrêt électronique  $S_e$  ont été calculés à l'aide du programme SRIM2013 [Ziegler 1985]. La figure 4-3 présente les pouvoirs d'arrêt électronique  $S_e$ , dans la néphéline, pour les principaux ions constitutifs des rayons cosmiques (H, He, C, O, Mg, Si, Fe et Ni) en fonction de  $E/m$ .

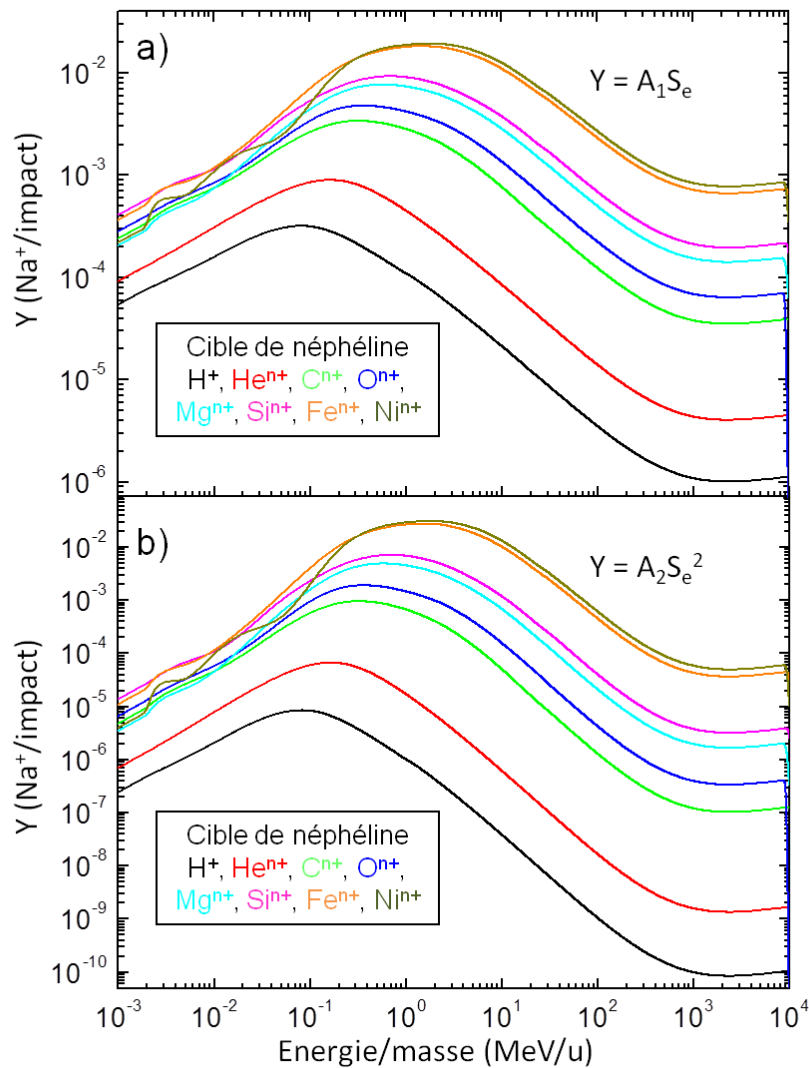


Figure 4-4 : Rendements de pulvérisation de  $\text{Na}^+$  issus de l'interaction entre la cible de néphéline et les différentes espèces ioniques composant les rayons cosmiques, en fonction de  $E/m$ . Les rendements ont été calculés à l'aide des formules 4-3 (a) et 4-4 (b).

## Chapitre 4 : Simulation en laboratoire des effets des ions lourds sur des silicates d'intérêt astrophysique

À l'aide des formules 4-3 et 4-4, les rendements de pulvérisation sont calculés par l'intermédiaire du pouvoir d'arrêt électronique. Le programme SRIM2013 détermine, en fonction de  $E/m$ , les pouvoirs d'arrêt électronique. Il est donc possible d'estimer les rendements en fonction de  $E/m$ . Ils sont présentés dans la figure 4-4 a) et b).

Afin de déterminer les taux réels de pulvérisation de  $\text{Na}^+$ , il faut tenir compte de l'abondance des différents ions constitutifs des rayons cosmiques. Les flux, fonction de  $E/m$ , sont représentés dans la figure 4-5 [Shen 2004].

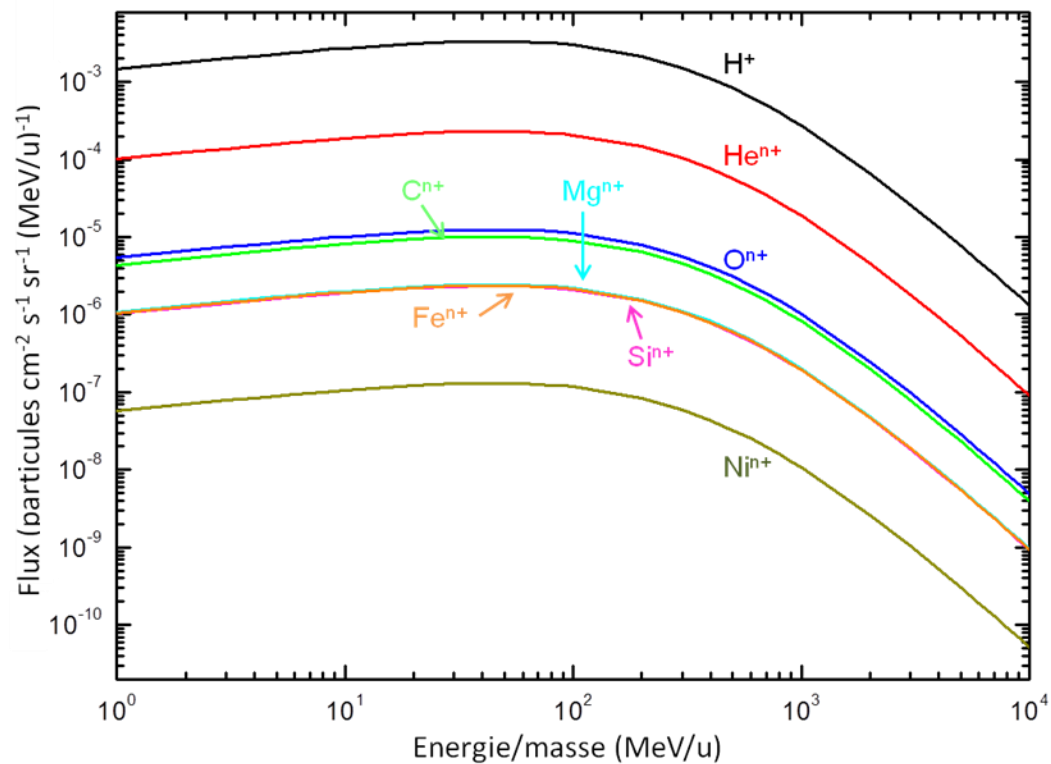


Figure 4-5 : Flux des principaux ions constitutifs des rayons cosmiques en fonction de  $E/m$  [Shen 2004].



## Chapitre 4 : Simulation en laboratoire des effets des ions lourds sur des silicates d'intérêt astrophysique

Les taux de pulvérisation sont égaux aux rendements multipliés par les flux. Les figures 4-6 a) et b) présentent ces taux en fonction de  $E/m$ .

- Pour une proportionnalité  $Y = A_1 S_e$  : La contribution des ions légers est plus importante que la contribution des ions lourds. Le taux de pulvérisation de  $\text{Na}^+$  associé aux protonx est  $\sim 2.4$  fois plus important que pour le fer.
- Pour une dépendance quadratique  $Y = A_2 S_e^2$  : Entre  $10^{-3}$  et  $1.5 \times 10^{-1}$  MeV/u, la contribution des ions légers est dominante par rapport à celle associée aux ions lourds. Au-delà de  $1.5 \times 10^{-1}$  MeV/u, elle devient minoritaire. Le taux global de  $\text{Na}^+$  associé au fer est 100 fois plus important que celui du proton. Bien qu'ils soient moins abondants, les effets des ions lourds sont plus importants que ceux des ions légers.

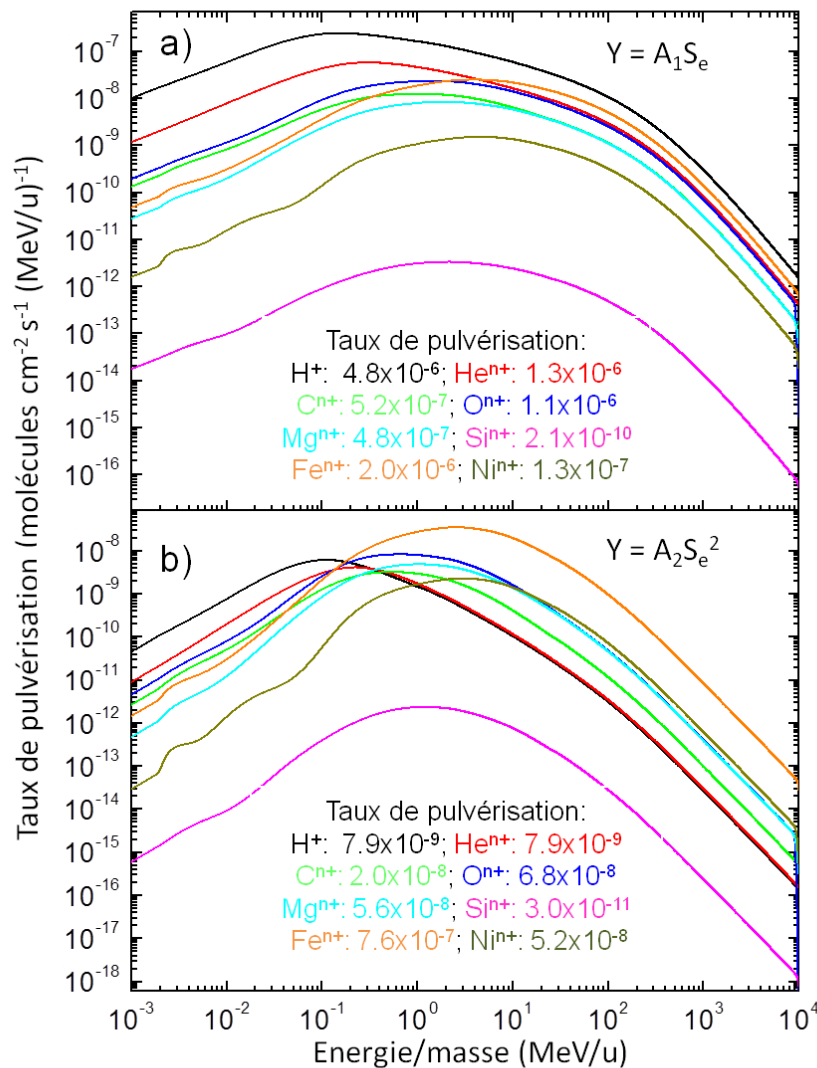
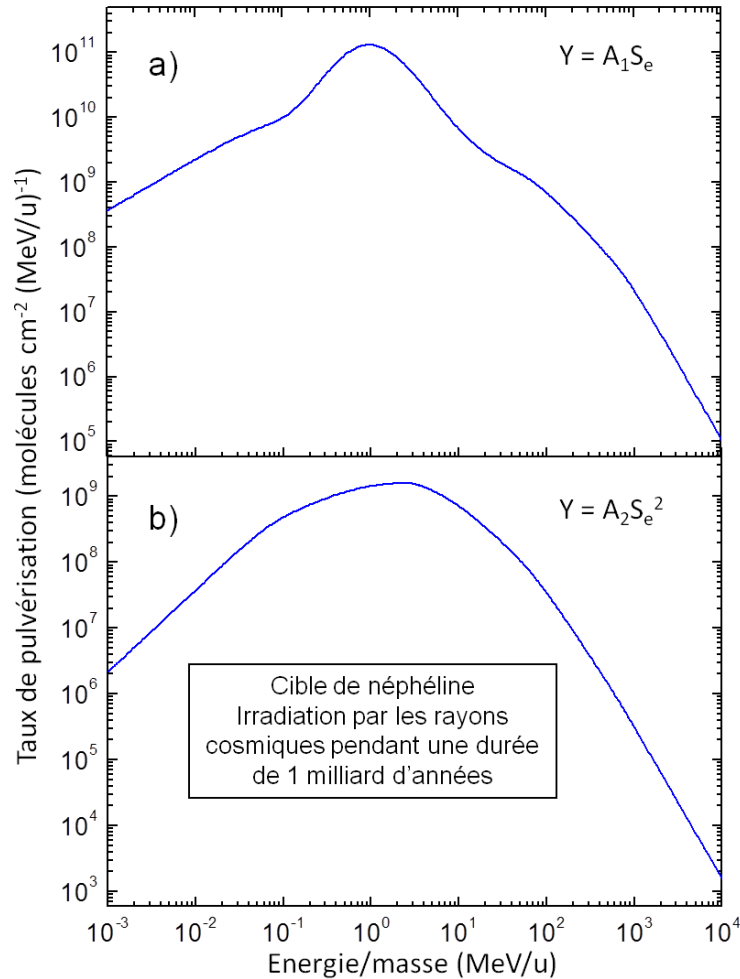


Figure 4-6 : Taux de pulvérisation de  $\text{Na}^+$  pour les différentes espèces ioniques des rayons cosmiques en fonction de  $E/m$ . Les rendements ont été calculés à l'aide des formules 4-3 (a) et 4-4 (b).

## Chapitre 4 : Simulation en laboratoire des effets des ions lourds sur des silicates d'intérêt astrophysique

En sommant la contribution de chaque ion projectile, il est possible de déterminer le taux de pulvérisation de  $\text{Na}^+$  induit par les rayons cosmiques. Les figures 4-7 a) et 4-7 b) présentent ces taux en fonction de  $E/m$ , pour un temps d'irradiation d'un milliard d'années. Afin de calculer les rendements associés à ce temps, nous avons tenu compte du taux d'impact des rayons cosmiques, qui est de  $1 \text{ particule cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ .



**Figure 4-7 : Taux de pulvérisation total de  $\text{Na}^+$  induits par les rayons cosmiques en fonction de  $E/m$ . Les rendements ont été calculés à l'aide des formules 4-3 (a) et 4-4 (b).**

En 1 milliard d'années, pour la relation linéaire  $Y = A_1 S_e$ , environ  $4 \times 10^{12} \text{ Na}^+ \text{ cm}^{-2}$  sont pulvérisés de la néphéline. En ce qui concerne la relation quadratique  $Y = A_2 S_e^2$ ,  $4 \times 10^{10} \text{ Na}^+ \text{ cm}^{-2}$  sont éjectés.

En faisant l'hypothèse que le rapport neutre/ion est égal à :

- 1, se référer à [Dukes 2011] : L'irradiation de la néphéline par les rayons cosmiques engendre l'éjection de  $4 \times 10^{10}$  à  $4 \times 10^{12} \text{ Na cm}^{-2}$ . Ce taux de pulvérisation est très faible. Un rapport neutre/ion égal à 1 semble néanmoins peu probable.
- $10^6$ , se référer à [Hijazi 2011a] :  $4 \times 10^{16}$  à  $4 \times 10^{18} \text{ Na cm}^{-2}$  sont ainsi pulvérisés, ce qui correspond à quelques centaines de monocouches.

## 4 - Distribution en masse des ions négatifs

Dans le but de réaliser une étude complète de la pulvérisation ionique issue de la néphéline, nous avons également étudié les ions secondaires négatifs. La figure 4-8 présente les spectres de masses des ions négatifs éjectés de la néphéline (d'épaisseur a) 20 nm et b) 1  $\mu\text{m}$ ) irradiée par des fragments de fissions ( $\langle E \rangle = 65 \text{ MeV}$ ).

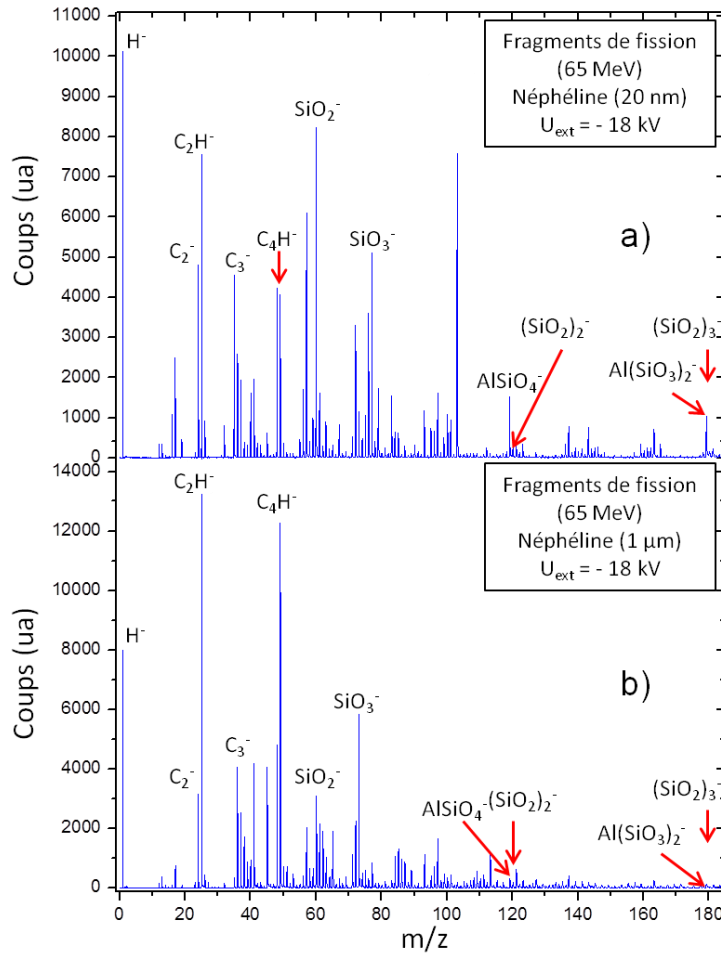


Figure 4-8 : Spectres de masses des ions négatifs éjectés de la néphéline, d'épaisseur a) 20 nm et b) 1  $\mu\text{m}$ , irradiée par des fragments de fissions ( $\langle E \rangle = 65 \text{ MeV}$ ).

