

UNIVERSITÉ D'ORLÉANS

ÉCOLE DOCTORALE

ÉNERGIE, MATERIAUX, SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'UNIVERS
LABORATOIRE CEMHTI – CNRS

THÈSE

présentée par :

Yamina BENNOUR

soutenue le : 09 mars 2026

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'Université d'Orléans**

Discipline/ Spécialité : Physique

**Étude comparative de l'effet de l'irradiation sur le SiC, le
GaN et le diamant pour une potentielle application
comme radiateur Cherenkov au FRIB**

THÈSE dirigée par :

Mr NTSOENZOK Esidor
Mr GUÈYE Paul

Professeur, Université d'Orléans
Professeur, Université d'État du Michigan, US

RAPPORTEURS :

Mme COQ GERMANICUS Rosine
Mr LAZAR Mihai

Professeure, Université de Caen, Normandie
Chargé de recherche, Université de Technologie de Troyes

JURY :

Mme COQ GERMANICUS Rosine
Mr LAZAR Mihai
Mme MIGAN DUBOIS Anne
Mr MAZEN Frédéric
Mr NTSOENZOK Esidor
Mr GUÈYE Paul
Mme DOUMIT Nicole
Mr BOTSOA Jaques-Claudanel

Professeure, Université de Caen, Normandie, Présidente du jury
Chargé de recherche, Université de Technologie de Troyes
Professeure, Université Paris-Saclay
Ingénieur de recherche, CEA-LETI, Grenoble
Professeur, Université d'Orléans
Professeur, Université d'État du Michigan, US
Maîtresse de conférences, Isep, Paris
Maître de conférences, Université d'Orléans

Mr AMMAR Mohamed-Ramzi
Mme REGULA Gabrielle

Maître de conférences, Université d'Orléans, **invité**
Maîtresse de conférences, Université Aix Marseille, **invitée**

À la mémoire de mon grand-père Ali BENNOUR.

*À mes chers parents ainsi qu'à toute ma famille, pour leur soutien indéfectible
tout au long de cette thèse.*

Remerciements

Je souhaite avant tout exprimer ma profonde gratitude et mes plus sincères remerciements à mon directeur de thèse, le Professeur Esidor Ntsoenzok. Bien au-delà de son rôle de directeur, il a cru en moi dès le début et s'est investi avec une détermination remarquable pour rendre cette thèse possible. Je lui suis profondément reconnaissante pour la confiance qu'il m'a accordée, pour son soutien constant, sa grande disponibilité et l'attention qu'il a toujours portée à mes nombreuses questions. Son accompagnement tout au long de ces années a rendu ce parcours de recherche aussi serein qu'il est possible.

Je souhaite également remercier chaleureusement mon co-directeur de thèse au Michigan, le Professeur Paul Guèye. Je lui suis très reconnaissante d'avoir contribué de manière déterminante à la mise en place du financement de cette thèse. Grâce à son implication, j'ai eu l'opportunité de débiter ce travail de doctorat sur un sujet ambitieux en collaboration avec le laboratoire FRIB de Michigan State University. J'ai eu le privilège et la chance de faire partie de son équipe, au sein de laquelle j'ai énormément appris, tant sur le plan scientifique que sur le plan humain.

J'adresse également ma profonde reconnaissance à mon encadrante, Nicole Doumit, que je considère comme ma bonne étoile. Sa bienveillance, son engagement et la justesse de ses conseils m'ont accompagnée tout au long de cette thèse, et ont été déterminants dans l'obtention d'un financement partiel de l'ISEP. Son soutien constant m'a permis de garder le cap malgré les difficultés rencontrées. Je lui suis particulièrement reconnaissante pour la confiance qu'elle m'a accordée durant ces années.

Je tiens enfin à remercier mon encadrant, Jacques Botsoa. J'ai eu l'opportunité de bénéficier de son expertise dans le domaine des matériaux à large bande interdite. Je lui suis profondément reconnaissante de m'avoir formée aux techniques de photoluminescence et de spectroscopie d'annihilation des positons, ainsi que pour sa disponibilité constante et sa patience à répondre à mes nombreuses interrogations.

J'ai eu la chance de bénéficier d'un encadrement exceptionnel, riche et complémentaire. J'ai énormément appris auprès de chacun de mes encadrants, aussi bien sur le plan scientifique que sur le plan humain. Leur confiance, leur soutien et leurs enseignements ont profondément marqué mon parcours et ont largement contribué à l'aboutissement de ce travail de thèse. Je leur adresse à tous toute ma reconnaissance pour leurs précieux conseils, y compris lors des ultimes étapes de rédaction et de correction du manuscrit.

Je suis reconnaissante envers la directrice du laboratoire du CEMHTI, Madame Catherine Bessada, envers le directeur du FRIB, Professeur Thomas Glasmacher ainsi qu'envers Madame Aline Aubertin, directrice générale de l'ISEP de Paris, et Monsieur Lionel Trojman, directeur de recherche au sein de l'ISEP, pour m'avoir accueillie au sein de leurs structures respectives.

Je remercie Madame Gabrielle Regula de m'avoir accompagnée durant ces années de thèse en tant que membre de mon comité de suivi individuel (CSI). Ses conseils m'ont permis de progresser tant dans la rédaction que dans la présentation de mon sujet. Je la remercie également d'avoir accepté d'assister à ma soutenance en tant qu'invitée.

Je remercie chaleureusement les membres de mon comité de thèse, Rosine Coq Germanicus, Mihai Lazar, Anne Migan-Dubois et Frédéric Mazen, pour avoir accepté de participer à ma soutenance.

Je remercie Monsieur Ramzi Mohamed Ammar de m'avoir formée à l'utilisation du spectromètre Raman et de m'avoir accompagnée tout au long de cette thèse. Ses précieux conseils m'ont été particulièrement bénéfiques, tant pour l'analyse des spectres Raman que pour la rédaction de mon article.

Ma gratitude va également à Ania Conchi. Je la remercie de m'avoir formée à l'utilisation de la spectroscopie UV-Visible, ainsi que pour tous les conseils qu'elle m'a prodigués lors des réunions et des présentations.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers les nombreux techniciens, ingénieurs et chercheurs du laboratoire CEMHTI, sans lesquels le laboratoire ne pourrait fonctionner, et qui m'ont soutenue tout au long de ces années.

Je remercie tout particulièrement Olivier Wendling, Thierry Sauvage et Aurélien Belamie, qui ont toujours répondu présents lorsque j'avais besoin de réaliser des implantations. Un grand merci également à Dominique Baux pour sa disponibilité constante, ainsi qu'à William Hate, grâce à qui j'ai pu mener à bien mes irradiations au GANIL.

Merci à Jérôme Joseph et Lionel Cosson pour toutes les fois où j'ai cassé le fil diamanté de la scie à fil. Sans leur aide, je n'aurais jamais pu découper mes échantillons de SiC.