Les spectres de masses sont caractérisés par la série d'agrégats  $(\text{SiO}_2)_n^-$ ,  $n$  variant de 1 à 3 [Imanishi 2000]. Les pics associés aux masses 76, 113 et 179 sont alloués à  $\text{SiO}_3^-$ ,  $\text{Al}_3\text{O}_2^-$  et  $\text{Al}(\text{SiO}_3)_2^-$ . Une forte contamination surfacique de type  $\text{C}_x\text{H}_x^-$  est présente sur les différents spectres.

Il n'est pas possible, compte tenu des fortes contaminations, de déterminer les rendements des différentes espèces ainsi que le rapport ions positifs - ions négatifs.

## B - Simulation en laboratoire des effets du vent solaire sur des matériaux modèles des surfaces de Mercure : effets des ions lents sur la néphéline

La mission spatiale MESSENGER ("MErcury Surface, Space ENvironment, GEOchemistry, and RAnging") et les observations réalisées à l'aide de télescopes spatiaux et au sol ont montré que l'exosphère de Mercure se compose principalement de Ca, Na, K, H, He et O [Sarantos 2011, McNutt Jr 2014, Peplowski 2014] et de quelques espèces ioniques comme  $\text{Na}^+$  et  $\text{K}^+$  [Zurbuchen 2008]. Dans le but d'expliquer la formation de l'exosphère, plusieurs mécanismes sont proposés :

- les processus thermiques [Leblanc 2007],
- les interactions entre la surface et l'environnement spatial : pulvérisation due à des particules chargées, à des photons, chimie produite par implantation et vaporisation induite par des micrométéorites [Leblanc 2007].

Afin de comprendre la contribution du vent solaire sur la création de l'exosphère, nous avons étudié en laboratoire l'interaction des ions lents avec des analogues de la surface de Mercure tels que la néphéline [Sangiorgio 2014]. Le tableau 4-2 présente la composition ionique du vent solaire. La pulvérisation des ions secondaires issus des silicates a été étudiée par la technique XY-TOF-SIMS.

Ion	Charge	Flux (particules $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ )
H	$1^+$	$1.5 \times 10^9$
He	$2^+$	$6.6 \times 10^7$
C	$4^+ - 6^+$	$8.8 \times 10^5$
O	$6^+ - 8^+$	$4.4 \times 10^5$
Mg	$7^+ - 10^+$	$5.7 \times 10^4$
Si	$6^+ - 12^+$	$5.4 \times 10^4$
Fe	$7^+ - 14^+$	$4.7 \times 10^4$

Tableau 4-2 : Composition du vent solaire [Kumar 1976, Shen 2004, Barghouty 2011, Barros 2011].

Faisceaux	$E_c$ (keV)	$E_p$ (keV) [Dreebit 2008]	$S_e$ (keV/nm) [Ziegler 1985]	$S_n$ (keV/nm) [Ziegler 1985]	Profondeur de pénétration ( $\mu\text{m}$ ) [Ziegler 1985]	Fluences (particules $\text{cm}^{-2}$ )
$\text{Xe}^{15+}$	225	2	0.3	1.6	0.1	$10^{12}$ à $10^{14}$
$\text{Xe}^{26+}$	390	10	0.4	1.5	0.2	$5 \times 10^{12}$ à $5 \times 10^{13}$

Tableau 4-3 : Caractéristiques des ions projectiles utilisées sur les lignes d'ARIBE (GANIL, Caen). Afin de calculer les pouvoirs d'arrêt, nous avons fait l'hypothèse que la stœchiométrie de la néphéline est  $\text{Na}_3\text{KAl}_4\text{Si}_4\text{O}_{16}$ .

Les expériences ont été réalisées à Caen sur ARIBE (pression  $\approx 2 \times 10^{-8}$  mbar). Le tableau 4-3 résume les principaux paramètres des projectiles utilisés lors des irradiations.

## Chapitre 4 : Simulation en laboratoire des effets des ions lourds sur des silicates d'intérêt astrophysique

Nous avons simulé en laboratoire les effets d'une partie du vent solaire avec des faisceaux de Xe. Cet élément est présent dans le vent solaire mais en très faible quantité (environ  $10^{11}$  fois moins que les protons) [Kumar 1976, Meshik 2014]. Le xénon dépose une quantité d'énergie beaucoup plus importante que les principaux éléments constitutifs du vent solaire. À titre d'exemple, à vitesse égale, les pouvoirs d'arrêt nucléaire  $S_n$  et électronique  $S_e$  pour un faisceau de xénon à 1 keV/u par rapport à un proton sont :  $S_n$  (Xe 1 keV/u)  $\approx 14 S_n$  (H 1 keV/u) et  $S_e$  (Xe 1 keV/u)  $\approx 740 S_e$  (H 1 keV/u).

Le pouvoir d'arrêt nucléaire des faisceaux de Xe dans la néphéline (en faisant l'hypothèse que la stœchiométrie du matériau est  $\text{Na}_3\text{KAl}_4\text{Si}_4\text{O}_{16}$ ) contribue majoritairement à la pulvérisation. Pour chaque expérience, nous avons gardé les mêmes paramètres d'extraction des ions secondaires (chapitre 2). L'angle d'incidence par rapport à la normale à la surface est égal à  $40^\circ$ .

### 1 - Distribution en masse

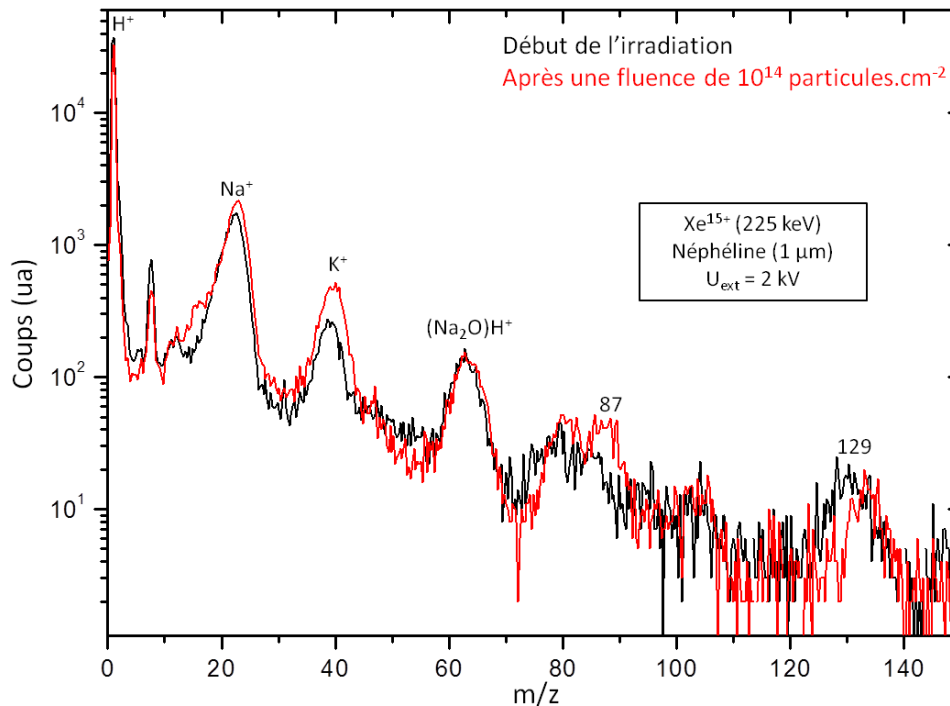


Figure 4-9 : Spectres de masses pour le système de collision Xe<sup>15+</sup> (225 keV) sur une cible de néphéline au début de l'irradiation (noir) et après une fluence de  $10^{14}$  particules.cm<sup>-2</sup> (rouge).

La figure 4-9 montre un spectre de masses des ions positifs secondaires pour le système de collision Xe<sup>15+</sup> (225 keV) sur la cible de néphéline (épaisseur de 1 µm).

Les spectres de masses sont caractérisés principalement par des pics de masse 23 et 39 attribués à Na<sup>+</sup> et K<sup>+</sup>. Deux pics de masse 87 et 129 sont présents à droite du spectre mais à l'heure actuelle, ils ne sont pas encore identifiés. Quant à la masse 63, elle est attribuée à (Na<sub>2</sub>O)H<sup>+</sup>.

## Chapitre 4 : Simulation en laboratoire des effets des ions lourds sur des silicates d'intérêt astrophysique

Dukes et collaborateurs [Dukes 2011] ont étudié la pulvérisation des ions secondaires issus de l'interaction entre des protons de 4 keV et des silicates d'aluminium contenant du sodium, tels que l'albite  $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$ . Les particules secondaires éjectées sont principalement  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Al}^+$ ,  $\text{Si}^+$ ,  $\text{O}^+$  et  $\text{NaO}^+$ . Dans notre cas, avec un matériau comparable, nous observons seulement  $\text{Na}^+$ . Deux explications peuvent être envisagées :

- Les matériaux étudiés ont des stœchiométries différentes.
- En ce qui concerne les spectres de masses de la néphéline, le pic correspondant à  $\text{Na}^+$  est très large. Si la contribution des espèces de masse voisine est faible, par exemple  $\text{Al}^+$  et  $\text{Si}^+$ , elles ne peuvent pas être observées.

### 2 - Evolution des rendements en fonction de la fluence

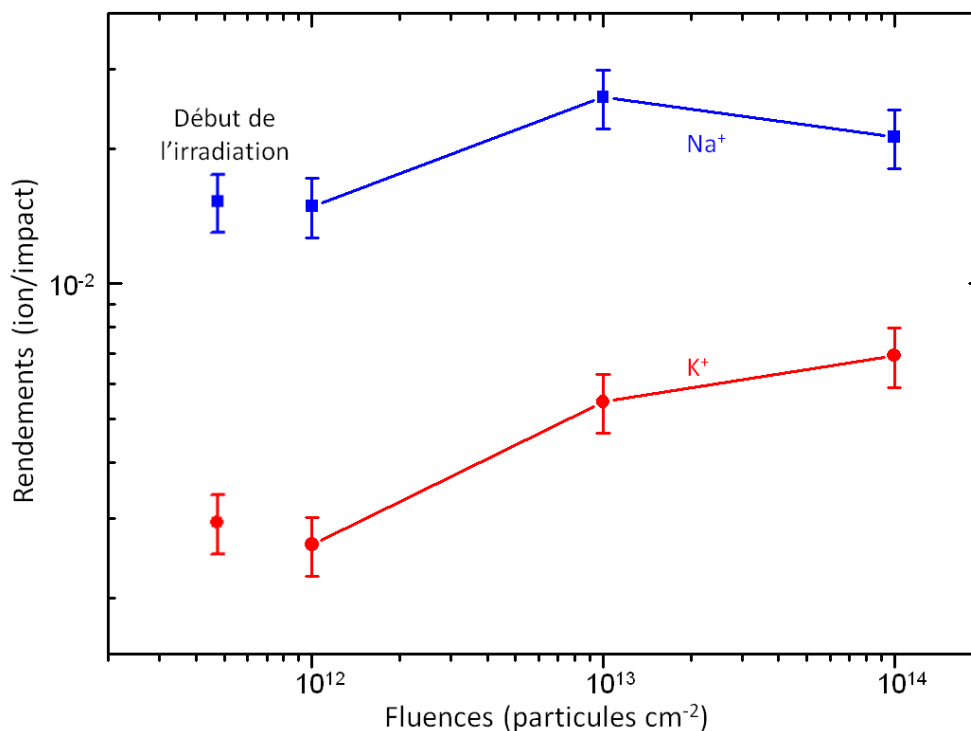


Figure 4-10 : Rendements des espèces  $\text{Na}^+$  et  $\text{K}^+$  en fonction de la fluence pour le système de collision  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur une cible de néphéline.

La figure 4-10 présente la distribution des rendements des espèces pulvérisées en fonction de la fluence, pour le système de collision  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur une cible de néphéline. L'incertitude sur les rendements est de l'ordre de 25 %.

Sous l'effet des ions lents, le comportement des rendements associés à  $\text{K}^+$  évolue en fonction de la fluence. En ce qui concerne  $\text{Na}^+$ , les rendements, aux incertitudes de mesure près, sont plus ou moins constants. Cette évolution implique une modification de la surface et de la stœchiométrie du matériau.

### 3 - Pulvérisation : contribution du vent solaire

Dans ce paragraphe, nous allons nous intéresser à la contribution du vent solaire à la pulvérisation de la néphéline.

Pour calculer ces taux, nous utiliserons la même procédure que dans le paragraphe A-3. Dans le régime de pulvérisation nucléaire, les rendements  $Y$  varient linéairement avec le pouvoir d'arrêt nucléaire  $S_n$  [Sigmund 1981b]. Les flux des différents ions constitutifs du vent solaire sont décrits par Shen [Shen 2004] et Barros [Barros 2011].

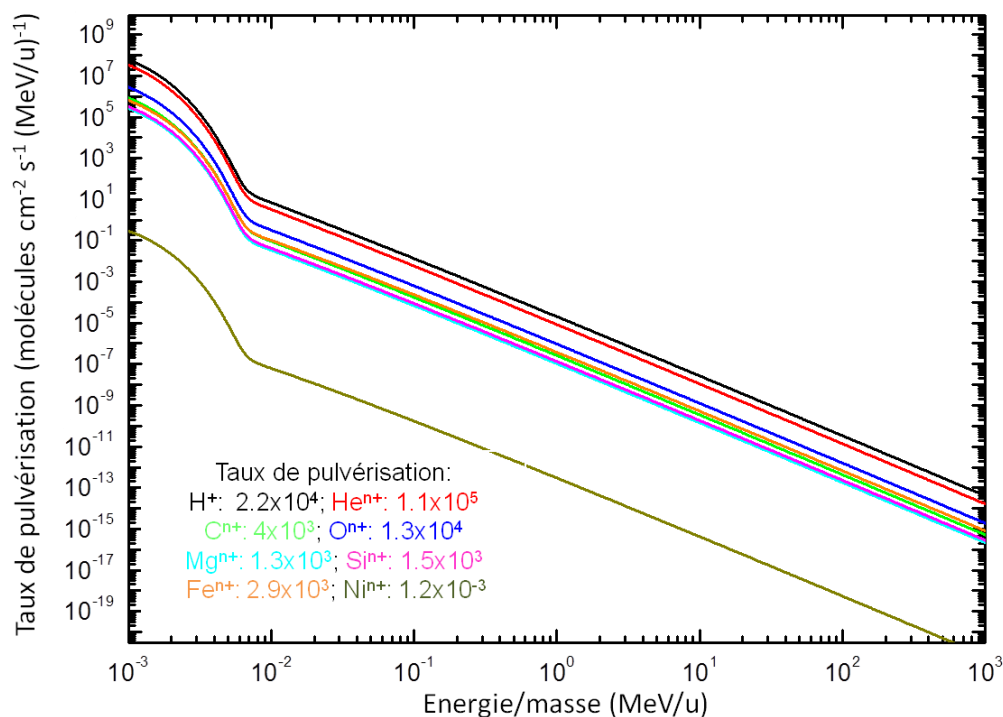


Figure 4-11 : Taux de pulvérisation de  $\text{Na}^+$  associés aux différentes espèces ioniques du vent solaire en fonction de  $E/m$ .

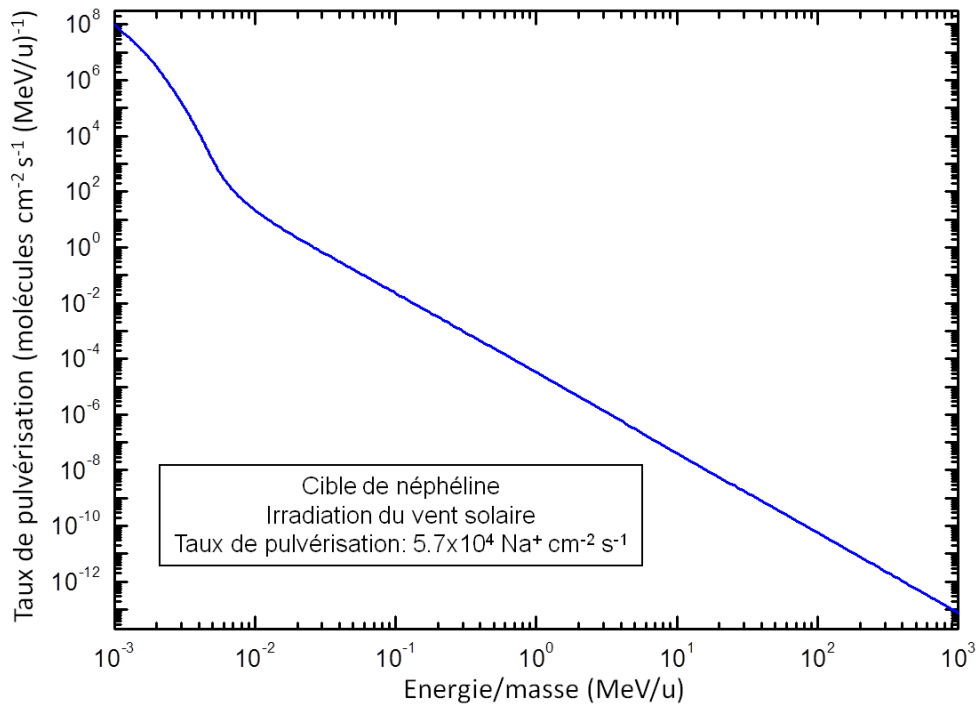


Figure 4-12 : Taux de pulvérisation de Na<sup>+</sup> induits par l'irradiation du vent solaire en fonction de E/m.

Les taux de pulvérisation de Na<sup>+</sup> issus de l'irradiation des différents ions constitutifs du vent solaire sont présentés dans la figure 4-11. La contribution des ions légers à la pulvérisation est majoritaire. Le taux de Na<sup>+</sup> associé au proton est environ 8 fois plus important que celui associé au fer.

En sommant la contribution de chaque ion projectile, nous pouvons calculer le taux de pulvérisation de Na<sup>+</sup> induit par le vent solaire. La figure 4-12 présente ces taux en fonction de E/m.

Le taux de pulvérisation, induit par l'irradiation du vent solaire, est égal à  $5.7 \times 10^4 \text{ Na}^+ \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . En considérant que les taux de pulvérisation ne sont pas les mêmes pour les différentes espèces pulvérisées et que le taux de Na<sup>+</sup> est le plus important, la surface s'appauvrira plus rapidement en Na<sup>+</sup> que pour les autres espèces. Dans le paragraphe suivant, nous déterminerons, à l'aide des distributions en énergie, la proportion de particules qui peut contribuer à la création de l'exosphère de Mercure et à la chimie de surface.

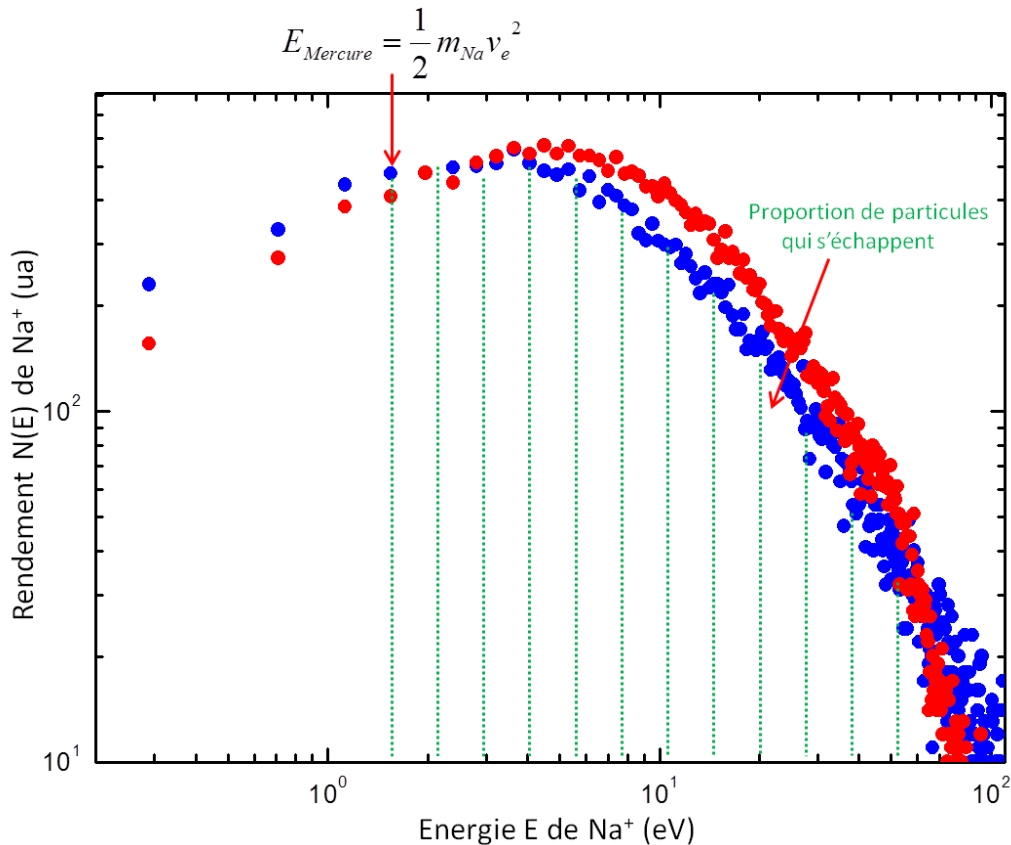
## 4 - Distributions en énergie

À partir des distributions en énergie, il est possible de déterminer la proportion de particules qui s'échappent de la planète ou qui sont retenues par le champ gravitationnel et piégées à la surface [Baragiola 2002]. Ces particules peuvent ainsi contribuer de façon provisoire ou permanente à la composition de l'atmosphère et à la chimie de surface. Dans le cas du LiF (chapitre 3), nous avons démontré que les neutres et les ions possèdent le même type de distribution.



## Chapitre 4 : Simulation en laboratoire des effets des ions lourds sur des silicates d'intérêt astrophysique

Les distributions en énergie de  $\text{Na}^+$  au début de l'irradiation et après une fluence de  $10^{14}$  particules  $\text{cm}^{-2}$ , pour le système de collision  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur une cible de néphéline, sont présentées sur la figure 4-11.



**Figure 4-11 :** Distributions en énergie de  $\text{Na}^+$  au début de l'irradiation (courbe bleue) et après une fluence de  $10^{14}$  particules  $\text{cm}^{-2}$  (courbe rouge) pour le système de collision  $\text{Xe}^{15+}$  (225 keV) sur une cible de néphéline (épaisseur de 1  $\mu\text{m}$ ). Le calcul de l'énergie de libération est décrit dans l'annexe 6.

Nous observons que 90 % des ions  $\text{Na}^+$  s'échappent au début de l'irradiation et 95 % après une fluence de  $10^{14}$  particules  $\text{cm}^{-2}$ . Pour déterminer ces proportions, il est nécessaire de calculer l'énergie de libération de  $\text{Na}^+$  associée à la planète Mercure. Le calcul de cette énergie est décrit dans l'annexe 6.

Le taux de pulvérisation, induit par l'irradiation du vent solaire, est égal à  $5.7 \times 10^4 \text{ Na}^+ \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Bruno et collaborateurs [Bruno 2007] obtiennent des rendements de pulvérisation, pour les neutres, de l'ordre de  $10^5 - 10^6$ . Ainsi, la proportion neutre/ion est égale à :

$$\frac{Y_{\text{neutres}}}{Y_{\text{ions}}} = 1.7 \text{ à } 17 \quad (3-9)$$

Les rendements des ions et des neutres sont du même ordre de grandeur. Des résultats similaires ont été obtenus par Dukes et collaborateurs [Dukes 2011] pour des cibles comparables à la néphéline.

## Chapitre 4 : Simulation en laboratoire des effets des ions lourds sur des silicates d'intérêt astrophysique

Seule une faible proportion des particules pulvérisées (5 à 10 %) peut contribuer à la création de l'exosphère et à la chimie de surface. En assumant que les distributions en énergie sont les mêmes pour les ions et les neutres, environ  $2.8 \times 10^3 \text{ Na}^+ \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  et  $5 \times 10^{3-4} \text{ Na cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  participent à l'enrichissement de l'exosphère.

Nous nous sommes focalisés, dans ce chapitre, seulement sur l'ion  $\text{Na}^+$ . Cependant, il est à noter que tous les éléments pulvérisés tels que  $\text{K}^+$  ou  $(\text{Na}_2\text{O})\text{H}^+$ , peuvent contribuer à la création de l'exosphère de Mercure.

## C - Bilan

Afin de comprendre l'évolution des surfaces de météorites sous l'effet de rayonnements, nous avons réalisé des simulations en laboratoire des effets des rayons cosmiques sur la néphéline, matériau présent à la surface de certaines météorites [Young 1998, Shimoda 2005, Dobrică 2010]. L'étude de la pulvérisation des ions secondaires démontre que ces particules sont composées des principaux constituants de la néphéline (Na, K, Al, Si et O). En 1 milliard d'années, l'irradiation par les rayons cosmiques engendre l'éjection d'environ  $10^{12} \text{ Na}^+ \text{ cm}^{-2}$  de la surface des météorites.

Dans la seconde partie de ce chapitre, nous nous sommes focalisés sur l'interaction entre les ions lents et des matériaux modèles des surfaces de Mercure. L'évolution des rendements ainsi que des distributions en énergie démontrent une modification de la composition et de la stœchiométrie de la surface. Les différents résultats obtenus décrivent la possibilité de création d'exosphère avec des ions éjectés de la surface, par exemple  $\text{Na}^+$ . Nous avons démontré que la proportion neutre/ion varie de 1.7 à 17. Il serait intéressant d'étendre ces expériences avec des faisceaux de basse énergie tels que H, He, O et C, composants majoritaires du vent solaire (tableau 2). Ces expériences permettront de déterminer, par exemple, la dépendance des rendements en fonction de la masse du projectile et de son énergie.

Durant cette thèse, d'autres silicates tels que l'anorthite et la jadéite, matériaux modèles de la surface de Mercure, ont été étudiés [Sangiorgio 2014]. Les différents résultats obtenus avec ces silicates sont décrits dans l'annexe 8.



# Conclusion et perspectives

## Conclusion et perspectives

Le système solaire et le milieu interstellaire sont soumis en permanence à différents rayonnements issus, entre autre, du vent solaire et des rayons cosmiques. L'interaction entre les particules énergétiques et les matériaux présents dans ces différents milieux, glaces, silicates ou matériaux carbonés, joue un rôle fondamental dans différents phénomènes astrophysiques [Johnson 1992, Leblanc 2007, McNutt Jr. 2014]. Les expériences en laboratoire, corrélées aux données observationnelles, permettent une meilleure compréhension de ces phénomènes.

Les travaux présentés tout au long de ce manuscrit ont porté sur l'interaction entre des ions lourds lents ou rapides et différents matériaux, principalement des analogues astrophysiques. Nous nous sommes intéressés, tout particulièrement, au phénomène de pulvérisation. L'étude de ce phénomène a été réalisée à l'aide du dispositif de temps de vol et de localisation (XY-TOF) développé au CIMAP (AODO) [Hijazi 2011b] et du dispositif de temps de vol situé à l'université catholique de Rio de Janeiro [Ponciano 2007, Ferreira-Rodrigues 2011].

La première partie de ce travail de thèse a été consacrée à l'étude de l'émission des agrégats. Nous nous sommes intéressés, tout particulièrement, à deux matériaux :

- Le LiF. Dans le domaine du pouvoir d'arrêt électronique, deux régimes d'émission des agrégats ont été observés : un premier régime pour les petits agrégats ( $n < 6$ ), caractéristique des faibles épaisseurs de LiF (2 et 4 nm) et un second régime propre aux gros agrégats ( $n \geq 6$ ) pour des épaisseurs supérieures ou égales à 11.4 nm. Nous avons aussi démontré que les distributions en énergie dépendent de la masse de l'éjecta et de l'épaisseur de la cible. Nous avons observé, dans le régime du pouvoir d'arrêt nucléaire, un effet de l'énergie cinétique et de l'énergie potentielle du projectile sur la pulvérisation.
- Les glaces d'eau. Les lunes de Jupiter sont recouvertes en grande partie par des glaces d'eau. Elles subissent l'irradiation des ions de la magnétosphère de Jupiter. Les taux de pulvérisation des ions secondaires et des neutres sont de l'ordre de  $1 \times 10^{-2}$  ions  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$  et  $2 \times 10^5$  neutres  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ . Les particules pulvérisées peuvent ainsi contribuer à l'enrichissement de la magnétosphère de Jupiter et de l'atmosphère de ces lunes.
- Il a été mis en évidence qu'une partie importante des ions secondaires est émise sous forme d'agrégats. Ce résultat a été observé pour différents matériaux (LiF, glaces d'eau) et différents régimes de pouvoir d'arrêt.
- Les distributions en énergie des ions secondaires ainsi que l'évolution de leur rendement en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire ont permis de valider le modèle de la cascade linéaire proposée par P. Sigmund [Sigmund 1969, Sigmund 1981b]. Pour la première fois, il a été observé que les distributions en énergie des neutres et des ions sont similaires.

## Conclusion et perspectives

Le second volet de cette thèse a concerné les silicates. Nous avons simulé en laboratoire l'effet du vent solaire et des rayons cosmiques sur la néphéline, matériau présent à la surface de Mercure et de certaines météorites [Young 1998, Shimoda 2005, Dobrică 2010, Sangiorgio 2014]. Quelque soit le domaine de vitesse des projectiles, les particules pulvérisées sont principalement  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$  et  $(\text{Na}_2\text{O})\text{H}^+$ .

- Interaction des rayons cosmiques avec la néphéline : L'irradiation des météorites induit l'érosion de leur surface et l'éjection de particules. Nous avons déterminé que le taux de pulvérisation des ions secondaires induit par les rayons cosmiques en 1 milliard d'années, est d'environ  $10^{12} \text{Na}^+ \text{cm}^{-2}$ .
- Interaction du vent solaire avec la néphéline : Au fur et à mesure de l'irradiation, nous observons que la composition et la stœchiométrie de l'échantillon évoluent. Nous avons démontré que les ions pulvérisés de la néphéline peuvent contribuer à la création de l'exosphère de Mercure. Ainsi, environ  $2.8 \times 10^3 \text{Na}^+ \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$  sont retenus par le champ gravitationnel et enrichissent l'exosphère.

Un important travail d'investigation reste à mener sur l'interaction entre les matériaux d'intérêt astrophysique et les ions lourds. Une série d'expériences est prévue sur ARIBE afin de compléter les résultats déjà obtenus avec les glaces. Ces expériences permettront d'étudier :

- Dans le cas de la glace d'eau, l'effet de la structure (amorphe et cristalline), dans le domaine du régime du pouvoir d'arrêt nucléaire, sur les taux de pulvérisation. Il serait intéressant de mesurer simultanément la perte de matériau avec une balance à quartz afin d'obtenir les rendements des neutres pulvérisés.
- L'effet de l'épaisseur de la cible. En fonction du milieu, l'épaisseur des cibles varie. Par exemple, dans le milieu interstellaire, environ 40 - 100 monocouches sont présentes à la surface des grains de poussière.
- L'effet de la charge (pulvérisation potentielle) [Aumayr 2003, Boudjadar 2005, Haranger 2006]. Les ions constitutifs du vent solaire présentent une distribution de charge [Barghouty 2011]. La pulvérisation potentielle peut être une source importante d'érosion et de modifications de la composition et de la stœchiométrie de la surface.
- Des glaces de  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{NH}_3$  ou  $\text{CH}_3\text{OH}$ . Après l'eau, ces molécules simples sont les plus abondantes dans le milieu interstellaire et le système solaire [Palumbo 2008a, Burke 2010, Bennett 2013].

## Conclusion et perspectives

À plus long terme, les études seront élargies :

- Aux glaces composées de mélanges de molécules simples, par exemple H<sub>2</sub>O-CO-NH<sub>3</sub>. Il a été montré que l'irradiation de telle glace induit la création de molécules plus complexes, de type pré-biotique comme la glycine, précurseur de la vie [Lee 2009, Pilling 2010].
- Stabilité de molécules organiques complexes en phase solide, aux basses températures dans l'espace. Plusieurs études expérimentales en laboratoire et certaines observations astronomiques ont montré que des molécules complexes, présentes dans le milieu interstellaire, telles que des acides aminés, pouvaient être formées lors de l'irradiation de glaces contenant des molécules simples telles que H<sub>2</sub>O, CO, CO<sub>2</sub>, CH<sub>3</sub>OH, NH<sub>3</sub>, HCOOH. Il est à noter que ces composants sont aussi présents au sein de notre système solaire sur les comètes et les lunes joviennes. Le plus simple des acides aminés, la glycine (NH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>COOH), a été récemment détecté par la sonde Stardust autour de la comète Wild 2 [Elsila 2009].
- À l'interface glace-silicate ou glace-matériaux carbonés. Ces matériaux sont présents à la surface de certaines planètes, lunes ou météorites et sous forme de grains dans le milieu interstellaire. Les simulations en laboratoire de l'interaction entre des ions lourds et ces matériaux peuvent apporter, par exemple, des informations sur l'évolution physico-chimique du milieu interstellaire ou sur l'évolution des météorites et des comètes sous irradiation [Herbst 2005, Strazzulla 2005, Burke 2010].

# Annexes



# Annexe 1

## Expression du temps de vol TOF de la ligne de gaz

Le principe de la “ligne de gaz” est décrit dans le chapitre 2. Les atomes d’hélium (ou d’autres gaz) sont ionisés suite au passage du faisceau d’ions. Ils ont pour coordonnées  $(0, y_p, z_p)$  et  $z_p = \frac{y_p}{\text{tg } \delta}$ .

### 1 - Spectromètre à une grille

Dans le cas du spectromètre à une grille, les ions sont soumis successivement à des champs  $E_1$  et  $E_2$  pendant des durées  $t_1$  et  $t_2$  (figure 5-1). Puis, ils entrent en contact avec les galettes.