J'adresse un remerciement particulier à Marie-France Barthe pour son expertise et son accompagnement dans l'analyse des résultats obtenus par spectroscopie d'annihilation des positons. Je remercie également Pierre Dégardin pour son aide précieuse et ses nombreux conseils.

Mes remerciements vont également à Jean-Philippe Blondeau, David Chaulin, Sébastien Bouillon, Rachelle Omnée, Pascal Praud et Paul Sigot pour leur disponibilité.

J'adresse une attention toute particulière à Thomas Bauman pour sa promptitude à répondre à mes nombreuses questions concernant le dispositif MoNA au FRIB.

J'ai eu le plaisir de bénéficier de l'aide et des conseils de Safae Aazou, dont le soutien et la disponibilité m'ont été particulièrement précieux tout au long de cette thèse.

Je remercie sincèrement Christophe Raynaud, Dominique Planson et Luong Viet Phung pour leur accueil au laboratoire Ampère de l'INSA Lyon, ainsi que pour leur aide dans la réalisation des mesures DLTS.

Un grand merci également à Thomas Roger, Éloïse Dessay, Sébastien Gautrot, Diego Gruyer ainsi qu'à toutes les personnes qui ont contribué au bon déroulement des irradiations au GANIL.

Je remercie chaleureusement les étudiants, doctorants et post-doctorants avec lesquels j'ai eu le plaisir d'échanger au cours de ces trois dernières années, aussi bien en France qu'aux États-Unis, et tout particulièrement Liliane David-Egbunu, Ikram Anefnaf, Ziyanda Tshobeni, Juan Luis Fuentes, Georgia Votta, Andrew Wantz, Anna Brandl, Justin Schmitz, Emily Holman, Nicholas Mendez, Pham Phuongan, Sara Tatreau, Mark Ddamulira et Shokhna Bineta Lo Amar.

Rien de tout cela n'aurait été possible sans les informaticiens et les personnels administratifs présents dans les laboratoires. Mes remerciements vont tout particulièrement à Florent Poupère, qui a toujours répondu présent à mes nombreuses sollicitations informatiques. Merci à Nadege Perier, Melissa Garza et Ewart Gretchen.

Cette aventure m'a permis de rencontrer de nombreuses personnes. Il me serait difficile de toutes les remercier sans risquer d'en oublier certaines. Je présente donc mes excuses sincères à celles et ceux que j'aurais pu omettre.

Je remercie infiniment mes parents pour leur amour inconditionnel, ainsi que mes frères et sœurs, Ali, Arezki, Lila et Radia, pour leur confiance et leur soutien. Mes remerciements vont également à mon mari, Anis, pour son soutien, sa patience et sa présence constante tout au long de cette thèse. Je remercie aussi mes deux enfants, Yani et Kenzy, pour la joie et la motivation qu'ils m'apportent chaque jour.

Enfin, je remercie le Facility for Rare Isotope Beams (FRIB) de Michigan State University, la National Science Foundation (NSF) des États-Unis ainsi que l'ISEP de Paris, pour le financement de cette thèse.

Étude comparative de l'effet de l'irradiation sur le SiC, le GaN et le diamant pour une potentielle application comme radiateur Cherenkov au FRIB

Résumé

Le laboratoire Facility for Rare Isotope Beams (FRIB) de l'Université d'État du Michigan fournit des faisceaux d'ions de hautes énergies permettant la production et l'étude d'isotopes rares. L'augmentation continue de l'énergie des faisceaux nécessaires pour accéder à des noyaux de plus en plus exotiques, rend très délicate l'identification des particules basée généralement, au FRIB, sur les mesures de la perte d'énergie et du temps de vol des particules. La réalisation d'un détecteur Cherenkov permettant une mesure directe de la vitesse des ions, apparaît par conséquent comme une solution efficace pour l'identification des particules à hautes énergies.

Ce travail de thèse se focalise sur l'étude de l'impact de l'irradiation sur les propriétés optiques et structurales de trois semiconducteurs à grands gaps (SiC, GaN et diamant) en vue de leur utilisation comme radiateur Cherenkov. L'objectif est d'identifier un matériau capable de générer un rayonnement Cherenkov détectable tout en présentant une bonne résistance à l'irradiation. Des échantillons de SiC dopé et non dopé, de GaN plans c et a, ainsi que de diamant mono- et polycristallin ont été irradiés à l'hydrogène et aux ions lourds sous différentes conditions, puis caractérisés à l'aide de techniques complémentaires et de simulations. Les irradiations ont été comparées à taux d'endommagement ou dpa (displacement per atom) comparable, permettant une analyse indépendante de la nature, de l'énergie et de la fluence des ions.

Les premiers résultats ont porté sur les implantations d'hydrogène dans un large domaine de dpa dans les trois matériaux. En UV-Visible, une faible absorption apparaît à 270 nm après implantation à haute fluence ($5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$) dans le diamant et donc loin du domaine d'émission Cherenkov. En revanche, le SiC dopé montre une large bande d'absorption centrée autour de 460 nm, liée au dopage, qui altérerait fortement l'émission Cherenkov. Le GaN, quant à lui, présente une faible bande d'absorption à 450 nm due aux monolacunes de gallium après implantation à haute fluence. La PL révèle des émissions associées aux défauts natifs NV⁰ dans le diamant, ainsi qu'une émission à 470 nm après implantation à haute fluence, attribuée à des défauts impliquant deux lacunes et deux atomes de carbone interstitiels (TR12). Les analyses Raman indiquent l'absence de contraintes structurales significatives induites par l'irradiation dans le diamant monocristallin et le GaN, contrairement au SiC où une compensation des défauts par les plasmons dus au dopage est observée. Les mesures PAS montrent que le diamant présente la plus faible concentration de lacunes après implantation, contrairement au GaN et au SiC dopé. Il ressort de ces résultats que le diamant monocristallin présente la meilleure résistance à l'irradiation. Toutefois, des limitations liées surtout au coût restreignent son usage à grande échelle. Malgré une résistance légèrement moins bonne à l'irradiation comparativement au diamant, le SiC et le GaN présentent des performances largement suffisantes pour une application comme radiateurs Cherenkov. Le SiC non dopé et le GaN ont donc été étudiés dans la suite avec des irradiations très proches de celles de FRIB.

Les irradiations dans les conditions de FRIB se sont faites avec des dpa variant de 10^{-12} à 10^{-9} soit des valeurs plus faibles que dans la première partie de l'étude où les dpa variaient entre 10^{-8} et 10^{-3} . Il convient principalement de noter qu'il n'y a aucune absorption dans le visible pour le SiC et GaN. Les différences fondamentales entre ces deux matériaux sont surtout mises en évidence en PL. Dans le GaN, les lacunes d'azote (V_N) apparaissent clairement en PL comme une réponse directe aux irradiations à haute énergie ($>85 \text{ MeV/n}$). Le SiC non dopé apparaît, au vu de tous ces résultats, comme le matériau le plus performant pour la réalisation du radiateur Cherenkov.