Le temps de vol TOF associé est :

$$TOF_{\text{une grille}} = t_1 + t_2 + t_s$$

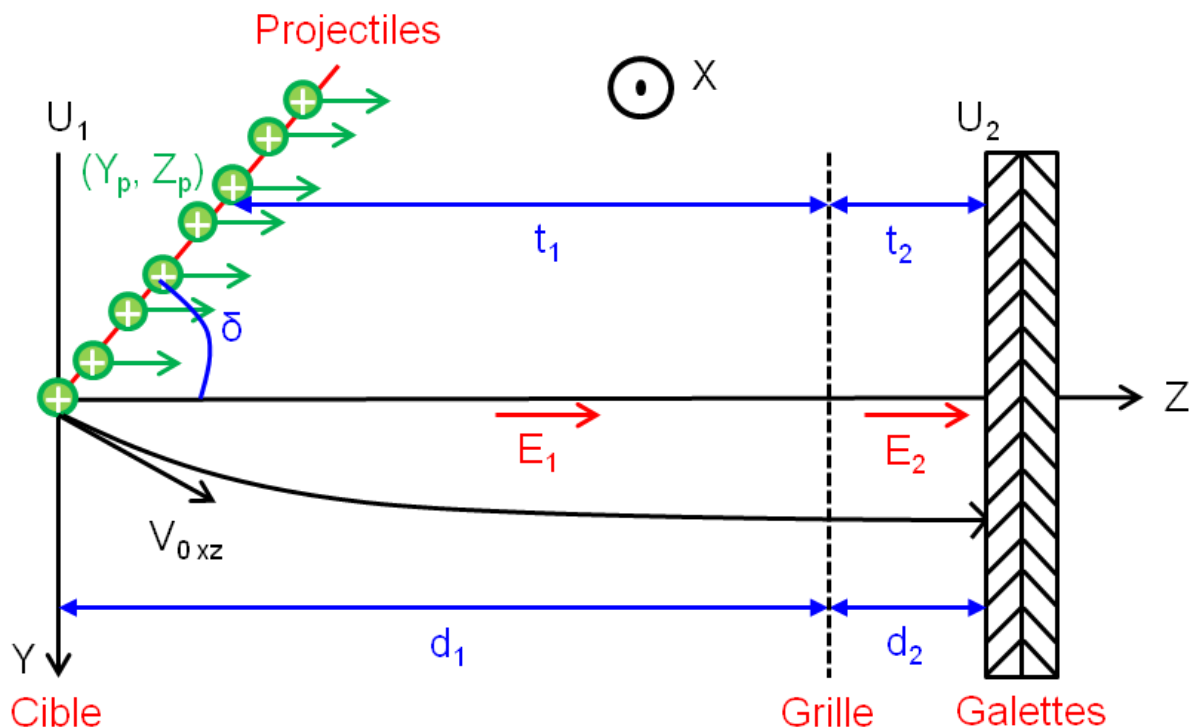


Figure 5-1 : Schéma de l'ionisation du gaz par le faisceau d'ions dans le cas d'un spectromètre à une grille.

a) Calcul de  $t_1$  (extraction)

$$a_1 = \frac{qE}{m} \text{ et } E = \frac{U_1}{d_1} \rightarrow a_1 = \frac{qU_1}{md_1}$$

$$v_1 = \frac{qU_1 t_1}{md_1} \rightarrow z = \frac{qU_1 t_1^2}{2md_1} + z_P$$

$$d_1 = \frac{qU_1}{2md_1} t_1^2 + z_P = \frac{qU_1}{2md_1} t_1^2 + \frac{y_P}{\tan \delta}$$

$$\text{Donc : } t_1 = \left( \frac{2md_1}{qU_1} \left| d_1 - \frac{y_P}{\tan \delta} \right| \right)^{1/2}$$

b) Calcul de  $t_2$  (post accélération)

$$v_2 = a_2 t_1 + v_1$$

$$a_2 = \frac{qU_2}{md_2} \rightarrow t_2 = (v_2 - v_1) \frac{md_2}{qU_2}$$

$$\frac{1}{2} m v_2^2 - \frac{1}{2} m v_1^2 = qU_2$$

$$v_2 = \left( \frac{2qU_2}{m} + v_1^2 \right)^{1/2} = \left( \left| \frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1(d_1 - \cot(\delta)y_P)}{md_1} \right| \right)^{1/2}$$

$$\text{Donc : } t_2 = \frac{md_2}{qU_2} \left[ \left( \frac{2qU_2 |d_1 - y_P \cot(\delta)y_P|}{md_1} \right)^{1/2} - \left( \frac{2qU_1 |d_1 - \cot(\delta)y_P|}{md_1} \right)^{1/2} \right]$$

c) Calcul de  $t_s$

$$t_s = \frac{y_P}{\sin(\delta)v_P}$$

D'où:

$$\begin{aligned} TOF_{\text{une grille}} = & \left( \frac{2md_1 |d_1 - \cot(\delta)y_P|}{qU_1} \right)^{1/2} \\ & + \frac{md_2}{qU_2} \left[ \left( \frac{2qU_2 |d_1 - y_P \cot(\delta)y_P|}{md_1} \right)^{1/2} - \left( \frac{2qU_1 |d_1 - \cot(\delta)y_P|}{md_1} \right)^{1/2} \right] \\ & - \frac{y_P}{\sin(\delta)v_P} \end{aligned}$$

## 2 - Spectromètre à deux grilles

Dans le cas du spectromètre à deux grilles, les ions sont soumis à un champ  $E_1$  et accélérés pendant un temps  $t_1$  (figure 5-2). Ils traversent ensuite une zone de vol libre pendant un temps  $t_{1-2}$ . Finalement, ils sont soumis à un champ  $E_2$  pendant une durée  $t_2$ . L'expression du temps de vol est :

$$TOF_{deux\ grilles} = t_1 + t_{1-2} + t_2 + t_s = TOF_{une\ grille} + t_{1-2}$$

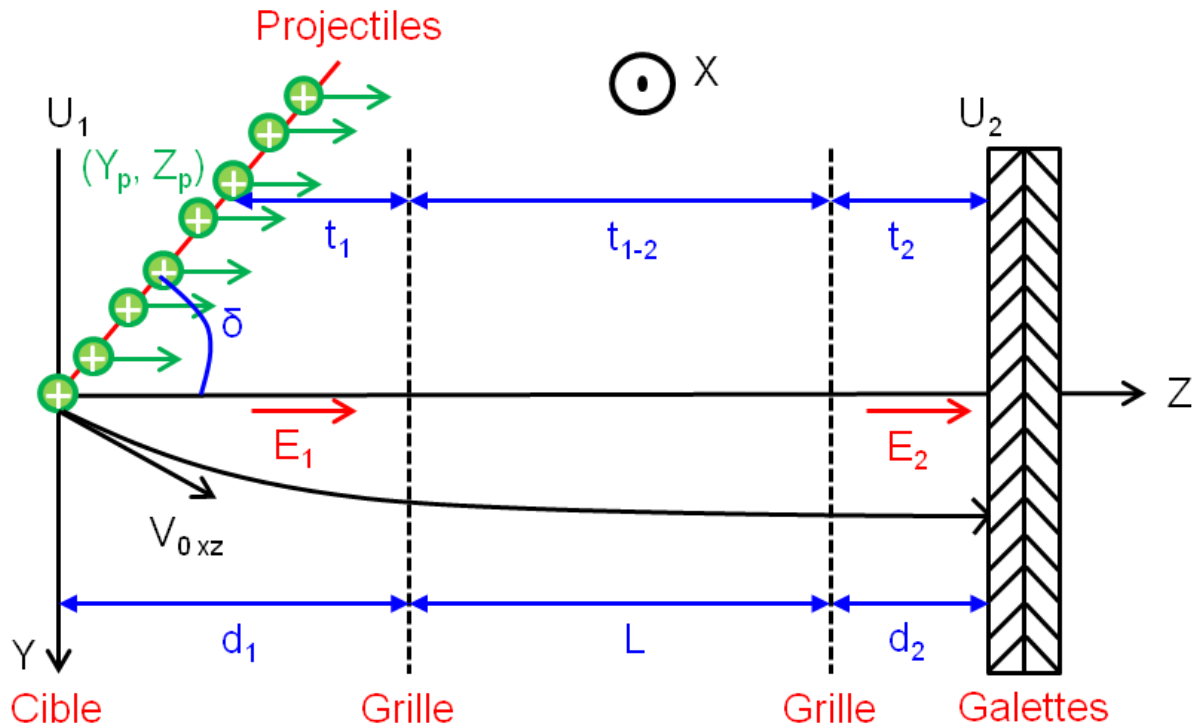


Figure 5-2 : Schéma de l'ionisation du gaz par le faisceau d'ions dans le cas d'un spectromètre à deux grilles.

$TOF_{deux\ grilles}$

$$\begin{aligned}
 &= \left( \frac{2md_1 |d_1 - \cot(\delta)y_p|}{qU_1} \right)^{1/2} \\
 &+ \frac{md_2}{qU_2} \left[ \left( \frac{2qU_2 |d_1 - y_p \cot(\delta)y_p|}{md_1} \right)^{1/2} - \left( \frac{2qU_1 |d_1 - \cot(\delta)y_p|}{md_1} \right)^{1/2} \right] \\
 &- \frac{y_p}{\sin(\delta)v_p} + \frac{L}{\sqrt{\frac{2qU_1(d_1 - z_p)}{md_1}}}
 \end{aligned}$$

# Annexe 2

## Expression du temps de vol TOF des ions secondaires

Dans cette annexe, nous nous intéresserons à la détermination du temps de vol des ions secondaires.

### 1 - Spectromètre à une grille

Le temps de vol des ions secondaires dans le cas du spectromètre à une grille est :

$$TOF_{une\ grille} = t_1 + t_2$$

a) Deuxième loi de Newton

$$F = ma = qE \rightarrow \frac{d^2x}{dt^2} = \frac{qU}{md}$$

$$\frac{dx}{dt} = \frac{qUt}{md} + v_0$$

$$\rightarrow v_1 = \frac{qU_1 t_1}{md_1} + v_{0z} \text{ et } t_1 = \frac{md_1}{qU_1} \left( \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - v_{0z} \right)$$

$$\rightarrow v_2 = \frac{qU_2 t_2}{md_2} + v_1 \text{ et } t_2 = \frac{md_2}{qU_2} \left( \sqrt{\frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \right)$$

b) Théorie de l'énergie cinétique

$$\Delta E_c = \sum W_{ext} \rightarrow \frac{1}{2}mv^2 - \frac{1}{2}mv_0^2 = qU$$

Donc :

$$v_1 = \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \text{ et } v_2 = \sqrt{\frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2}$$

D'où :

$$t_1 = \frac{md_1}{qU_1} \left( \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - v_{0z} \right) \text{ et } t_2 = \frac{md_2}{qU_2} \left( \sqrt{\frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \right)$$

Le temps de vol est donc :

$$TOF_{\text{une grille}} = \frac{md_1}{qU_1} \left( \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - v_{0z} \right) + \frac{md_2}{qU_2} \left( \sqrt{\frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \right)$$

## 2 - Spectromètre à deux grilles

Le temps de vol des ions secondaires dans le cas du spectromètre à deux grilles est :

$$TOF_{\text{deux grilles}} = t_1 + t_2 + t_{1-2} = TOF_{\text{une grille}} + t_{1-2}$$

$$TOF_{\text{deux grilles}} = \frac{md_1}{qU_1} \left( \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - v_{0z} \right) + \frac{L}{\sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2}} + \frac{md_2}{qU_2} \left( \sqrt{\frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \right)$$

# Annexe 3

## Calcul du vecteur vitesse

Pour calculer le vecteur vitesse pour un ion donné, il faut sélectionner les bons événements. La figure 5-3 montre un exemple de sélection des bons événements de l'ion  ${}^7\text{Li}^+$ . Cette sélection est réalisée entre le temps de vol minimal  $\text{TOF}_{\min}$ , correspondant aux énergies maximales, et le temps de vol maximal  $\text{TOF}_0$  ( $v_{0z} = 0$ ) correspondant aux énergies nulles.

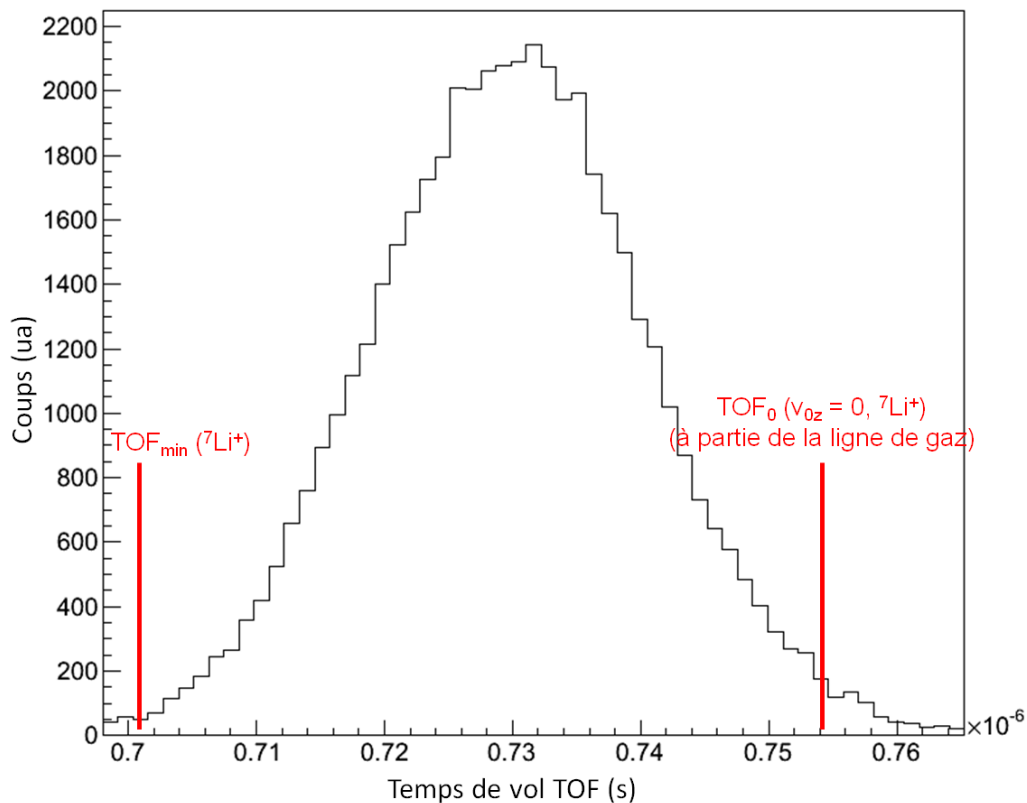


Figure 5-3 : Sélection des bons événements de l'ion  ${}^7\text{Li}^+$  pour le système de collision  $\text{Ge}^{28+}$  (690 MeV) sur une cible de LiF de 106 nm d'épaisseur.

Le programme "calculvitesse.C" est une routine informatique écrite en langage C++ qui sert à calculer les distributions en énergie et en angle pour un ion spécifique.

Code du programme "calculvitesse.C" (cas du spectromètre à une grille) :

```
void Vitesse()
{
d1 = 103.4e-3;
d2 = 12e-3;
e = 1.6021e-19;
champ1 = U1/d1;
champ2 = U2/d2;
```

## Annexes

```
m = masse*1.661e-27;
acc1 = e/m*champ1;
acc2 = e/m*champ2;

vx = (x/tof);
vy = (y/tof);
v0 = - tof*acc1 + sqrt( 2 * acc1 * d1) + d2 * sqrt(acc1 /2 / d1);

for ( i=0; i<10; ++i)
{
v1z0 = sqrt( (v0*v0) + ((2*e/m) * U1));
v2z0 = sqrt( (v1z0*v1z0)+ ((2*e/m) * U2));
testTOF=( d1 / ((v0 + v1z0)/2)) + (d2 /((v1z0 +v2z0)/2));
v1 = 1.01 * v0;
v1z1 = sqrt( (v1*v1) + ((2*e/m) * U1));
v2z1 = sqrt( (v1z1*v1z1)+ ((2*e/m) * U2));

if(((v1+v1z1) !=0.0) && ((v1z1+ v2z1) != 0.0)){
vz = v0;
mod = vx*vx + vy*vy + vz*vz;
module = sqrt(mod);
energie = 0.5*m*(module*module)/e;
mod = vx*vx;
module = sqrt(mod);
ex = 0.5*m*(module*module)/e;
mod = vy*vy;
module = sqrt(mod);
ey = 0.5*m*(module*module)/e;
mod = vz*vz;
module = sqrt(mod);
ez = 0.5*m*(module*module)/e;

if(vz > 0){
teta = atan(vt/vz)*TMath::RadToDeg();
if (vx!=0){
phi = atan(vy/vx)*TMath::RadToDeg();
}
tsinp=teta*sin(phi*TMath::DegToRad());
tcosp=teta*cos(phi*TMath::DegToRad());
if((vy > (-0.05*vz)) && (vy < (0.05*vz))){
tetaper = atan(vx/vz)*TMath::RadToDeg();
}

if((vx > (-0.05*vz)) && (vx < (0.05*vz))){
tetapar = atan(vy/vz)*TMath::RadToDeg();
}
}
```

# Annexe 4

## Incertitudes

Cette annexe présente les calculs d'incertitudes pour les différents paramètres : les positions X et Y, le temps de vol TOF et les distributions en énergie N(E).

### 1 - Incertitudes sur les positions X et Y

$$X = X_1 - X_2 = 2X_1 - \text{sum}X \text{ et } Y = Y_1 - Y_2 = 2Y_1 - \text{sum}Y$$

$$\text{sum}X = X_1 + X_2 \text{ et } \text{sum}Y = Y_1 + Y_2$$

Les incertitudes sur  $X_1$ ,  $X_2$ ,  $Y_1$  et  $Y_2$  proviennent principalement des réglages des CFD. Elles sont de l'ordre de 2 ns.

$$\Delta X = 2\Delta X_1 \text{ et } \Delta Y = 2\Delta Y_1$$

### 2 - Incertitudes sur le temps de vol TOF

L'incertitude sur le temps de vol dépend essentiellement :

- Des réglages de l'électronique de détection, en particulier des CFD.
- De la structure temporelle du faisceau.

Elle est égale à :

$$\Delta TOF = \Delta TOF_{\text{électronique}} + \Delta TOF_{\text{largeur du paquet d'ions}}$$

Avec  $\Delta TOF_{\text{électronique}}$  : incertitude liée à l'électronique de détection

$\Delta TOF_{\text{largeur du paquet d'ions}}$  : incertitude liée à la structure temporelle du faisceau

### 3 - Incertitudes sur les distributions en énergie N(E)

Le calcul des distributions en énergie est décrit dans l'annexe 3.  
Les incertitudes sur les vitesses  $v_{0x}$ ,  $v_{0y}$  et  $v_{0z}$  sont définies par :

$$v_{0x} = \frac{x}{TOF} \quad \Delta v_{0x} = v_{0x} \sqrt{\frac{(\Delta x)^2}{x^2} + \frac{(\Delta TOF)^2}{TOF^2}} = \frac{x}{TOF} \sqrt{\frac{(\Delta x)^2}{x^2} + \frac{(\Delta TOF)^2}{TOF^2}}$$



## Annexes

$$v_{0y} = \frac{y}{TOF} \quad \Delta v_{0y} = v_{0y} \sqrt{\frac{(\Delta y)^2}{y^2} + \frac{(\Delta TOF)^2}{TOF^2}} = \frac{y}{TOF} \sqrt{\frac{(\Delta y)^2}{y^2} + \frac{(\Delta TOF)^2}{TOF^2}}$$

$$v_{0z} = \left[ \frac{\frac{qTOF^2}{2m} \left\{ \frac{d_1^2}{U_1} + \frac{d_2^2}{U_2} \left( 1 + \frac{2U_1}{U_2} \right) \right\}}{m \left( \frac{d_1^2}{U_1^2} + \frac{d_2^2}{U_2^2} \right)} \right]^{1/2} \quad (\text{cas du spectromètre à une grille})$$

$$\Delta v_{0z} = v_{0z} \frac{\Delta TOF}{TOF} = \left[ \frac{\frac{qTOF^2}{2m} \left\{ \frac{d_1^2}{U_1} + \frac{d_2^2}{U_2} \left( 1 + \frac{2U_1}{U_2} \right) \right\}}{m \left( \frac{d_1^2}{U_1^2} + \frac{d_2^2}{U_2^2} \right)} \right]^{1/2} \frac{\Delta TOF}{TOF}$$

L'incertitude sur les distributions en énergie est déterminée à l'aide de la formule suivante (cas du spectromètre à une grille) :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta E}{E} &= \frac{2(v_{0x}\Delta v_{0x} + v_{0y}\Delta v_{0y} + v_{0z}\Delta v_{0z})}{v_{0x}^2 + v_{0y}^2 + v_{0z}^2} \\ &= \frac{2 \left( \frac{x^2}{TOF^2} \sqrt{\frac{(\Delta x)^2}{x^2} + \frac{(\Delta TOF)^2}{TOF^2}} + \frac{y^2}{TOF^2} \sqrt{\frac{(\Delta y)^2}{y^2} + \frac{(\Delta TOF)^2}{TOF^2}} + \left[ \frac{\frac{qTOF^2}{2m} \left\{ \frac{d_1^2}{U_1} + \frac{d_2^2}{U_2} \left( 1 + \frac{2U_1}{U_2} \right) \right\}}{m \left( \frac{d_1^2}{U_1^2} + \frac{d_2^2}{U_2^2} \right)} \right] \frac{\Delta TOF}{TOF} \right)}{\frac{x^2}{TOF^2} + \frac{y^2}{TOF^2} + \left[ \frac{\frac{qTOF^2}{2m} \left\{ \frac{d_1^2}{U_1} + \frac{d_2^2}{U_2} \left( 1 + \frac{2U_1}{U_2} \right) \right\}}{m \left( \frac{d_1^2}{U_1^2} + \frac{d_2^2}{U_2^2} \right)} \right]} \end{aligned}$$

## 4 - Incertitudes sur les distributions en angle $N(\theta)$

Le calcul des distributions en angle est décrit dans l'annexe 3.