Sur la base des résultats obtenus, une ébauche préliminaire d'un prototype est proposée.

Mots-clés : radiateur Cherenkov, défauts, irradiation, SiC, GaN, diamant

Comparison study of the irradiation effect on SiC, GaN and diamond for their potential use as a Cherenkov radiator at FRIB

Abstract

The Facility for Rare Isotope Beams (FRIB) laboratory at Michigan State University provides high-energy ion beams for producing and studying rare isotopes. As beam energies continue to rise to access increasingly exotic nuclei, particle identification becomes more difficult when relying on the conventional FRIB techniques, which primarily use energy-loss and time-of-flight measurements. In this context, developing a Cherenkov detector offers an effective solution for high-energy particle identification.

This PhD work focuses on the study of irradiation effects on the optical and structural properties of three wide-bandgap semiconductors (SiC, GaN, and diamond) with the goal of assessing their suitability as Cherenkov radiators. The aim is to identify a material capable of generating a detectable Cherenkov signal while maintaining strong resistance to radiation damage. Samples of doped and undoped SiC, GaN with c- and a-plane orientations, as well as mono- and polycrystalline diamond, were irradiated with hydrogen and heavy ions under various conditions. The materials were then characterized using complementary experimental techniques, supported by simulations performed with SRIM, GEANT4, and ROOT. Irradiation effects were compared at equivalent damage levels, expressed as displacements per atom (dpa), allowing an analysis independent of the ion species, energy, and fluence.

The first set of results concerns hydrogen implantation across a wide dpa range in the three materials. UV-Visible spectroscopy reveals a weak absorption band at 270 nm in diamond after high-fluence implantation ($5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$), well outside the Cherenkov emission range. In contrast, doped SiC exhibits a broad absorption band centered around 460 nm, attributed to doping, which would significantly degrade Cherenkov emission. GaN shows a weak absorption band near 450 nm associated with gallium vacancies (VGa) after high-fluence implantation. Photoluminescence measurements reveal emissions from native NV^0 centers in diamond, as well as an emission at 470 nm related to the TR12 defect after high-fluence implantation. Raman analyses indicate no significant irradiation-induced structural stress in monocrystalline diamond or GaN (c- and a-plane), whereas in SiC, irradiation-induced defects appear to be compensated by doping-related plasmons. Positron annihilation spectroscopy shows that diamond has the lowest vacancy concentration after implantation, unlike a-plane GaN and doped SiC. Overall, monocrystalline diamond demonstrates the highest resistance to irradiation; however, its large-scale use is limited mainly by cost. Despite being less radiation-resistant than diamond, SiC and GaN show performance levels sufficient for Cherenkov radiator applications. Consequently, undoped SiC and GaN were selected for further investigations under irradiation conditions close to those used at FRIB.

Irradiations under FRIB-like conditions were carried out with dpa values ranging from $1\text{e-}12$ to $1\text{e-}9$, much lower than those explored in the first part of the study ($1\text{e-}8$ to $1\text{e-}3$). Under these conditions, neither SiC nor GaN shows any visible-range absorption. Fundamental differences between the two materials are mainly revealed by photoluminescence measurements. In GaN, nitrogen vacancies (VN) appear clearly in PL as a direct response to high-energy irradiations ($>85 \text{ MeV/n}$). Based on all results, undoped SiC emerges as the most promising Cherenkov radiator material. This conclusion is further supported by ROOT simulations, which show improved isotopic separation compared to GaN.

Based on these results, a preliminary prototype design is proposed, and different detection methods are compared.

Table des Matières

Remerciements.....	ii
Résumé	v
Abstract.....	vi
Table des Matières	vii
Liste des Tableaux.....	x
Liste des Figures.....	xii
Introduction générale	1
Références.....	4
Chapitre 1. État de l’art sur les détecteurs Cherenkov et le rôle des semi-conducteurs à grand gap comme radiateurs	5
1 État de l’art sur les détecteurs Cherenkov et le rôle des semi-conducteurs à grand gap comme radiateurs.....	6
1.1 Définition du détecteur Cherenkov.....	6
1.2 Les différents types de détecteurs Cherenkov	9
1.2.1 Détecteur Cherenkov à imagerie en anneau	9
1.2.2 Détecteur Cherenkov à temps de propagation.....	10
1.2.3 Détecteurs à seuils	11
1.3 Choix du radiateur	11
1.4 Description des semi-conducteurs à grands gaps : propriétés et applications dans le domaine de la physique nucléaire et des hautes énergies	13
1.4.1 Propriétés du SiC, diamant et GaN.....	14
1.4.2 Applications des grands gaps dans le domaine de la physique nucléaire et des hautes énergies.....	20
1.5 Défauts natifs et défauts créés par irradiation dans le SiC, le diamant et le GaN ...	22
1.5.1 Défauts natifs	22
1.5.2 Défauts induits par irradiation et leurs effets optiques sur le SiC, diamant et GaN	32
1.5.3 Effets des irradiations sur les propriétés optiques du SiC, diamant et GaN	37
1.6 Bilan du chapitre et objectif de la thèse	39
Références.....	41
Chapitre 2. Méthodologie expérimentale et simulation	50
2 Méthodologie expérimentale et simulation.....	41
2.1 Propriétés des matériaux utilisés	51
2.1.1 Le SiC	51

2.1.2	Le diamant.....	51
2.1.3	Le GaN	52
2.2	Outils de simulation	52
2.2.1	Stopping and Range of Ion in Matter (SRIM)	52
2.2.2	GEometry ANd Tracking version 4 (GEANT4).....	53
2.2.3	Rapid Object-Oriented Technology (ROOT)	56
2.3	Conditions d'irradiation	56
2.3.1	Le Pelletron au CEMHTI (CNRS, Orléans)	56
2.3.2	Le Grand Accélérateur National d'Ions Lourds (GANIL)	59
2.3.3	La Facility for Rare Isotope Beam (FRIB)	61
2.4	Techniques de caractérisations.....	66
2.4.1	La spectroscopie UV-Visible	66
2.4.2	La photoluminescence	68
2.4.3	La spectroscopie Raman.....	69
2.4.4	Spectroscopie d'annihilation des positons	72
2.5	Bilan du chapitre	78
	Références.....	79
	Chapitre 3. Étude des défauts créés dans le SiC, le diamant et le GaN lors des irradiations aux protons à basse énergie.....	82
	3 Étude des défauts créés dans le SiC, le diamant et le GaN lors des irradiations aux protons à basse énergie	83
3.1	Estimation des conditions d'irradiation et justification de l'approche 'irradiation à dpa comparable'	83
3.1.1	Évaluation de la fluence pour le détecteur Cherenkov au FRIB.....	83
3.1.2	Estimation du nombre de dpa par simulation SRIM	84
3.2	Études des propriétés optiques du SiC, du diamant et du GaN après implantation avec l'hydrogène.....	87
3.2.1	Étude par spectroscopie UV-visible	87
3.2.2	Étude par photoluminescence	89
3.3	Détermination des propriétés structurales du SiC, du diamant et du GaN après implantation d'hydrogène par spectroscopie Raman	92
3.4	Étude de l'endommagement par spectroscopie d'annihilation des positons	100
3.4.1	Résultats sur le SiC	101
3.4.2	Résultats sur le diamant	105
3.4.3	Résultats sur le GaN	109

3.4.4	Bilan de la PAS	114
3.5	Bilan du chapitre	115
Références.....		118
Chapitre 4. Étude des défauts créés dans le SiC et le GaN lors des irradiations aux ions lourds à hautes énergies.....		123
4	Étude des défauts créés dans le SiC et le GaN lors des irradiations aux ions lourds à hautes énergies	124
4.1	Conditions d’irradiation et calcul de dpa	125
4.1.1	Choix des matériaux utilisés.....	125
4.1.2	Paramètres d’irradiation utilisés et calcul de dpa correspondants	125
4.2	Caractérisation des échantillons	127
4.2.1	Étude des propriétés optiques après irradiation à hautes énergies.....	127
4.2.2	Évaluation des défauts structuraux avec la spectroscopie Raman.....	130
4.2.3	Évaluation des défauts proche de la surface par spectroscopie d’annihilation des positons.....	136
4.2.4	Bilan des techniques de caractérisation	141
4.3	Bilan du chapitre	141
4.4	Synthèse et validation de la méthodologie utilisée dans cette thèse	142
Références.....		146
Chapitre 5. Vers la réalisation d’un prototype de détecteur Cherenkov pour la collaboration MoNA au FRIB		147
5	Vers la réalisation d’un prototype de détecteur Cherenkov pour la collaboration MoNA au FRIB	148
5.1	Simulation du rayonnement Cherenkov avec GEANT4.....	148
5.2	Simulation de la séparation isotopique avec ROOT	149
5.3	Conception préliminaire d’un prototype de détecteur Cherenkov au FRIB	155
5.3.1	Étude de la géométrie	156
5.3.2	Différentes méthodes de détection	157
5.3.3	Mesure de l’énergie déposée dans le matériau (métallisation)	160
5.4	Bilan du chapitre	161
Références.....		162
Conclusion générale et perspectives.....		163
Produits de la recherche		166
Annexe : Méthodes de croissance du SiC, du diamant et du GaN		167

Liste des Tableaux

Tableau 1.1 : Différents radiateurs Cherenkov existants ainsi que leur application.....	13
Tableau 1.2 : Caractéristiques principales du SiC, diamant et GaN.....	14
Tableau 1.3 : Notation de Ramsdell des polytypes de SiC les plus utilisés.	15
Tableau 1.4 : Comparaison des propriétés physiques de certains polytypes du carbure de silicium et du silicium à température ambiante [37] [38].....	16
Tableau 1.5 : Les différentes propriétés du diamant.	18
Tableau 1.6 : Les propriétés physiques et électriques du GaN comparé au Si.....	20
Tableau 1.7 : Énergies de formation de quelques lacunes du 3C-SiC obtenues par calcul. ...	25
Tableau 1.8 : Récapitulatif de quelques défauts créés par irradiations dans le SiC.	34
Tableau 1.9 : Résumé des défauts natifs et ceux créés par irradiation dans le SiC, le diamant et le GaN.	40
Tableau 2.1 : densité atomique calculée par SRIM des matériaux utilisés.	53
Tableau 2.2 : Performances du Pelletron.	57
Tableau 3.1 : Résultat des simulations SRIM avec des particules de ^{52}Ca et ^{53}Ca accélérées avec une énergie de 180 MeV/n et une fluence de $2,7 \times 10^8$ p/cm ² dans les différents matériaux. Les dpa au Rp ainsi que la fluence d'hydrogène (2 MeV) équivalente ont été calculés.....	85
Tableau 3.2 : Calcul de dpa créés dans les régions Rp et IT dans le SiC, le diamant et le GaN après implantation d'hydrogène avec une énergie de 2 MeV et deux fluences (5×10^{12} H+/cm ² , 5×10^{15} H+/cm ²).	87
Tableau 3.3 : Résultats obtenus par PL des défauts natifs ainsi que ceux introduits par implantation d'hydrogène à 2 MeV et deux fluences pour chaque matériau (SiC, diamant et GaN).....	92
Tableau 3.4 : Paramètres extraits de VEPFIT pour l'échantillon de SiC vierge et de Ilref 2...	103
Tableau 3.5 : Concentration des lacunes créées après implantation avec deux fluences. Les résultats expérimentaux ont été comparés à ceux obtenus par SRIM/dpa.	105
Tableau 3.6 : concentration des lacunes créées dans le diamant après implantation avec deux fluences. Les résultats expérimentaux ont été comparés à ceux obtenus par SRIM/dpa.	109
Tableau 3.7 : Caractéristiques d'annihilation des positons obtenus par VEPFIT dans les échantillons de GaN vierges.	110
Tableau 3.8 : Concentration des lacunes estimées dans le c-GaN SPS, le c-GaN SPS et le α-GaN après implantation d'hydrogène à différentes fluences expérimentalement et par SRIM. Les dpa créés dans la zone sondée a été calculé.	113
Tableau 3.9 : Concentration des défauts en utilisant un modèle de piégeage spécifique à chaque matériau après implantation à 2 MeV d'hydrogène et aux fluences de 5×10^{12} H ⁺ /cm ² et 5×10^{15} H ⁺ /cm ²	114
Tableau 3.10 : Défauts détectés dans le SiC, le diamant et le GaN par les différentes techniques de caractérisation dans les échantillons vierges et implantés avec une énergie de 2 MeV d'hydrogène et deux fluences (5×10^{12} H+/cm ² et 5×10^{15} H+/cm ²).....	117
Tableau 4.1 : Le coût préliminaire du radiateur Cherenkov utilisant les différents matériaux.	124
Tableau 4.2 : Conditions des irradiations à hautes énergies réalisées sur le GaN et le SiC. .	125
Tableau 4.3 : Paramètres extraits de VEPFIT pour l'échantillon de SiC vierge et de Ilref 2. .	137