Les incertitudes sur la vitesse  $v_t$  sont définies par :

$$v_t = \sqrt{v_{0x}^2 + v_{0y}^2} \quad \Delta v_t = \frac{v_{0x}\Delta v_{0x} + v_{0y}\Delta v_{0y}}{v_t}$$

L'incertitude sur les distributions en angle est déterminée à l'aide de la formule suivante (cas du spectromètre à une grille) :

$$\Delta \theta = \frac{\Delta v_t + \frac{v_t \Delta v_z}{v_z}}{v_z \cos v_t / v_z} \tan \left( \frac{v_t}{v_{0z}} \right)$$

# Annexe 5

## Méthodes d'étalonnage

L'étalonnage en positions et en temps de vol, décrit dans le chapitre 2, est réalisé à partir de la "ligne de gaz" et du pic photon. Ils n'ont été observés que pour des ions de haute énergie ( $\sim 10$  MeV/u). Pour les ions de basse vitesse, il est nécessaire d'élaborer une autre méthode d'étalonnage. Dans la suite de cette annexe, nous décrirons cette méthode.

### 1 - Etalonnage en positions X et Y

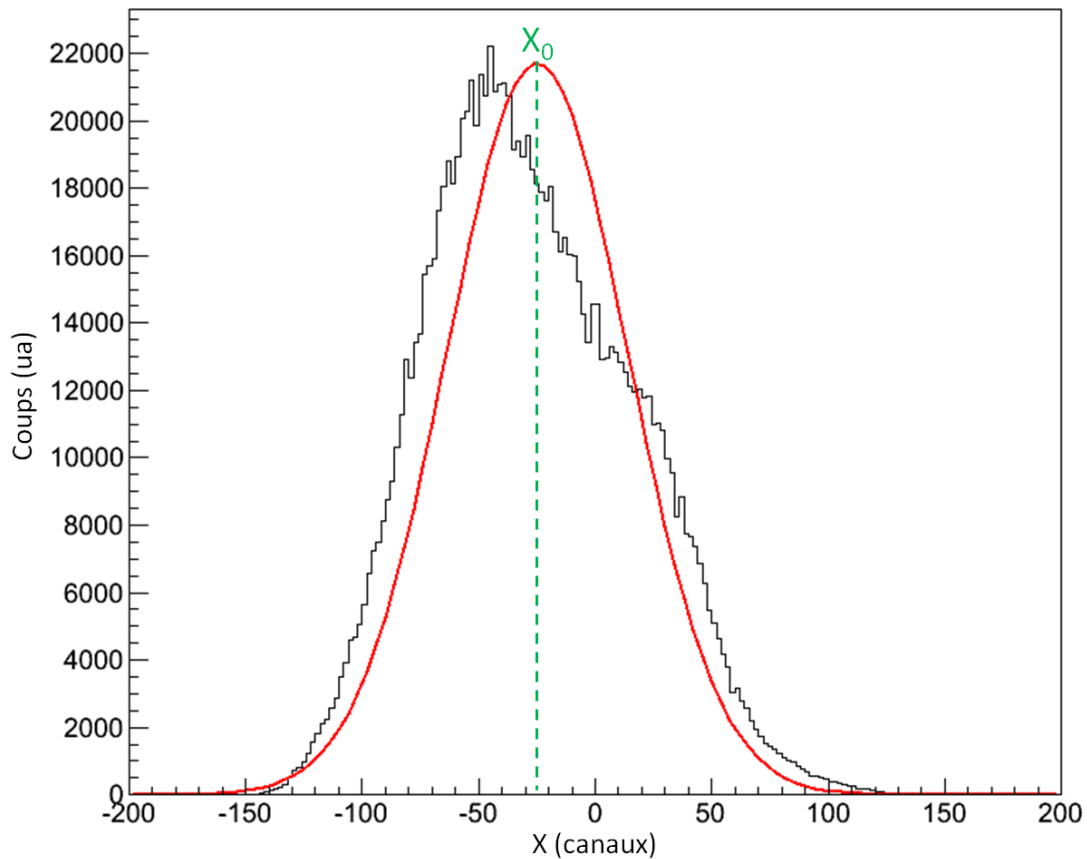
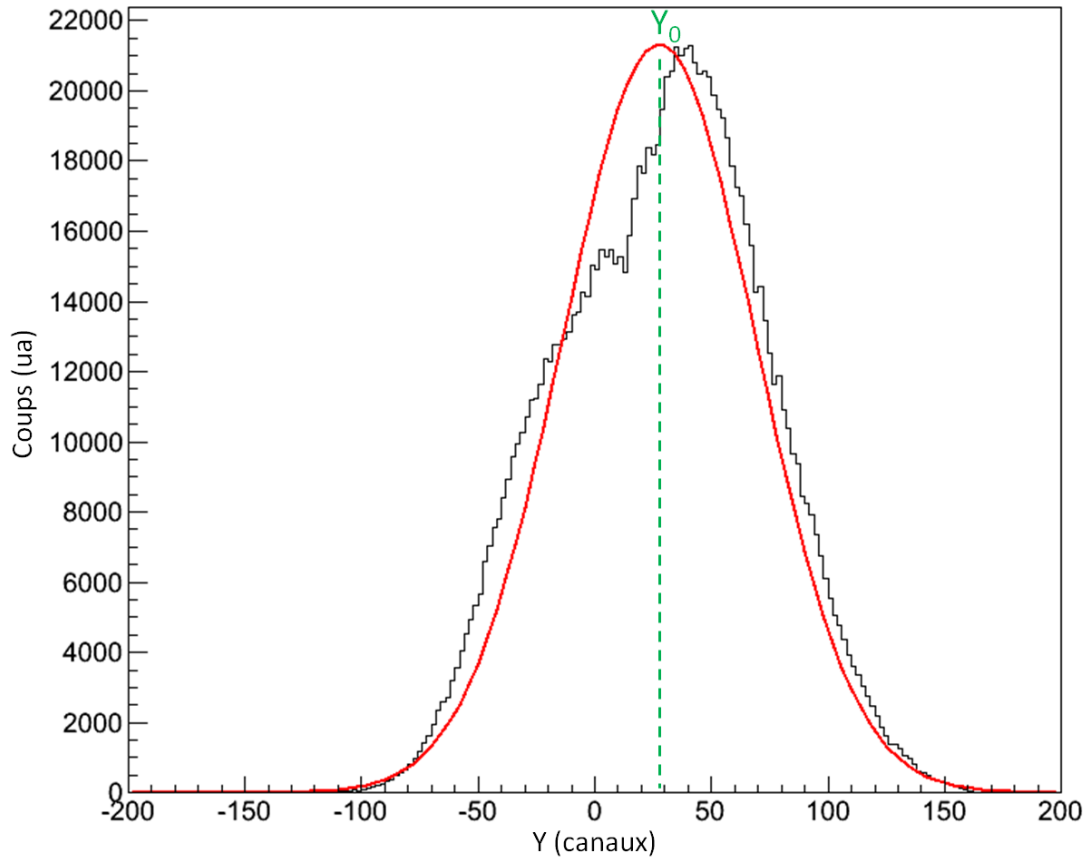


Figure 5-4 : Distribution de la position X. Elle est ajustée par une fonction gaussienne (courbe rouge).

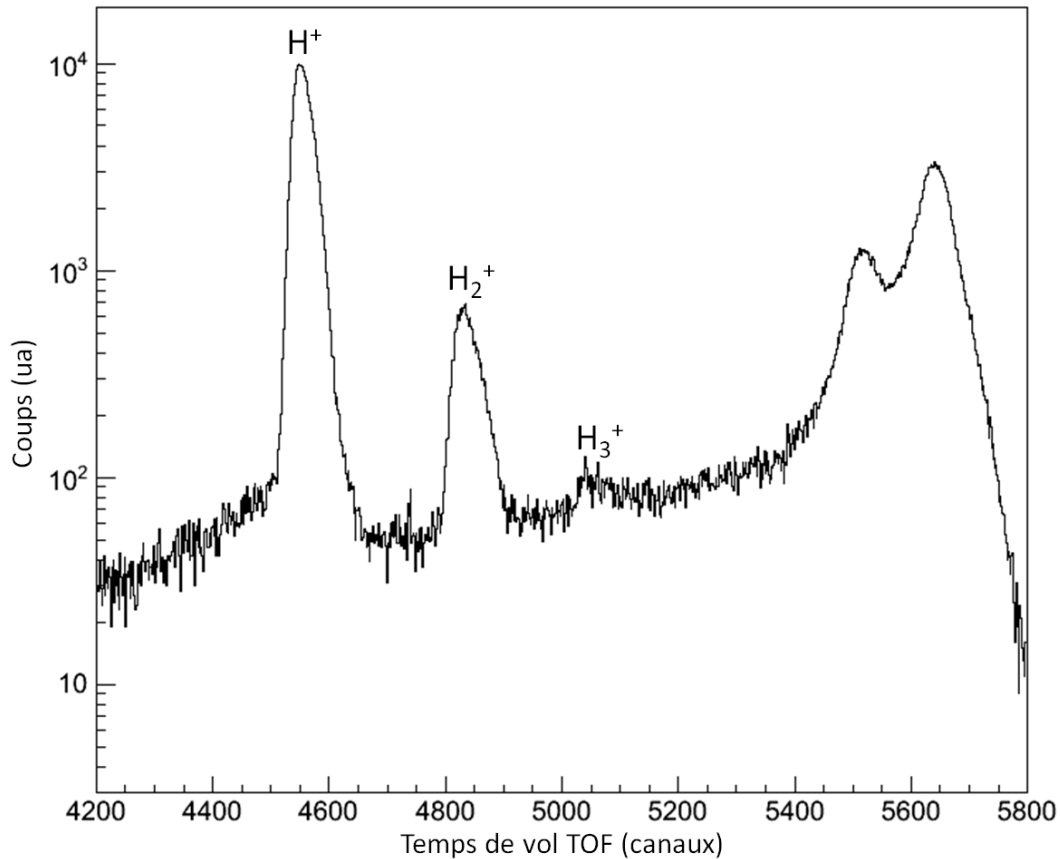


**Figure 5-5 : Distribution de la position Y. Elle est ajustée par une fonction gaussienne (courbe rouge).**

Afin de réaliser l'étalonnage en positions X et Y, il est nécessaire de connaître les positions  $X_0$  et  $Y_0$ , correspondant à l'extrémité de la "ligne de gaz" au niveau de la cible. Les distributions X et Y sont ajustées avec une fonction gaussienne (figures 5-4 et 5-5). Le maximum de la gaussienne correspond aux positions  $X_0$  et  $Y_0$ .

## 2 - Etalonnage en temps de vol et en masse

L'étalonnage en temps s'effectue, pour les expériences de haute énergie, par l'intermédiaire du pic photon. Pour les expériences de basse énergie, ce pic n'est pas observé. Nous déterminerons dans la suite de ce paragraphe, la position "virtuelle" du pic photon par l'intermédiaire des pics associés à l'hydrogène :  $H^+$ ,  $H_2^+$  et  $H_3^+$ , espèces omniprésentes sur les spectres de temps de vol (figure 5-6).



**Figure 5-6 : Spectre de temps de vol pour le système de collision  $Xe^{15+}$  (225 keV) sur une cible de LiF monocristallin, avec une tension d'extraction de 200 V et un angle d'incidence de 47° par rapport à la normale à la surface.**

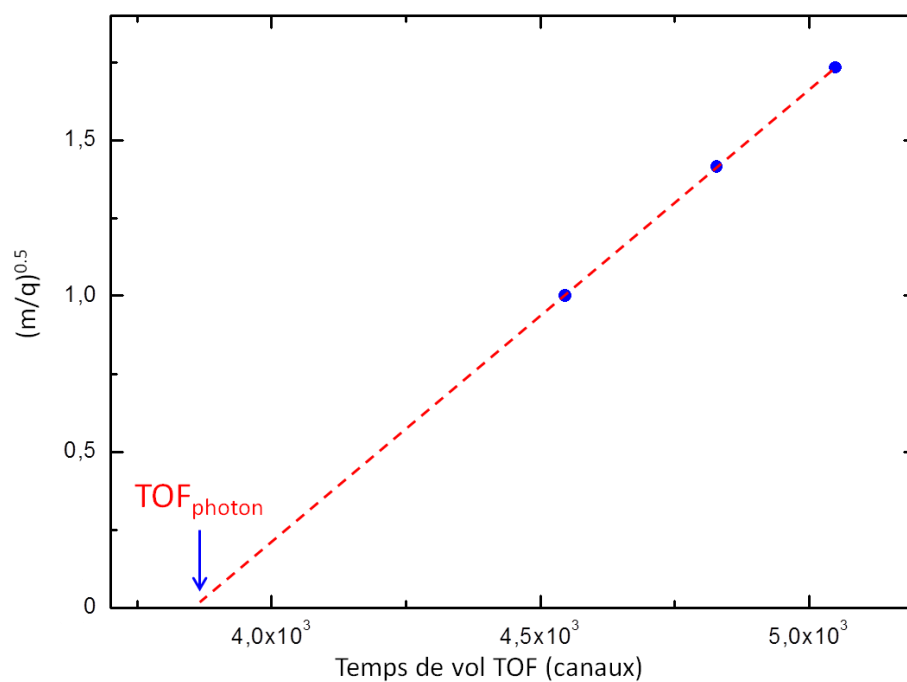


Figure 5-7 :  $\sqrt{m/q}$  en fonction du temps de vol pour les espèces  $H^+$ ,  $H_2^+$  et  $H_3^+$ .

Le temps de vol des ions secondaires (en canal), déterminé à l'aide des spectres de masse, est proportionnel à  $\sqrt{m/q}$  (formules 2-7 et 2-10). Il est possible de tracer, pour les espèces  $H^+$ ,  $H_2^+$  et  $H_3^+$ ,  $\sqrt{m/q}$  en fonction du temps de vol (figure 5-7). L'ordonnée à l'origine correspond au temps de vol d'une masse nulle, le pic photon.

# Annexe 6

## Energie de libération

Par l'intermédiaire des distributions en énergie, il est possible de déterminer la proportion de particules qui est retenue par le champ gravitationnel de l'astre et qui peut contribuer à la création de son exosphère. Pour obtenir ces valeurs, il est nécessaire de calculer les énergies de libération caractéristiques de chaque ion pulvérisé. La formule est :

$$E_l = \frac{1}{2} m_{ion\ pulvérisé} v_l^2$$

Avec  $v_l$  la vitesse de libération caractéristique de l'astre.

$$v_l = \sqrt{\frac{2GM}{R}}$$

Avec G : la constante gravitationnelle et  $G = 6.67 \times 10^{-11} \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1} \text{ s}^{-1}$ .

M : la masse de l'astre, en kg.

R : le rayon de l'astre, considérant que l'objet est à la surface de l'astre, en m.

# Annexe 7

## Fluorure de lithium

Au cours de cette thèse, de nombreuses expériences ont été réalisées avec des cibles de LiF. Le chapitre 3 décrit l'effet des ions lourds rapides et lents sur ce matériau. Dans cette annexe sont présentés les spectres de masses des ions positifs éjectés de cible de LiF de 0.6 et 1.6 nm, irradiée par un faisceau de  $\text{Ni}^{24+}$  (630 MeV).

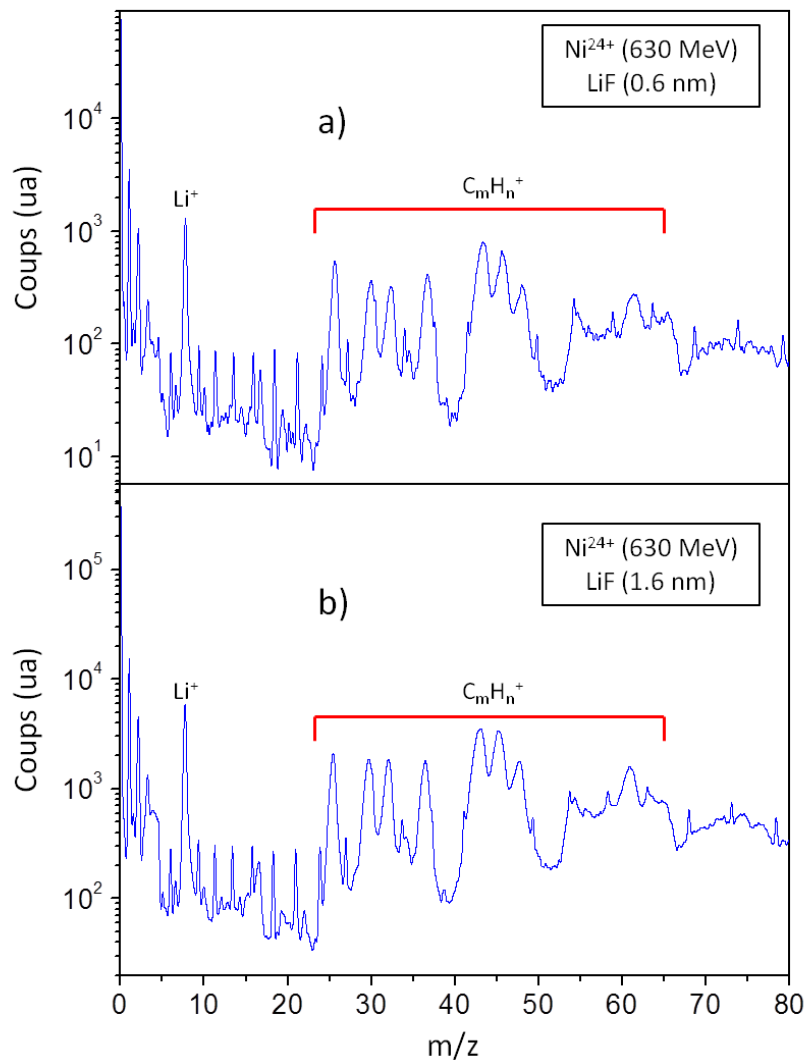


Figure 5-8 : Spectres de masses pour les systèmes de collision  $\text{Ni}^{24+}$  (630 MeV) sur des cibles de LiF polycristallin d'épaisseur (a) 0.6 nm et (b) 1.6 nm.