Tableau 4.4 : Paramètres obtenus par VEPFIT pour les échantillons SiC avant et après irradiation à différentes conditions.	139
Tableau 4.5 : Paramètres obtenus par Vepfit pour le GaN avant et après irradiations à différentes conditions.	140
Tableau 4.6 : Résultat des défauts détectés par les différentes technique de caractérisation utilisées sur le SiC et GaN après irradiation a hautes énergies.....	141
Tableau 4.7 : dpa et concentration des lacunes estimées par SRIM dans le SiC et le GaN à différentes conditions d’irradiation.	144
Tableau 5.1 : Avantages et inconvénients de la géométrie monolithique ainsi que de la géométrie segmentée.	157
Tableau 5.2 : Quelques références de tubes photomultiplicateurs.	159

Liste des Figures

Figure 1.1 : Fronts d'onde coniques produits par : (a) un avion se déplaçant à une vitesse supersonique, et (b) une particule chargée se déplaçant à une vitesse supérieure à celle de la lumière dans un milieu transparent.....	7
Figure 1.2 : (a) Spectre du rayonnement Cherenkov ainsi que (b) la lumière bleu émise.....	7
Figure 1.3 : Principe et structure d'un système de détection Cherenkov composé de deux parties essentielles : la partie I, correspondant au radiateur (entouré par des pointillés rouges) et la partie II, qui correspond au système de détection.	8
Figure 1.4 : Principe d'un détecteur RICH : (a) en forme sphérique entouré par un miroir également sphérique. Les trajectoires des photons Cherenkov sont représentées par des lignes pointillées, dans l'approximation des petits angles, autour de la trajectoire de la particule et (b) à focalisation par proximité [10].	10
Figure 1.5 : (a) Principe de fonctionnement du détecteur TOP. La trajectoire d'une particule, émise depuis le point d'interaction d'un collisionneur électron-positon, est représentée par une flèche traversant la barre de quartz du détecteur depuis le bas. (b) Un exemple montrant les différences entre la détection des photons émis par les kaons (en bleu) et les pions (en rouge) [11].....	11
Figure 1.6 : Graphe représentant l'évolution de beta seuil β_{th} à gauche ainsi que l'indice de réfraction équivalent à droite, en fonction de l'énergie cinétique du ^{53}Ca	12
Figure 1.7 : (a) Coordination tétraédrique simple des atomes de Si et de C : tétraèdre Si ₄ C (atome de C situé au centre du tétraèdre et atomes de Si à ses sommets) et tétraèdre C ₄ Si (atome de Si situé au centre du tétraèdre et atomes de C à ses sommets). (b) Polytypes de SiC les plus courants : 3C-SiC, 4H-SiC, 6H-SiC et 15R-SiC. Les cercles rouges et oranges représentent les atomes de Si et de C respectivement [34].....	15
Figure 1.8 : Schéma représentant une section de la croûte terrestre et du manteau supérieur, avec indication de la profondeur sous la surface et de la pression (kbar) [39].	16
Figure 1.9 : Formes allotropiques du carbone et la structure cristallographique du diamant [44].	17
Figure 1.10 : Diagramme de phase de carbone, incluant la ligne de Simon-Berman [46].	18
Figure 1.11 : (a) structure, (b) représentation du plan-c, -r, -m et -a et (c) schéma des polarités Ga et N, du GaN Wurtzite hexagonal.	19
Figure 1.12 : L'évolution des dimensions des wafers en fonction du temps pour différents matériaux semi-conducteurs [53].	21
Figure 1.13 : (a) Image AFM d'une région contenant un micropipe, (b) Images de cathodoluminescence de micropipes dans un substrat 6H-SiC, et la spectroscopie Raman montrant : (c) La raie associée au phonon LOPC près (ligne continue) et loin d'un micropipe, et (d) Cartographie du déplacement de cette raie autour d'un micropipe.	23
Figure 1.14 : Défauts d'empilement dans le 3C-SiC, 4H-SiC et 6H-SiC [60].	23
Figure 1.15 : Images TEM à haute résolution de deux régions contenant une faute d'empilement : (a) dans une diode 4H-SiC, (b) dans une diode 6H-SiC. D'après Liu [61].	24
Figure 1.16 : Représentation des niveaux d'ionisation des lacunes de silicium et de carbone dans le : (a) 3C- SiC et (b) 4H-SiC [64].	25
Figure 1.17 : Dans le 3C-SiC : (a) énergies de formation des interstitiels de silicium et de la lacune de silicium dans un matériau riche en silicium, (b) géométrie des interstitiels	

tétraédrique et de l'interstitiel partagé orienté selon la direction $\langle 110 \rangle$, (c) énergies de formation des interstitiels de carbone et de la lacune de carbone dans un matériau riche en silicium, (d) interstitiels partagés orientés selon la direction $\langle 100 \rangle$, positionnés sur les sites carbone et silicium, ainsi que l'interstitiel hexagonal [69] [71]	26
Figure 1.18 : (a) Schéma d'un centre NV dans la maille diamant sous ses deux états de charge : état de charge neutre NV^0 , état de charge négatif NV^- , (b) spectres de PL de : NV^0 (en rouge) et NV^- (en bleu). Les deux spectres sont normalisés à leur valeur maximale et les deux pics correspondent à la ligne zéro-phonon à 575 nm et 637 nm pour les états de charge NV^0 et NV^- , respectivement [75].	28
Figure 1.19 : Images de biréfringence acquises en transmission sur (a) un substrat HPHT, (b) au même endroit sur ce même substrat mais après dépôt d'une couche CVD d'environ 100 μm . On constate la persistance des motifs liés aux dislocations dites primaires D1-D5 et l'apparition de nouveaux défauts D6 et D7 [79].	28
Figure 1.20 : Micrographie optique (a) et représentation schématique, (b) des lamelles de macles avec les puits d'attaque sur la face $\{111\}$ d'un cristal de diamant synthétique [83]. ...	29
Figure 1.21 : Image MEB mettant en évidence la configuration des joints de grain dans le diamant.	30
Figure 1.22 : (a) Niveaux de transition pour les défauts natifs dans le GaN, déterminés à partir des énergies de formation [89], (b) Énergies de formation des défauts ponctuels dans le GaN riche en Ga (Les lignes pointillées correspondent aux défauts ponctuels isolés et les lignes continues aux complexes de défauts, respectivement).	31
Figure 1.23 : Dislocation sur GaN lors d'une croissance MOCVD sur substrat (a) SiC et (b) saphir.	31
Figure 1.24 : Image MET de GaN irradié aux ions U 106 MeV à (a) 1×10^{13} et (b) 5×10^{13} ions/cm ² , montrant la zone fortement endommagée [118].	36
Figure 1.25 : Diagramme de bandes avec les principales transitions radiatives et les noms des bandes de photoluminescence (PL) dans le GaN non dopé et dopé.	39
Figure 2.1 : Structure globale du code GEANT4 : catégories de classes C++ de GEANT4. Les catégories situées en bas du diagramme sont utilisées par pratiquement toutes les catégories supérieures et constituent la base de la boîte à outils [16].	54
Figure 2.2 : Différentes classes qui interviennent dans la simulation GEANT4 (adaptée de [18]).	56
Figure 2.3 : Accélérateur Pelletron 3 MV du CEMHTI-Orléans [20].	57
Figure 2.4 : Balayage Lissajous utilisé pour les implantations au Pelletron [21].	58
Figure 2.5 : (a) Schéma des lignes expérimentales du GANIL, (b) la salle G4 utilisée pour nos irradiations [23].	60
Figure 2.6 : (a) Vue du cadre mobile, (b) schéma du dispositif d'irradiation montrant la configuration de l'échantillon exposé au faisceau ionique.	60
Figure 2.7 : (a) Port-échantillon placé sur le cadre mobile en plexiglass, (b) cadre mobile porte ouverte, montrant la feuille d'aluminium utilisée comme dégradeur.	61
Figure 2.8 : Schéma du dispositif de FRIB avec le linac en bas de l'image [28].	62
Figure 2.9 : La salle expérimentale S2 montrant : le dipôle magnétique (en rouge), le détecteur de neutrons MoNA LISA (en vert) et les détecteurs des particules chargées dans leur casemate (en gris). Crédit image : Thomas Baumann.	63

Figure 2.10 : Schéma montrant l'ensemble des détecteurs pour les particules chargées utilisés dans la salle expérimentale S2 à FRIB pour la séparation des isotopes rares : les scintillateurs (en cyan), le dipôle magnétique (en rouge vif), les chambres à dérives (en grenat), la chambre à ionisation (en orange) ainsi que la position probable du détecteur Cherenkov (en bleu). Crédit image : Thomas Baumann.....	64
Figure 2.11 : Schéma du dispositif expérimental pour l'irradiation des échantillons de GaN plan c SPS derrière le second scintillateur dans la salle expérimentale à FRIB.	65
Figure 2.12 : Schéma du chemin optique interne du spectromètre UV-visible UV-2600 donné par le constructeur [36].	67
Figure 2.13 : Schéma représentant les différents mécanismes de recombinaison radiatifs possibles dans un semiconducteur ou BV est la bande de valence et BC la bande de conduction. Figure adaptée de [37].	68
Figure 2.14 : Schématisation de la diffusion d'un photon dans la matière montrant la diffusion Rayleigh (élastique) et la diffusion Raman (inélastique). Figure adaptée de [36], [38].	70
Figure 2.15 : Représentation schématique du faisceau laser micro-Raman en : (a) coupe transversale utilisée pour certains échantillons, (b) analyse de profil en profondeur réalisée sur des échantillons à différents plans focaux.	71
Figure 2.16 : Dispositif expérimental de l'accélérateur des positons lents du CEMHTI [47]...	73
Figure 2.17 : Spectre d'élargissement Doppler et positionnement des paramètres S et W [49].	75
Figure 2.18 : Schéma d'un modèle de piégeage à un défaut. Adaptée de [38].	76
Figure 2.19 : Schéma du model étendue des piégeages incluant deux défauts : un piège peu profond d1 (shallow trap) et un piège à volume ouvert d2 (open volume trap). Adaptée de [38].	77
Figure 3.1 : Profils en profondeur du nombre de déplacements par atome (dpa) induits par l'irradiation avec les isotopes ^{53}Ca à 180 MeV/n et une dose de $2,7 \times 10^8$ p/cm ² , simulés par SRIM dans différents matériaux semi-conducteurs : SiC, le diamant ainsi que le GaN.....	84
Figure 3.2 : Simulation SRIM donnant le nombre de dpa pour une implantation à 2 MeV à une fluence de 5×10^{12} H ⁺ /cm ² (courbes rouges) et une fluence de 5×10^{15} H ⁺ /cm ² (courbes bleues) dans le : (a) SiC, (b) diamant et (c) GaN.	86
Figure 3.3 : Spectroscopie UV-visible avant et après implantation à 2 MeV avec différentes fluences : (a) SiC, (b) CVD diamant polycristallin, (c) CVD diamant monocristallin.....	88
Figure 3.4 : Spectroscopie UV-visible avant et après implantation à 2 MeV avec différentes fluences : (a) c-GaN SPS, (b) c-GaN DPS et (c) a-GaN.	89
Figure 3.5 : Spectroscopie de PL avant et après implantation à 2 MeV avec différentes fluences : (a) SiC (normalisé par rapport à l'émission bande à bande), (b) CVD diamant polycristallin, (c) CVD diamant monocristallin.	90
Figure 3.6 : Spectroscopie de PL avant (en noir) et après implantation à 2 MeV avec une fluence de 5×10^{12} H ⁺ /cm ² (en rouge) et une fluence de 5×10^{15} H ⁺ /cm ² (en bleu) : (a) c- GaN SPS, (b) c-GaN DPS, et (c) a-GaN.	92
Figure 3.7 : Modes vibrationnels du SiC non implanté obtenue par spectroscopie Raman. ..	93
Figure 3.8 : Evolution des mode TO et LOPC dans la profondeur du SiC en fonction du nombre d'onde : (a) avant implantation, (b) après implantation à 2 MeV et une fluence de 5×10^{12} H ⁺ /cm ² et (c) après implantation à 2 MeV et une fluence de 5×10^{15} H ⁺ /cm ²	94