Bien que le monomère  $\text{Li}^+$  soit observé, les pics associés aux hydrocarbures  $\text{C}_m\text{H}_n^+$  (contamination surfacique) dominent les spectres de masses. Les dépôts de LiF ne sont probablement pas homogènes. Le substrat doit être recouvert d'îlots de LiF. Lors de l'irradiation, des hydrocarbures provenant du substrat de cuivre peuvent donc être éjectés en même temps que les particules issues du LiF.

# Annexe 8

## Silicates d'intérêt astrophysique

Le chapitre 4 présente les résultats concernant l'interaction entre des ions lourds rapides et lents sur la néphéline. Lors du mon séjour à l'université catholique de Rio de Janeiro, d'autres silicates ont été étudiés avec le dispositif de temps de vol induit par des fragments de fission. Nous nous sommes intéressés, tout particulièrement, à l'anorthite, la jadéite et le  $\text{SiO}_2$ . Ces matériaux, tout comme la néphéline, sont des analogues de la surface de la planète Mercure [Sangiorgio 2014]. La préparation des échantillons est décrite dans le chapitre 2.

### 1 - L'anorthite

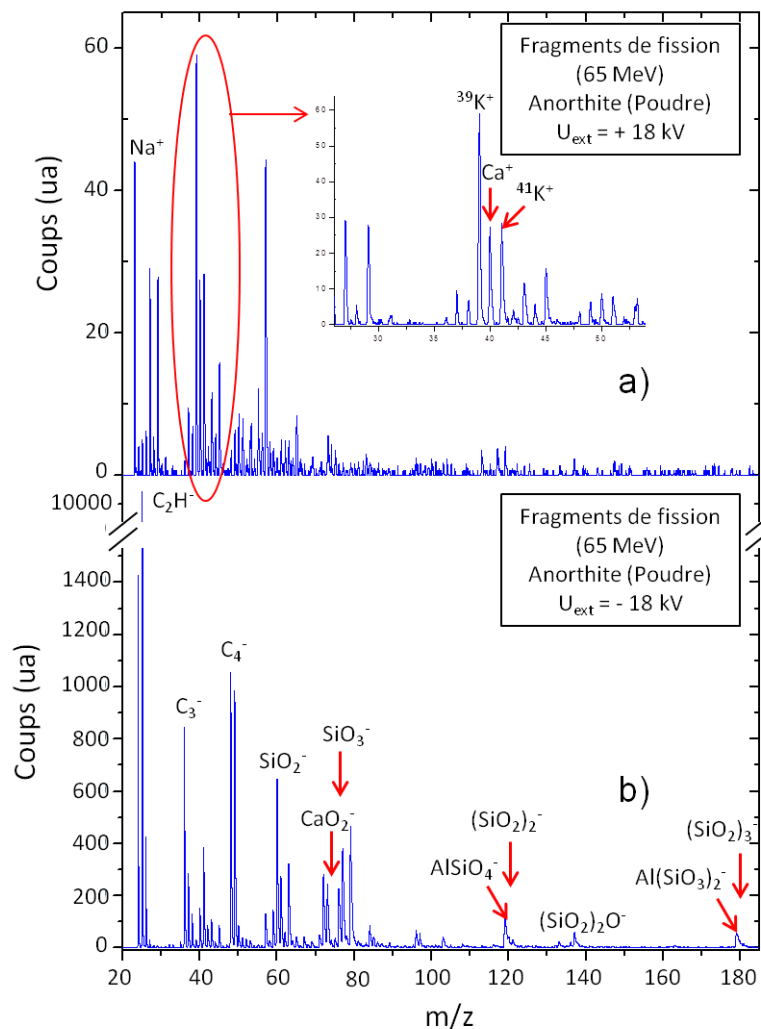


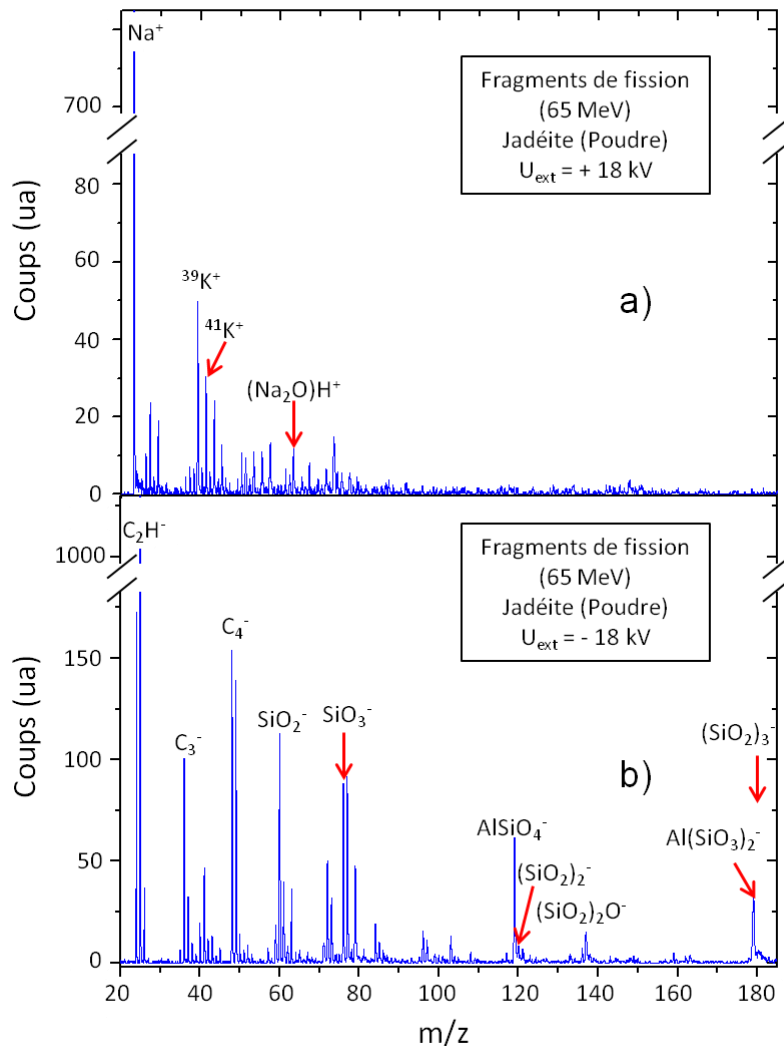
Figure 5-9 : Spectres de masses des ions a) positifs et b) négatifs éjectés de l'anorthite irradiée par des fragments de fissions ( $\langle E \rangle = 65 \text{ MeV}$ ), à température ambiante et dans des conditions de vide standard (pression =  $7 \times 10^{-6} \text{ mbar}$ ).



Le pic de masse 40, observé sur le spectre de masses des ions positifs, est attribué à  $\text{Ca}^+$ . Les pics associés à  $\text{Na}^+$  et  $\text{K}^+$  (contaminations surfaciques) sont aussi présents.

Dans le spectre de masse des ions négatifs, la série d'agrégats  $(\text{SiO}_2)_n^-$ ,  $n$  variant de 1 à 3, est observée. Les pics associés aux masses 76, 113 et 179 sont alloués à  $\text{SiO}_3^-$ ,  $\text{Al}_3\text{O}_2^-$  et  $\text{Al}(\text{SiO}_3)_2^-$ . Les hydrocarbures  $\text{C}_x\text{H}_x^-$  sont abondamment présents sur ce spectre.

## 2 - La jadéite



**Figure 5-10 : Spectres de masses des ions a) positifs et b) négatifs éjectés de la jadéite irradiée par des fragments de fissions ( $\langle E \rangle = 65 \text{ MeV}$ ), à température ambiante et dans des conditions de vide standard (pression =  $7 \times 10^{-6} \text{ mbar}$ ).**

Dans le spectre de masses des ions positifs, les espèces  $\text{Na}^+$  et  $(\text{Na}_2\text{O})\text{H}^+$  sont observées.

Le spectre de masses des ions négatifs est caractérisé par la série d'agrégats  $(\text{SiO}_2)_n^-$ ,  $n$  variant de 1 à 3. Les pics correspondants aux masses 76, 113 et 179 sont attribués à  $\text{SiO}_3^-$ ,  $\text{Al}_3\text{O}_2^-$  et  $\text{Al}(\text{SiO}_3)_2^-$ . Une forte contamination surfacique de type  $\text{C}_x\text{H}_x^-$  est présente sur ce spectre.

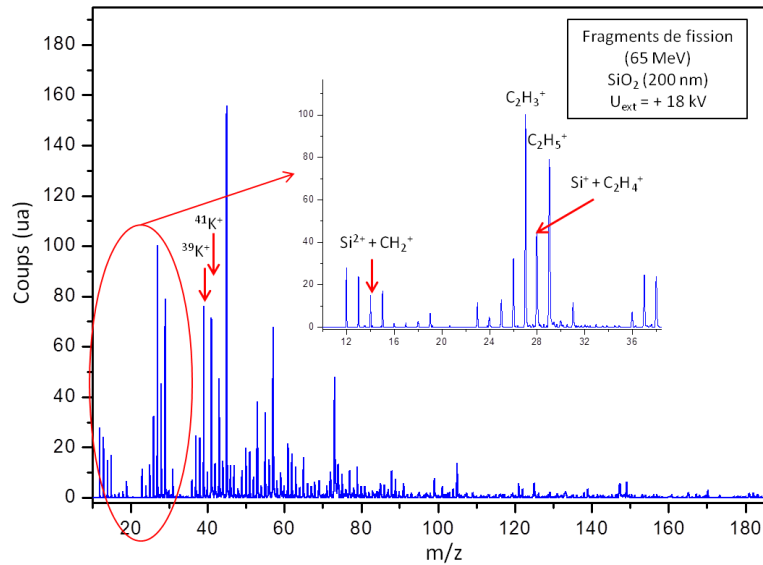
3 - Le SiO<sub>2</sub>

Figure 5-11 : Spectre de masse des ions positifs éjectés du SiO<sub>2</sub> irradiée par des fragments de fissions ( $\langle E \rangle = 65$  MeV) dans des conditions de vide standard (pression =  $7 \times 10^{-6}$  mbar). L'échantillon a été chauffé ex-situ à 60° pendant 1 h.

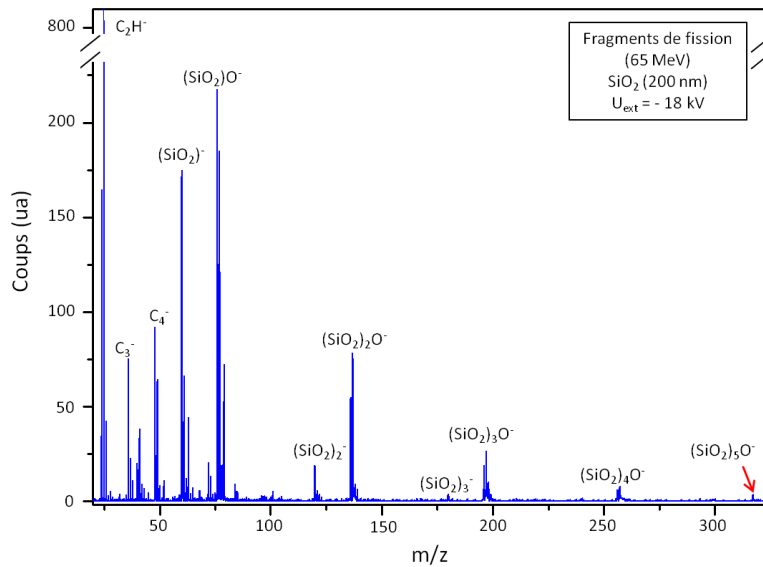
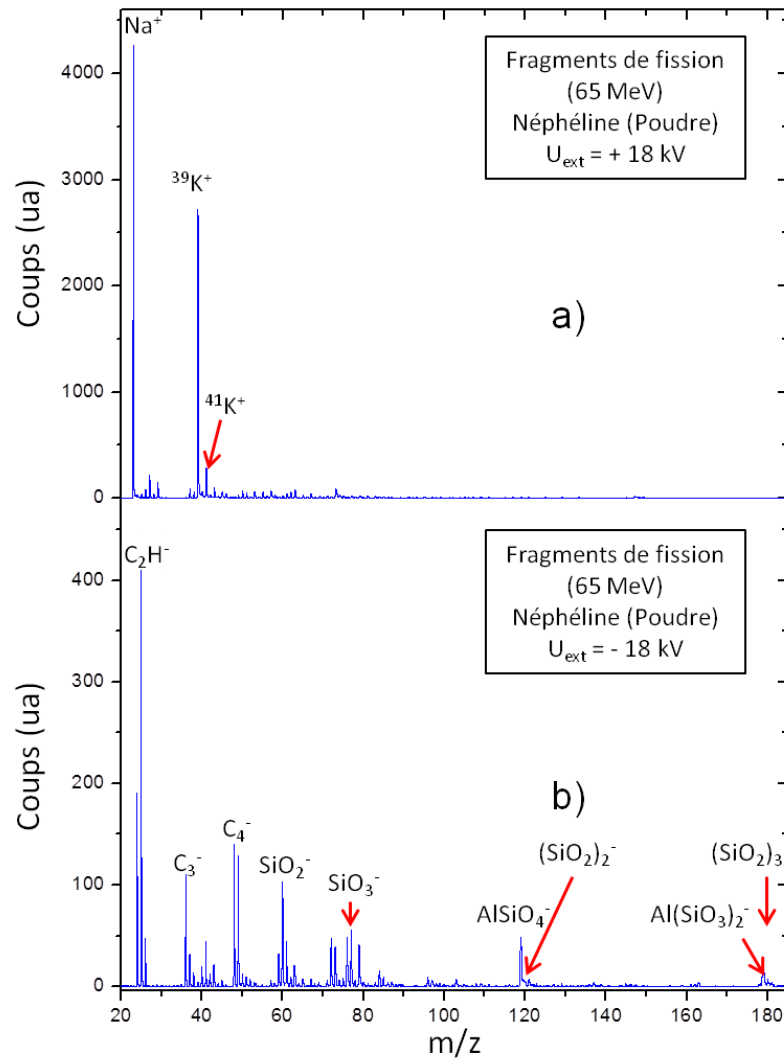


Figure 5-12 : Spectre de masse des ions négatifs éjectés du SiO<sub>2</sub> irradiée par des fragments de fissions ( $\langle E \rangle = 65$  MeV) dans des conditions de vide standard (pression =  $7 \times 10^{-6}$  mbar). L'échantillon a été chauffé ex-situ à 60° pendant 1 h.

Bien que les espèces Si<sup>+</sup> et Si<sup>2+</sup> soient observées, les pics associés aux hydrocarbures C<sub>m</sub>H<sub>n</sub><sup>+</sup> (contamination surfacique) dominent les spectres de masses des ions positifs.

Le spectre de masses des ions négatifs est caractérisé par les séries d'agrégats (SiO<sub>2</sub>)<sub>n</sub><sup>-</sup> (n = 1-3) et (SiO<sub>2</sub>)<sub>n</sub>O<sup>-</sup> (n = 1-5).

## 4 - La néphéline



**Figure 5-13 : Spectres de masses des ions a) positifs et b) négatifs éjectés de la néphéline irradiée par des fragments de fissions ( $\langle E \rangle = 65 \text{ MeV}$ ), à température ambiante et dans des conditions de vide standard (pression =  $7 \times 10^{-6} \text{ mbar}$ ).**

Le spectre de masses des ions positifs est caractérisé par des pics de masse 23, 39 et 41 attribués à  $\text{Na}^+$ ,  $^{39}\text{K}^+$  et  $^{41}\text{K}^+$ .

La série d'agrégats  $(\text{SiO}_2)_n^-$  ( $n = 1-3$ ) ainsi que les espèces  $\text{SiO}_3^-$ ,  $\text{Al}_3\text{O}_2^-$  et  $\text{Al}(\text{SiO}_3)_2^-$  sont observées sur le spectre de masses des ions négatifs.