Figure 3.9 : Évolution du pic des diamants polycristallins (a) et monocristallins (b) : avant implantation en noir, après implantation à 2 MeV avec une fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en bleu et après implantation à 2 MeV avec une fluence de 5×10^{15} en rouge.	95
Figure 3.10 : Images optiques de (a) diamant CVD polycristallin et (b) diamant CVD monocristallin. Évolution des spectres Raman en fonction de la profondeur avant (courbes noires) et après implantation de protons de 2 MeV avec des fluences de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (courbes rouges) et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (courbes bleues). Sont également présentés : (c) l'intensité du pic Raman pour le diamant polycristallin, (d) l'intensité du pic Raman pour le diamant monocristallin, ainsi que la largeur à mi-hauteur (FWHM) du pic Raman pour (e) le diamant polycristallin et (f) le diamant monocristallin.	97
Figure 3.11 : Spectres Raman réalisés sur la surface du (a) c-GaN SPS, (b) c-GaN DPS et (c) a-GaN.	98
Figure 3.12 : spectres Raman obtenus sur la tranche du (a) c-GaN SPS, (b) c-GaN DPS et (c) a-GaN.	99
Figure 3.13 : Évolution des spectres Raman dans la profondeur du SiC en fonction du nombre d'onde obtenus sur la tranche du c-GaN : (a) avant implantation, et après implantation à 2 MeV et une fluence de : (b) $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et (c) de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ ainsi que dans le a-GaN : (d) avant implantation, et après implantation à 2 MeV et une fluence de : (f) $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (g) $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$	100
Figure 3.14 : Profil d'implantation des positons dans le SiC pour une énergie incidente variant de 5 keV à 25 keV.	101
Figure 3.15 : Résultats des mesures de la spectroscopie d'élargissement Doppler sur le n-SiC vierge. La fraction d'annihilation des positons de faible moment S ainsi que la fraction d'annihilation de fort moment W en fonction de l'énergie des positons a été représentée..	102
Figure 3.16 : Résultats des mesures de la spectroscopie d'élargissement Doppler sur le n-SiC. La fraction d'annihilation des positons de faible moment S ainsi que la fraction d'annihilation de fort moment W ont été représentées pour des échantillons avant implantation (courbes noires) et après implantation à 2 MeV d'hydrogène avec deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en rouge et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en bleu) en fonction de l'énergie des positons.	103
Figure 3.17 : Comparaison des caractéristiques d'annihilation des positons S en fonction de W pour le n-SiC avant et après implantation ainsi que l'échantillon de référence Ilref2. (a) représente les valeurs plateau de chaque échantillon. (b) Comparaison des caractéristiques d'annihilation des positons S/S_{ref} en fonction de W/W_{ref} pour les échantillons Il ref2 ainsi que l'échantillon 4H-SiC de type n, avant et après implantation d'hydrogène à 2 MeV et deux fluences. Une représentation des défauts connus (V_{Si}) a été ajoutée.	104
Figure 3.18 : Profil d'implantation des positons dans le diamant pour une énergie incidente variant de 5 keV à 25 keV.	106
Figure 3.19 : La fraction d'annihilation des positons de faible moment S ainsi que la fraction d'annihilation de fort moment W en fonction de l'énergie des positons a été représenté pour le diamant vierge monocristallin.	106
Figure 3.20 : Caractéristiques d'annihilation de positon à faible moment en fonction de l'énergie des positons et de la fraction d'annihilation à fort moment W dans le diamant monocristallin. L'analyse a été conduite sur des échantillons vierges (en noire) et après	

<i>implantation à 2 MeV et deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en rouge et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en bleu).</i>	107
Figure 3.21 : (a) Caractéristiques d'annihilation de positon à faible moment en fonction de la fraction d'annihilation à fort moment W dans le diamant monocristallin, et (b) La fraction d'annihilation normalisée à faible moment S/S_{ref} en fonction de la fractions d'annihilation a fort moment W/W_{ref} des positons pour les échantillons diamant monocristallin. L'analyse a été conduite sur des échantillons vierges (en noire) et après implantation à 2 MeV et deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en rouge et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en bleu).	108
Figure 3.22 : Profil d'implantation des positons dans le GaN pour une énergie incidente variant de 5keV à 25 keV.	109
Figure 3.23 : La fraction de faible moment S ainsi que la fraction d'annihilation de fort moment W en fonction de l'énergie des positons a été représentée pour le GaN vierge : plan c SPS (courbe verte), plan c DPS (courbe bleue) et plan a (courbe rose).	110
Figure 3.24 : caractéristiques d'annihilation de positons à faible moment S et à fort moment W polycristallin en fonction de l'énergie des positon dans : (a) le c-GaN SPS et (b) le c-GaN DPS et (c) le a-GaN. L'analyse a été conduite sur des échantillons vierges (en noire) et après implantation à 2 MeV et deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en rouge et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en bleu).	111
Figure 3.25 : Fraction d'annihilation normalisée à faible moment S/S_{ref} en fonction de la fraction d'annihilation à fort moment W/W_{ref} des positons pour les échantillons GaN (a) plan c SPS, (b) plan c DPS et (c) plan a, avant et après implantation d'hydrogène à 2 MeV et deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$, $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$). Une représentation de V_{Ga} connue a été ajoutée pour chaque échantillon.	112
Figure 3.26 : Comparaison de la profondeur sondée selon les techniques de caractérisations et les différents matériaux. R_{p1} et R_{p2} correspondent à la profondeur de pénétration des protons de 2 MeV dans le GaN et le diamant (25μm) ainsi que le SiC (32μm), respectivement.	115
Figure 4.1 : Calcul des dpa obtenues par la simulation SRIM dans (a) le GaN et (b) le SiC. Les particules utilisées sont : le ^{12}C à 85MeV/n et 95MeV/n et une fluence de $1,14 \times 10^{11} \text{ p}/\text{cm}^2$, le ^{17}C à 100 MeV/n et une fluence de $10^8 \text{ p}/\text{cm}^2$ et le ^{37}Mg à 215 MeV/n et une fluence de $10^8 \text{ p}/\text{cm}^2$.	126
Figure 4.2 : Comparaison des dpa obtenues par les différentes conditions d'irradiations dans le GaN et le SiC. Le ^{12}C à 85MeV/n et 95MeV/n et une fluence de $1,14 \times 10^{11} \text{ p}/\text{cm}^2$, le ^{17}C à 100 MeV/n et une fluence de $10^8 \text{ p}/\text{cm}^2$ et le ^{37}Mg à 215 MeV/n et une fluence de $10^8 \text{ p}/\text{cm}^2$ ont été utilisés comme conditions d'irradiation.	127
Figure 4.3 : Spectroscopie UV-visible avant et après irradiation avec différentes particules et énergies : (a) GaN vierge (DPS), irradié au ^{12}C à 85 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p}/\text{cm}^2$ (noir), irradié au ^{12}C à 95 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p}/\text{cm}^2$ (rouge)(DPS), au ^{17}C à 100 MeV/n et $10^8 \text{ p}/\text{cm}^2$ (jaune) et au ^{37}Mg 215 MeV/n et $10^8 \text{ p}/\text{cm}^2$ (vert) ainsi que le (b) SiC vierge (noir), irradié au ^{12}C à 85 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p}/\text{cm}^2$(rouge), irradié au ^{12}C à 95 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p}/\text{cm}^2$(bleu), et au ^{37}Mg à 215 MeV/n et $10^8 \text{ p}/\text{cm}^2$ (vert).	128
Figure 4.4 : Spectroscopie de photoluminescence avant et après irradiations à hautes énergies: (a) du GaN vierge, irradié au ^{12}C à 85 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p}/\text{cm}^2$ (noir), irradié au ^{12}C à 95 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p}/\text{cm}^2$ (rouge), au ^{17}C à 100 MeV/n et $10^8 \text{ p}/\text{cm}^2$ (jaune) et au ^{37}Mg	