# Bibliographie

## Bibliographie

- [Allamandola 1989]: L.J. Allamandola, A.G.G.M. Tielens, J.R. Barker, *The Astrophysical Journal Supplement series* **71** (1989) 733-735.
- [Andersen 1985]: H.H. Andersen, B. Stenum, T. Sørensen, H.J. Whitlow, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **6** (1985) 459-465.
- [Aoyama 1996]: T. Aoyama, M. Tanemura, F. Okuyama, *Applied Surface Science* **100/101** (1996) 351-354.
- [Assmann 2007]: W. Assmann, M. Toulemonde, C. Trautmann, “Sputtering by Particle Bombardment: Experiments and Computer Calculations from Threshold to MeV Energies” (Springer Topics in Applied Physics), Rainer Behrisch and Wolfgang Eckstein (Editors), Springer Verlag (Berlin, New York, Heidelberg) (2007) 401-448.
- [Aumayr 1999]: F. Aumayr, J. Burgdörfer, P. Varga, HP. Winter, *Communication in Atomic and Molecular Physics* **34** (1999) 201-219.
- [Aumayr 2003]: F. Aumayr, H. Winter, *Philosophical Transactions of the Royal Society A* **362** (2004) 77-102.
- [Baragiola 2002]: R.A. Baragiola, C.L. Atteberry, C.A. Dukes, M. Famà, B.D. Teolis, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **193** (2002) 720-726.
- [Baragiola 2003]: R.A. Baragiola, R.A. Vidal, W. Svendsen, J. Schou, M. Shi, D.A. Bahr, C.L. Atteberry, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **209** (2003) 294-303.
- [Baranov 1988]: I.A. Baranov, Y.V. Martynenko, S.O. Tsepelevich, Y.N. Yavlinskii, *Soviet Physics Uspekhi* **31** (1988) 1015-1034.
- [Barghouty 2011]: A.F. Barghouty, F.W. Meyer, P.R. Harris, J.H. Adams Jr., *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **269** (2011) 1310-1315.
- [Barros 2011]: A.L.F. de Barros, A. Domaracka, D.P.P. Andrade, P. Boduch, H. Rothard, E.F. da Silveira, *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society* **418** (2011) 1363-1374.
- [Bennett 2013]: C.J. Bennett, C. Pirim, T.M. Orlando, *Chemical Review* **113** (2013) 9086-9150.
- [Bethe 1933]: H. Bethe, *Handbuch der Physik* **14** (1933) 491.
- [Betz 1994]: G. Betz, K. Wien, *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes* **140** (1994) 1-110.
- [Biermann 2010]: P.L. Biermann, J.K. Becker, J. Dreyer, A. Meli, E.S. Seo, T. Stanev, *The Astrophysical Journal* **725** (2010) 184-187.
- [Biersack 1968]: J.P. Biersack, *Zeitschrift für Physik* **211** (1968) 495-501.
- [Bitsensky 1979]: I.S. Bitsensky, M.N. Murakmetov, E.S. Parilis, *Zhur. Tek. Fiz. SSSR* **49** (1979) 1044.

## Bibliographie

[Bitensky 1987]: I.S. Bitensky, E.S. Parilis, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **21** (1987) 26-36.

[Boduch 2012]: P. Boduch, A. Domaracka, D. Fulvio, T. Langlinay, X.Y. Lv, M.E. Palumbo, H. Rothard, G. Strazzulla, *Astronomy and Astrophysics* **544** (2012) A30.

[Bolbach 1987]: G. Bolbach, S. Della Negra, C. Deprun, Y. LeBeyec, K.G. Standing, *Rapid Communications in Mass Spectrometry* **1** (1987) 22-24.

[Boogert 2004]: A.C.A. Boogert, K.M. Pontoppidan, F. Lahuis, J.K. Jørgensen, J. Augereau, G.A. Blake, T.Y. Brooke, J. Brown, C.P. Dullemond, N.J. Evans, V. Geers, M.R. Hogerheijde, J. Kessler-Silacci, C. Knez, P. Morris, A. Noriega-Crespo, F.L. Schoier, E.F. van Dishoeck, L.E. Allen, P.M. Harvey, D.W. Koerner, L.G. Mundy, P.C. Myers, D.L. Padgett, A.I. Sargent, K.R. Stapelfeldt, *The Astrophysical Journal Supplement Series* **154** (2004) 359-362.

[Boudjadar 2005]: S. Boudjadar, F. Haranger, T. Jallowy, A. Robin, B. Ban-d'Etat, T. Been, P. Boduch, H. Lebius, B. Manil, L. Maunoury, H. Rothard, *European Physical Journal D* **32** (2005) 19-24.

[Brandt 1982]: W. Brandt, M. Kitagawa, *Physical Review B* **25** (1982) 5631-5637.

[Bringa 2000]: E.M. Bringa, R.E. Johnson, *Surface Science* **451** (2000) 108-115.

[Brown 1980a]: W.L. Brown, W.M. Augustyniak, E. Brody, B. Cooper, L.J. Lanzerotti, A. Ramirez, R. Evatt, R.E. Johnson, *Nuclear Instruments and Methods B* **170** (1980) 321-325.

[Brown 1980b]: W.L. Brown, W.M. Augustyniak, L.J. Lanzerotti, R.E. Johnson, R. Evatt, *Physical Review Letter* **45** (1980) 1632-1635.

[Bruno 2007]: M. Bruno, G. Cremonese, S. Marchi, *Planetary and Space Science* **55** (2007) 1494-1501.

[Burke 2010]: D.J. Burke, W.A. Brown, *Physical Chemistry Chemical Physics* **12** (2010) 5947-5969.

[Cassette 2004]: P. Cassette, Mesures de radioactivité par scintillation liquide, Edition Techniques Ingénieur (2004) 2552-13.

[Cassidy 2010]: T. Cassidy, P. Coll, F. Raulin, R.W. Carlson, R.E. Johnson, M.J. Loeffler, K.P. Hand, R.A. Baragiola, *Space Science Revue* **153** (2010) 299-315.

[Cassidy 2013]: T.A. Cassidy, C.P. Paranicas, J.H. Shirley, J.B. Dalton III, B. D.Teolis, R.E. Johnson, L. Kamp, A.R. Hendrix, *Planetary and Space Science* **77** (2013) 64-73.

[Cecchi-Pestellini 2012]: C. Cecchi-Pestellini, M.A. Iatì, D.A. Williams, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer* **113** (2012) 2310-2320.

[Collado 2004]: V.M. Collado, L.S. Farenzena, C.R. Ponciano, E.F. da Silveira, K. Wien, *Surface Science* **569** (2004) 149-162.

## Bibliographie

- [Cooper 2001]: J.F. Cooper, R.E. Johnson, B.H. Mauk, H.B. Garrett, N. Gehrels, *Icarus* **149** (2001) 133-159.
- [Cooper 2003]: J.F. Cooper, E.R. Christian, J.D. Richardson, C. Wang, *Earth, Moon and Planets* **92** (2003) 261-277.
- [Costa 1927]: J.L. Costa, *Physical Review* **30** (1927) 349.
- [Dartois 2013]: E. Dartois, J. J. Ding, A.L.F. de Barros, P. Boduch, R. Brunetto, M. Chabot, A. Domaracka, M. Godard, X. Y. Lv, C. F. Mejia Guaman, T. Pino, H. Rothard, E. F. da Silveira, J. C. Thomas, *Astronomy & Astrophysics* **557** (2013) A97.
- [Dehant 2012]: V. Dehant, D. Breuer, P. Claeys, V. Debaille, J. De Keyser, E. Javaux, S. Goderis, O. Karatekin, T. Spohn, A. Vandaele, F. Vanhaecke, T. VanHoolst, V. Wilquet, *Planetary and Space Science* **72** (2012) 3-17.
- [Della-Negra 1990]: S. Della-Negra, J. Depauw, H. Joret, Y. Le Beyec, I. Bitensky, G. Bolbach, R. Galera, K. Wien, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **52** (1990) 121-128.
- [Demyk 1999]: K. Demyk, A.P. Jones, E. Dartois, P. Cox, L. D'Hendecourt, *Astronomy and Astrophysics* **349** (1999) 267-275.
- [Demyk 2001]: K. Demyk, P. Carrez, H. Leroux, P. Cordier, A.P. Jones, J. Borg, E. Quirico, P.I. Raynal, L. d'Hendecourt, *Astronomy and Astrophysics* **368** (2001) 38-41.
- [Demyk 2004]: K. Demyk, L. d'Hendecourt, H. Leroux, A.P. Jones, J. Borg, *Astronomy and Astrophysics* **420** (2004) 233-243.
- [Demyk 2011]: K. Demyk, *EPJ Web of Conferences* **18** (2011) 03001.
- [Ding 2013]: J.J. Ding, P. Boduch, A. Domaracka, S. Guillous, T. Langlinay, X.Y. Lv, M.E. Palumbo, H. Rothard, G. Strazzulla, *Icarus* **226** (2013) 860-864.
- [Dobrică 2010]: E. Dobrică, Thèse de l'université Paris Sud (2010).
- [Domaracka 2010]: A. Domaracka, E. Seperuelo Duarte, P. Boduch, H. Rothard, J.M. Ramillon, E. Dartois, S. Pilling, L.S. Farenzena, E.F. da Silveira, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **268** (2010) 2960-2963.
- [Dreebit 2008]: www.dreebit.com (2008)
- [Dukes 2011]: C.A. Dukes, W.Y. Chang, M. Famá, R.A. Baragiola, *Icarus* **212** (2011) 463-469.
- [Dulieu 2010]: F. Dulieu, L. Amiaud, E. Congiu, J.H. Fillion, E. Matar, A.Momeni, V. Pirronello, J.L. Lemaire, *Astronomy and Astrophysics* **512** (2010) A30.
- [Ehrenfreund 2000]: P. Ehrenfreund, W.A. Schutte, *Advances in Space Research* **25** (2000) 2177-2188.

## Bibliographie

- [Elsila 2009]: J.E. Elsila, D.P. Glavin, J.P. Dworkin, *Meteoritics & Planetary Science* **44** (2009) 1323-1330.
- [Espiau de Lamaestre 2006]: R. Espiau de Lamaestre, H. Bernas, *Physical Review* **B73** (2006) 125317.
- [Evatt 1980]: R. Evatt, R.E. Johnson, *Radiation effects* **52** (1980) 187-190.
- [Famà 2008]: M. Famà, J. Shi, R.A. Baragiola, *Surface Science* **602** (2008) 156-161.
- [Farenzena 2005]: L.S. Farenzena, P. Iza, R. Martinez, F.A. Fernandez-Lima, E. Seperuelo Duarte, G.S. Faraudo, C.R. Ponciano, E.F. da Silveira, M.G.P. Homem, A. Naves de Brito, K. Wien, *Earth, Moon, and Planets* **97** (2005) 311-329.
- [Fenyö 1990]: D. Fenyö, B.U.R Sundqvist, B.R. Karlson, R.E. Johnson, *Physical Review* **B42** (1990) 1895-1902.
- [Fernandez-Lima 2009]: F.A. Fernandez-Lima, O.P. Vilela Neto, A.S. Pimentel, C.R. Ponciano, M.A.C. Nascimento, E.F. da Silveira, *The Journal of Physical Chemistry* **A113** (2009) 1813-1821.
- [Ferreira-Rodrigues 2011]: A.M. Ferreira-Rodrigues, M.G.P. Homem, A. Naves de Brito, C.R. Ponciano, E.F. da Silveira, *International Journal of Mass Spectrometry* **306** (2011) 77-81.
- [Ferrière 2001]: K. Ferrière, *Reviews of Modern Physics* **73** (2001) 1031-1066.
- [Firsov 1959]: O.B. Firsov, *Soviet Physics JETP* **9** (1959) 1076-1080.
- [Fleischer 1967]: R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, *Physical Review* **156** (1967) 353-355.
- [Fornasier 2004]: S. Fornasier, E. Dotto, M.A. Barucci, C. Barbieri, *Astronomy and Astrophysics* **422** (2004) 43-46.
- [Gerhard 1975]: W. Gerhard, *Zeitschrift für Physik* **BB22** (1975) 31-39.
- [Godard 2011] : M. Godard, “*Les carbones amorphes hydrogénés : observations, synthèse et caractérisation en laboratoire de poussières interstellaires*”, Thèse de l’université Paris-Sud (2011).
- [Håkansson 1982]: P. Håkansson, I. Kamensky, B. Sundqvist, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **198** (1982) 43-51.
- [Hamamatsu]: Technical datasheet n°T.114, Hamamatsu
- [Hamza 1999]: A.V. Hamza, T. Schenkel, A. V. Barnes, *European Physical Journal* **D6** (1999) 83-87.



## Bibliographie

- [Hansen 1998]: C.S. Hansen, W.F. Calaway, B.V. King, M.J. Pellin, *Surface Science* **398** (1998) 211-220.
- [Haranger 2003]: F. Haranger, “*Etude de la pulvérisation du dioxyde d’uranium induite par des ions lourds multichargés de basse et très basse énergie cinétique ; effet de la charge du projectile*”, Thèse de l’université de Caen Basse-Normandie (2003).
- [Haranger 2006]: F. Haranger, B. Ban-d’Etat, P. Boduch, S. Bouffard, H. Lebius, L.Maunoury, H. Rothard, *European Physical Journal D***38** (2006) 501-506.
- [Hattas 1999]: M. Hattass, T. Schenkel, A.V. Hamza, A.V. Barnes, M.W. Newman, J.W. McDonald, T.R. Niedermayr, G.A. Machicoane, D.H. Schneider, *Physical Review Letter* **82** (1999) 4795-4798.
- [Hayashiuchi 1977]: Y. Hayashiuchi, Y. Kitazoe, T. Sekia, Y. Yamamura, *Journal of Nuclear Materials* **71** (1977) 181-186.
- [Hayderer 1999]: G. Hayderer, M. Schmid, P. Varga, H. Winter, F. Aumayr, L. Wirtz, C. Lemell, J. Burgdörfer, L. Hägg, C.O. Reinhold *Physical Review Letters* **83** (1999) 3948-3951.
- [Hedin 1985]: A. Hedin, P. Håkansson, B.U.R. Sundqvist, R.E. Johnson, *Physical Review* **B31** (1985) 1780-1787.
- [Herbst 2005]: E. Herbst, Q. Chang, H.M. Cuppen, *Journal of Physics: Conference Series* **6** (2005) 18-35.
- [Hijazi 2011a]: H. Hijazi, “*Interaction ions-surfaces : étude de la pulvérisation du fluorure de lithium LiF par technique d’imagerie XY-TOF-SIMS*”, Thèse de l’université de Caen Basse-Normandie (2011).
- [Hijazi 2011b]: H. Hijazi, H. Rothard, P. Boduch, I. Alzaher, F. Ropars, A. Cassimi, J.M. Ramillon, T. Been, B. Ban-d’Etat, H. Lebius, L.S. Farenzena, E.F da Silveira. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B***269** (2011) 1003-1006.
- [Hijazi 2011c]: H. Hijazi, L.S. Farenzena, H. Rothard, Ph. Boduch, P.L. Grande, E.F. da Silveira, *European Physical Journal D***63** (2011) 391-400.
- [Hijazi 2012]: H. Hijazi, H. Rothard, P. Boduch, I. Alzaher, T. Langlinay, A. Cassimi, F. Ropars, T. Been, J.M. Ramillon, H. Lebius, B. Ban-d’Etat, L.S. Farenzena, E.F. da Silveira, *European Physical Journal D***66** (2012) 305-309.
- [Hijazi 2014a]: H. Hijazi, T. Langlinay, H. Rothard, P. Boduch, F. Ropars, A. Cassimi, L. Farenzena, and E.F. da Silveira, *European Physical Journal D***68** (2014) 185-190.
- [Hijazi 2014b]: H. Hijazi, M.E. Bannister, H.M. Meyer III, C.M. Rouleau, A.F. Barghouty, D.L. Rickman, F.W. Meyer, *Journal of Geophysical Research: Space Physics* **119** (2014) 8006-8016.

## Bibliographie

- [Huber 1998]: H. Huber, W. Assmann, S.A. Karamian, H.D. Mieskes, H. Nolte, E. Gazis, M. Kokkoris, S. Kossionides, R. Vlastou, R. Grötzschel, A. Mücklich, W. Prusseit, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **146** (1998) 309-316.
- [Husinsky 1993]: W. Husinsky, G. Nicolussi, G. Betz, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **82** (1993) 323-328.
- [Imanishi 2000]: N. Imanishi, H. Ohta, S. Ninomiya, A. Itoh, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **164-165** (2000) 803-808.
- [Iza 2005]: P. Iza, R. Sigaud, L.S. Farenzena, C.R. Ponziano, E.F. da Silveira, *Brazilian Journal of Physics* **35** (2005) 921-929.
- [Jalowy 2004a]: T. Jalowy, L.S. Farenzena, C.R. Ponziano, H. Schmidt-Böcking, E.F. da Silveira, K.O. Groeneveld, *Surface Science* **557** (2004) 91-100.
- [Jalowy 2004b]: T. Jalowy, Th. Weber, R. Dorner, L. Farenzena, V. Collado, E.F. da Silveira, H. Schmidt-Böcking, K.O. Groeneveld, *International Journal of Mass Spectrometry* **231** (2004) 51-58.
- [Johnson 1987]: R.E. Johnson, B. Sundqvist, P. Håkansson, A. Hedin, M. Salehpour, G. Saeve, *Surface Science* **179** (1987) 187-198.
- [Johnson 1989]: R.E. Johnson, B.U. Sundqvist, A. Hedin, D. Fenyö, *Physical Review B* **40** (1989) 49-53.
- [Johnson 1990]: R.E. Johnson, *Energetic charged-particle interactions with atmospheres and surfaces* (Springer-Verlag Heidelberg) (1990).
- [Johnson 1992]: R.E. Johnson, B.U.R. Sundqvist, *Physics Today* **45** (1992) 28-36.
- [Johnson 1993]: R.E. Johnson, R.A. Baragiola, in *Ionization of Solids by Heavy Particles* (Ed.) (Plenum, 1993).
- [Johnson 1996]: R.E. Johnson, *Reviews of Modern Physics* **68** (1996) 305-312.
- [Johnson 1998]: R.E. Johnson, *Sputtering and Desorption from Icy surfaces, in Solar System Ices*, édition B. Schmitt, C. BeBergh, Kluwer Academic Publishers, Netherlands (1998) 303-334.
- [Johnson 2013]: R.E. Johnson, R. Carlson, T.A. Cassidy, M. Famà, *Sputtering of ices*, chapter in *Science of Solar System Ices*, édition M. Gutipati, J.C. castillo-Rogez, *Astrophysics and Space Science Library* **356** (2013) 551-581.
- [Jones 2014]: A.P. Jones, *Planetary and Space Science* **100** (2014) 26-31.
- [Kadish 2003]: *The Porphyrin Handbook: Applications of phthalocyanines*, Volume 19, publié par K.M. Kadish, K.M. Smith, R. Guillard (2003) 92.
- [Kaiser 2002]: R.I. Kaiser, *Chemical Reviews* **102** (2002) 1309-1358.

## Bibliographie

- [Kallio 2008]: E. Kallio, P. Wurz, R. Killen, S. McKenna-Lawlor, A. Milillo, A. Mura, S. Massetti, S. Orsini, H. Lammer, P. Janhunen, W.H. Ip, *Planetary and Space Science* **56** (2008) 1506-1516.
- [Karrer 2007]: R. Karrer, P. Bochsler, C. Giammanco, F.M. Ipavich, J.A. Paquette, P. Wurz, 2007, *Space Science Reviews* **130** (2007) 317-321.
- [Kemper 2004]: F. Kemper, W.J. Vriend, A.G.G.M. Tielens, *The Astrophysical Journal* **609** (2004) 826-837.
- [Können 1974]: G.P. Können, A. Tip, A.E. de Vries, *Radiation Effects* **21** (1974) 269-274.
- [Krems 2005]: M. Krems, J. Zirbel, M. Thomason, R.D. DuBois, *Review of Scientific Instruments* **76** (2005) 93305.
- [Kumar 1976]: S. Kumar, *Icarus* **28** (1976) 579-591.
- [L. d'Hendecourt 2001]: L. d'Hendecourt, E. Dartois, *Spectrochimica Acta Part A* **57** (2001) 669-684.
- [Leblanc 2007]: F. Leblanc, E. Chassefière, R.E. Johnson, D.M. Hunte, E. Kallio, D.C. Delcourt, R.M. Killen, J.G. Luhmann, A.E. Potter, A. Jambon, G. Cremonese, M. Mendillo, N. Yan, A.L. Sprague, *Planetary and Space Science* **55** (2007) 1069-1092.
- [Lee 2009]: C.W. Lee, J.K. Kim, E.S. Moon, Y.C. Minh, H. Kang, *The Astrophysical Journal* **697** (2009) 428-435.
- [Leger 1985]: A. Leger, L. d'Hendecourt, *Astronomy and Astrophysics* **146** (1985) A81.
- [Lehmann 1997]: C. Lehmann, *Interaction of Radiation with solids and Elementary Defect production*, North-Holland publishing Company (1997).
- [Lenoir 2007]: J. Lenoir, P. Boduch, H. Rothard, B. Ban-d'Etat, T. Been, A. Cassimi, T. Jalowy, H. Lebius, B. Manil, J.M. Ramillon., *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **258** (2007) 178-182.
- [Lequeux 2002]: J. Lequeux, EDP Sciences, CNRS Editions, *Astronomy and Astrophysics library*, Berlin: Springer (2002).
- [Lesueur 1993]: D. Lesueur, A. Dunlop, *Radiation Effects and Defects* **126** (1993) 163-172.
- [Licandro 2001]: J. Licandro, E. Oliva, M. Di Martino, *Astronomy and Astrophysics* **373** (2001) 29-32.
- [Lindhard 1963]: J. Lindhard, M. Scharff, H.E. Schiøtt, *Danske Videnskabernes Selskab Matematisk-fysiske Meddelelser* **33**, no. 14 (1963).
- [Loeffler 2008]: M.J. Loeffler, R.A. Baragiola, M. Murayama, *Icarus* **196** (2008) 285-292.

## Bibliographie

- [Lv 2012]: X.Y. Lv, A.L.F. de Barros, P. Boduch, V. Bordalo, E.F. da Silveira, A. Domaracka, D. Fulvio, C.A. Hunniford, T. Langlinay, N.J. Mason, R.W. McCullough, M.E. Palumbo, S. Pilling, H. Rothard, G. Strazzulla, *Astronomy and Astrophysics* **546** (2012) A81.
- [Lv 2014]: X.Y. Lv, P. Boduch, J.J. Ding, A. Domaracka, T. Langlinay, M.E. Palumbo, H. Rothard, G. Strazzulla, *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society* **438** (2014) 922-929.
- [Macfarlane 1976]: R. D. Macfarlane, D. F. Torgerson, *Science* **191** (1976) 920-925.
- [Macfarlane 1986]: R. Macfarlane, J.C. Hill, D.L. Jacobs, J. Trace, *Microscopy Technol.* **4** (1986) 281.
- [Madey 2002]: T.E. Madey, R.E. Johnson, T.M. Orlando, *Surface Science* **500** (2002) 838–858.
- [Mandella 2003]: V. Mandella, G.A. Baratta, A. Esposito, G. Rerini, Y.J. Pendleton, *The Astrophysical Journal* **587** (2003) 727-738.
- [Martinez 2006] : R. Martinez, C.R. Ponciano, L.S. Farenzena , P. Iza, M.G.P. Homem, A. Naves de Brito, K. Wien, E.F. da Silveira, *International Journal of Mass Spectrometry* **253** (2006) 112-121.
- [Martín 2006]: E.L. Martín, W. Brandner, H. Bouy, G. Basri, J. Davis, R. Deshpande, M.M. Montgomery, *Astronomy and Astrophysics* **456** (2006) A253.
- [Matsuda 1986]: Y. Matsuda, Y. Yamamura, Y. Ueda, K. Uchino, K. Muraoka, M. Maeda, M. Akazaki, *Japanese Journal of Applied Physics* **24** (1986) 8-13.
- [McNutt Jr 2014]: R.L. McNutt Jr., S.C. Solomon, P.D. Bedini, B.J. Anderson, D.T. Blewett, L.G. Evans, R.E. Gold, S.M. Krimigis, S.L. Murchie, L.R. Nittler, R.J. Phillips, L.M. Prockter, J.A. Slavin, M.T. Zuber, E.J. Finnegan, D.G. Grant, the MESSENGER Team, *Acta Astronautica* **93** (2014) 509-515.
- [Meins 1983]: C.K. Meins, J.E. Griffith, Y. Qiu, M.H. Mendenhall, L.E. Seiberling, T.A. Tombrello, *Radiation Effects* **71** (1983) 13-33.
- [Meshik 2014]: A. Meshik, C. Hohenberg, O. Pravdivtseva, D. Burnett, *Geochimica et Cosmochimica Acta* **127** (2014) 326-347.
- [Meyer 2011]: F.W. Meyer, P.R. Harris, C.N. Taylor, H.M. Meyer III, A.F. Barghouty, J.H. Adams, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **269** (2011) 1316–1320.
- [Mieskes 1999]: H.D. Mieskes, Dissertation der Fakultät für Physik der Ludwig-Maximilians-Universität München (1999).
- [Millar 1995]: T.J. Millar, E. Rouef, S.B. Charnley, S.D. Rodgers, *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes* **149/150** (1995) 389-402.

## Bibliographie

[Millies-Lacroix 1994]: J.C. Millies-Lacroix, Seuil de décision et limite de détection, application aux mesures de radioactivité, Rapport GTN5.

[Moshhammer 1991]: R. Moshhammer, Thesis, Institute of Nuclear Physics, Technische Hochschule Darmstadt (1991).

[Neidhart 1995]: T. Neidhart, F. Pichler, F. Aumayr, H.P. Winter, M. Schmid, P. Varga, *Physical Review Letters* **74** (1995) 5280-5283.

[Noun 2013]: M. Noun, “*Interaction agrégats-surface. Spectrométrie de masse par temps de vol et application analytique à des études sur des médicaments et sur la météorite Paris*”, Thèse de l’université Paris-Sud (2013).

[Orthous-Daunay 2013]: V. Dehant, D. Breuer, P. Claeys, V. Debaille, J. DeKeyser, E. Javaux, S. Goderis, O. Karatekin, T. Spohn, A. Vandaele, F. Vanhaecke, T. VanHoolst, V. Wilquet, *Planetary and Space Science* **72** (2012) 3-17.

[Palumbo 2008a]: M.E. Palumbo, G.A. Baratta, D. Fulvio, M. Garozzo, O. Gomis, G. Leto, F. Spinella, G Strazzulla, *Journal of Physics: Conference Series* **101** (1998) 012002.

[Palumbo 2008b]: M.E. Palumbo, P. Leto. C. Siringo, C. Trigolio, *The Astrophysical Journal* **685** (2008) 1033-1038.

[Panza 2012]: F. Panza, “*Développement de la spectrométrie gamma in situ pour la cartographie de site*”, Thèse de l’université de Strasbourg (2012).

[Papike 1991]: J. Papike, L. Taylor, S. Simon, *Lunar Sourcebook: a user’s guide to the moon*, Cambridge University Press, chapter 5 (1991).

[Parilis 2001]: E.S. Parilis, *Physica Scripta* **T92** (2001) 197-201.

[Peplowski 2014] : P.N. Peplowski, L.G. Evans, K.R. Stockstill-Cahill, D.J. Lawrence, J.O. Goldsten, T.J. McCoy, L.R. Nittler, S.C. Solomon, A.L. Sprague, R.D. Starr, S.Z. Weider, *Icarus* **228** (2014) 86–95.

[Pereira 1998]: J.A.M. Pereira, I.S. Bitensky, E.F. da Silveira, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **135** (1998) 244-249.

[Pilling 2010]: S. Pilling, E. Seperuelo Duarte, A. Domaracka, H. Rothard, P. Boduch, E.F. da Silveira, *Astronomy and Astrophysics* **523** (2010) A77.

[Pilling 2011]: S. Pilling, E. Seperuelo Duarte, A. Domaracka, H. Rothard, P. Boduch, E.F. da Silveira, *Physical Chemistry Chemical Physics* **13** (2011) 15755-15765.

[Ponciano 2001]: C.R. Ponciano, R.C.C. Ladeia, V.M. Collado, E.F. da Silveira, *Brazilian Journal of Physics* **31** (2001) 514-517.

[Ponciano 2005]: C.R. Ponciano, L.S. Farenzena, V.M. Collado, E.F. da Silveira, K. Wien, *International Journal of Mass Spectrometry* **244** (2005) 41-49.

## Bibliographie

- [Ponciano 2007]: C.R. Ponciano, R. Martinez, E.F. da Silveira, *Journal of Mass Spectrometry* **42** (2007) 1300-1309.
- [Qiu 1982]: Y. Qiu, J.E. Griffith, T.A. Tombrello, *Radiation Effects* **64** (1982) 111-116.
- [Rastogi 2005]: S. Rastogi, *The Bulletin of the Astronomical Society of India* **33** (2005) 167-174.
- [Sangiorgio 2014]: I. Sangiorgio, “*The modifications of Mercury surface induced by solar wind ions*”, Thèse de l’université de Catane (2014).
- [Sarantos 2011]: M. Sarantos, R.M. Killen, W.E. McClintock, E.T. Bradley, R.J. Vervack Jr., M. Benna, J.A. Slavin, *Planetary and Space Science* **59** (2011) 1992-2003.
- [Schenkel 1998]: T. Schenkel, A.V. Barnes, A.V. Hamza, D.H. Schneider, J.C. Banks, B.L. Doyle, *Physical Review Letters* **80** (1998) 4325-4328.
- [Schiwietz 1996]: G. Schiwietz, G. Xiao, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **107** (1996) 113-127.
- [Schlutig 2001]: S. Schlutig, “*Contribution à l’étude de la pulvérisation et de l’endommagement du dioxyde d’uranium par les ions lourds rapides*”, Thèse de l’université de Caen (2001).
- [Schmitt 1966]: H. W. Schmitt, J. H. Neiler, F. J. Walter, *Physical Review* **141** (1966) 1146-1160.
- [Sen 2006]: S. Sen, A. Chatterjee, P. Bhattacharyya, S. Das, K. Basu, A. Pal, H. Saha, *Proceedings of the International Conference on Resource Utilisation and Intelligent* (2006) 1-8.
- [Seperuelo Duarte 2010]: E. Seperuelo Duarte, A. Domaracka, P. Boduch, H. Rothard, E. Dartois, E. F. da Silveira, *Astronomy and Astrophysics* **512** (2010) A71.
- [Shen 2004]: C.J. Shen, J.M. Greenberg, W.A. Schutte, E.F. van Dishoeack, *Astronomy and Astrophysics* **415** (2004) 203-215.
- [Shi 1995]: M. Shi, R.A. Baragiola, D.E. Grosjean, R.E. Johnson, S. Jurac, J. Schou, *Journal Of Geophysical Research* **100** (1995) 26387-26395.
- [Shimoda 2005]: G. Shimoda, N. Nakamura, M. Kimura, T. Kani, S. Nohda, K. Yamamoto, *Meteoritics and Planetary Science* **40** (2005) 1059-1072.
- [Sigmund 1969]: P. Sigmund, *Physical Review* **184** (1969) 383-416.
- [Sigmund 1981a]: P. Sigmund, in *Sputtering By Partile Bombardement I*, by R. Behrisch (Ed.), Topics in Applied Physics Springer Berlin 47 (1981) 9., Vol. 47 (Springer, Berlin, 1981).
- [Sigmund 1981b]: P. Sigmund, C. Clausen, *Journal of Applied Physics* **52** (1981) 990-993.

## Bibliographie

- [Simpson 1983]: J. Simpson, *Annual Review of Nuclear and Particle Science* **33** (1983) 323-382.
- [Sporn 1997]: M. Sporn, G. Libiseller, T. Neidhart, M. Schmid, F. Aumayr, H.P. Winter, P. Varga, M. Grether, D. Niemann, N. Stolterfoht, *Physical Review Letters* **79** (1997) 945-948.
- [Strazzulla 1992]: G. Strazzulla, G.A. Baratta, G. Leto, G. Foti, *Europhysics Letters* **18** (1992) 517-522.
- [Strazzulla 2005]: G. Strazzulla, E. Dotto, R. Binzel, R. Brunetto, M.A. Barucci, A. Blanco, V. Orofino, *Icarus* **174** (2005) 31-35.
- [Sunner 1988]: J. Sunner, A. Morales, P. Kebarle, *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes* **86** (1988) 169-186.
- [Tarisien 2003]: Mehdi Tarisien, Thèse de l'université de Caen (2003).
- [Thompson 1987]: M.W. Thompson, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B18** (1987) 411-429.
- [Tielens 2005]: A.G.G.M. Tielens, *The Physics and Chemistry of the Interstellar Medium*, ISBN 0521826349, *Cambridge University Press* (2005).
- [Tombrello 1989]: D.L. Weathers, T.A. Tombrello, M.H. Prior, R.G. Stokstad, R.E. Tribble, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B42** (1989) 307-316.
- [Toulemonde 2003]: M. Toulemonde, W. Assmann, C. Trautmann, F. Gruner, H.D. Mieskes, H. Kucal, Z.G. Wang, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B212** (2003) 346-357.
- [Urbassek 1984]: H.M. Urbassek, P. Sigmund, *Applied Physics* **A35** (1984) 19-25.
- [Urbassek 1987]: H.M. Urbassek, J. Michel, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B22** (1987) 480-490.
- [Urbassek 1988]: H.M. Urbassek, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B31** (1988) 541-550.
- [Urbassek 1991]: H.M. Urbassek, K.T. Waldeer, *Physical Review Letters* **67** (1991) 105-108.
- [Vidal 2005]: R.A. Vidal, B.D. Teolis, R.A. Baragiola, *Surface Science* **588** (2005) 1-5.
- [Wahl 1994]: M. Wahl, A. Wucher, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B94** (1994) 36-46.
- [Wei 2008]: Q. Wei, K.D. Li, J. Lian, L.Wang, *Journal of Physics D: Applied Physics* **41** (2008) 172002.
- [Wickramasinghe 1980]: D.T. Wickramasinghe, D.A. Allen, *Nature* **287** (1980) 518-519.

## Bibliographie

[Winter 2000]: H. Winter, *Progress in Surface Science* **63** (2000) 177-247.

[Wucher 1996]: A. Wucher, M. Wahl, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B115** (1996) 581-589.

[Wucher 2006]: A. Wucher, Ion Beam Science, Solved and Unsolved Problems, Part 2, edited by P. Sigmund, *Mat Fys Medd Dan Vid Selsk* (2006).

[Young 1998]: E.D. Young, S.S. Russell, *Science* **282** (1998) 452-455.

[Ziegler 1985]: J.F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, in *The stopping and ranges of ions in solids*, vol. 1, Pergamon press, New York (1985).

[Zurbuchen 2008]: T.H. Zurbuchen, J.M. Raines, G. Gloeckler, S.M. Krimigis, J.A. Slavin, P.L. Koehn, R.M. Killen, A.L. Sprague, R.L. McNutt, S.C. Solomon, *Science* **321** (2008) 90-92.







# *Effets de l'irradiation par des ions lourds multichargés sur des cristaux et des glaces d'intérêt astrophysique*

## **Résumé :**

Le système solaire et le milieu interstellaire sont soumis en permanence à différents rayonnements tels que le vent solaire et les rayons cosmiques. L'interaction entre les particules énergétiques et les matériaux présents dans ces différents milieux (glaces, silicates et matériaux carbonés), joue un rôle fondamental dans certains phénomènes astrophysiques. Les expériences en laboratoire, corrélées aux données observationnelles, permettent une meilleure compréhension de ces phénomènes. Les objectifs de cette thèse sont d'étudier l'effet des ions lourds lents ou rapides sur des cristaux, comme le fluorure de lithium, et sur des matériaux d'intérêt astrophysique tels que les glaces et les silicates. Nous nous sommes intéressés, tout particulièrement, au phénomène de pulvérisation. L'étude de ce phénomène a été réalisée, en grande majorité, à l'aide du dispositif de temps de vol et de localisation (XY-TOF-SIMS) développé au CIMAP. Nous avons montré que l'émission des ions se fait en grande partie sous forme d'agrégats. Différents paramètres influencent la pulvérisation : le régime de pouvoir d'arrêt, l'épaisseur de la cible, l'angle d'incidence et en ce qui concerne les ions lents multichargés de basse énergie, la charge du projectile. Les différentes simulations en laboratoire illustrent la possibilité de création de l'exosphère de Mercure et des lunes de Jupiter.

## *Irradiation effects induced by multiply charged heavy ions on astrophysical materials such as crystals and ices*

## **Abstract:**

The solar system and the interstellar medium are permanently exposed to radiations such as solar wind and cosmic rays. The interaction between energetic particles and astrophysical materials (ices, silicates and carbon-based materials) plays an important role in several astrophysical phenomena. Laboratory experiments correlated to observational data may allow a better understanding of these phenomena. The aim of this thesis was to study the effect of slow and fast heavy ions on lithium fluoride and on astrophysical materials such as ices and silicates. We focused on the sputtering phenomenon. The present study was performed with a time of flight imaging technique (XY-TOF-SIMS) at the CIMAP-GANIL laboratory. The major fraction of secondary ions is found to be emitted in the form of clusters. Several parameters affect sputtering: the stopping power regime, the thickness of the target, the incident angle and, for low highly charged ions, the projectile charge. Our laboratory simulations exhibit the possibility that sputtered particles contribute to the formation of Mercury's and Jupiter's moons exospheres.

**Mots clés :** Ions multichargés, Surface (physique), Pulvérisation, Spectrométrie de masse des ions secondaires, Couches minces, Astrophysique, Silicates, Glace

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

**Laboratoire :** Centre de recherche sur les Ions, les MAériaux et la Photonique (CIMAP-GANIL)