215 MeV/n et 10^8 p/cm ² (vert) ainsi que du (b) SiC vierge (noir), irradié au ¹² C à 85 MeV/n et $1,14 \times 10^{11}$ p/cm ² (rouge), irradié au ¹² C à 95 MeV/n et $1,14 \times 10^{11}$ p/cm ² (bleu), et au ³⁷ Mg à 215 MeV/n et 10^8 p/cm ² (vert). Cette analyse a été réalisée à température ambiante (RT) 130	
Figure 4.5 : Cartographies de la position des modes Raman TO (à gauche) et LO (à droite) du GaN avant et après irradiation ionique. Les spectres représentatifs en partie supérieure montrent les pics Raman mesurés utilisés pour cette cartographie.	132
Figure 4.6 : Cartographies de la largeur à mi-hauteur (FWHM) des modes Raman TO (à gauche) et LO (à droite) du GaN avant et après irradiation ionique. Les spectres représentatifs en partie supérieure montrent les pics Raman mesurés sur l'échantillon vierge.....	133
Figure 4.7 : Cartographies de la position des modes Raman TO (à gauche) et LO (à droite) du SiC avant et après irradiation ionique. Les spectres représentatifs en partie supérieure montrent les pics Raman mesurés sur l'échantillon vierge.	134
Figure 4.8 : Cartographies de la largeur à mi-hauteur (FWHM) des modes Raman TO (à gauche) et LO (à droite) du SiC avant et après irradiation ionique. Les spectres représentatifs en partie supérieure montrent les pics Raman mesurés.	135
Figure 4.9 : Spectroscopie d'élargissement Doppler sur le SiC non dopé. La fraction d'annihilation des positons de faible moment S ainsi que la fraction d'annihilation de fort moment W a été représentée pour l'échantillons vierge en fonction de l'énergie des positons.	137
Figure 4.10 : Variation des fractions de positons de faible moment S, ainsi que de fort moment W en fonction de l'énergie obtenues expérimentalement dans le SiC avant et après irradiation avec une fluence de $1,14 \times 10^{11}$ p/cm ² avec des ions de ¹² C d'énergie 85 MeV/n et 95 MeV/n et une fluence de 10^8 p/cm ² des ions ³⁷ Mg à 215 MeV/n.....	138
Figure 4.11 : Résultats des mesures de la spectroscopie d'élargissement Doppler sur le GaN. La fraction d'annihilation des positons de faible moment S ainsi que la fraction d'annihilation de fort moment W a été représentée pour des échantillons vierges et irradiés en fonction de l'énergie des positons.	140
Figure 4.12 : Concentration des lacunes en fonction des dpa après une implantation d'hydrogène dans le SiC, le diamant et le GaN. Les résultats obtenus par SRIM sont comparés à ceux obtenus par PAS.	143
Figure 4.13 : Concentration des lacunes estimée par SRIM en fonction des dpa induits après irradiation aux ions lourds dans le SiC et le GaN.	143
Figure 4.14 : (a) Schéma illustrant la zone de trace étudiée lorsque la particule passe à travers les échantillons et (b) la zone Rp lorsque la particule est stoppée dans les échantillons.	145
Figure 5.1 : Visualisations sous Geant4 du ⁵³ Ca avec une énergie cinétique de 180 MeV/n dans le GaN (radiateur en bleu). La distribution des photons Cherenkov sur la surface du détecteur sous forme d'un cône (a) et d'un anneau (b) est représentée. La couleur verte représente les photons émis dans le volume alors que le jaune représente l'interaction avec la surface du radiateur (GaN dans notre cas).	149
Figure 5.2 : Distributions simulées dans le GaN avec ROOT de l'énergie cinétique (Energie), de la vitesse relative (β) et de l'angle Cherenkov (Angle) pour les différents isotopes de calcium produits (⁵² Ca en magenta, ⁵³ Ca en bleu, ⁵⁴ Ca en vert et ⁵⁵ Ca en rouge) par la fragmentation du ⁵⁶ Sc avec une résolution énergétique du faisceau de : (a) 1% et (b) 0,1%.	151

Figure 5.3 : Simulation avec ROOT de : (a) l'énergie cinétique des isotopes de Ca, (b) la vitesse relative du ^{52}Ca et du ^{53}Ca , et (c) l'angle d'émission des photons Cherenkov obtenus après le passage de chaque isotope dans le GaN. Les courbes en noir représentent la somme des deux contributions isotopiques.	152
Figure 5.4 : Schéma représentant l'émission du cône Cherenkov ainsi que la variation angulaire obtenue lorsqu'une particule traverse un radiateur d'épaisseur L avec une vitesse considérée constante (a) ou variable et due à sa perte d'énergie (b)	153
Figure 5.5 : Schéma représentant l'émission du cône Cherenkov ainsi que la variation angulaire obtenue dans un radiateur d'épaisseur L traversé par : (a) une particule P_1 de masse m_1 et (b) une particule P_2 de masse m_2 . La variation angulaire dépend de la masse des particules. Dans ce cas $m_1 > m_2$	153
Figure 5.6 : Simulation avec ROOT de la distribution angulaire des isotopes ^{52}Ca et ^{53}Ca accélérés dans le GaN avec une énergie cinétique de 180 MeV/n et une résolution du faisceau de : (a) 1%, (b) 0,35% et (c) 0,325%.	154
Figure 5.7 : Simulation avec ROOT de la distribution angulaire des isotopes ^{52}Ca et ^{53}Ca accélérés dans le SiC avec une énergie cinétique de 180 MeV/n et une résolution du faisceau de : (a) 1%, (b) 0,35% et (c) 0,325%.	155
Figure 5.8 : Géométries possibles pour le radiateur Cherenkov où (a) représente une géométrie monolithique et (b) représente une géométrie segmentée.	156
Figure 5.9 : Irradiations au GANIL des échantillons SiC et GaN. (a) Une webcam a été utilisée pour visualiser les photons Cherenkov émis durant les irradiations. Des images obtenues sur du GaN irradié sous un faisceau de ^{12}C avec une énergie de (b) 85 MeV/n et (c) 95 MeV/n.	158
Figure 5.10 : Méthode de détection du cône Cherenkov par plan de photomultiplicateurs.	159
Figure 5.11 : Séparation du ^{52}Ca et du ^{53}Ca traversant deux radiateurs de même nature en utilisant les énergies seuil Cherenkov (E_{th}) et les énergies déposées.	160

Introduction générale

La découverte des isotopes a profondément transformé notre compréhension du monde microscopique et a ouvert la voie à des avancées majeures dans des domaines aussi variés que la médecine, notamment pour le traitement du cancer [1], la géologie avec la datation des roches et des fossiles [2], ou encore la production d'énergie [3]. Ces progrès illustrent l'importance fondamentale de l'étude des noyaux atomiques et de leurs propriétés, en particulier lorsqu'il s'agit d'isotopes rares situés loin de la vallée de stabilité (représentant les isotopes stables).

Dans ce contexte, le laboratoire *Facility for Rare Isotope Beams* (FRIB) [4] [5], installé sur le campus de Michigan State University, représente une avancée technologique et scientifique majeure. Entré en service le 10 mai 2022, FRIB est une installation de production et de séparation des isotopes qui s'appuie sur un accélérateur linéaire de très haute intensité. Celui-ci permet de fournir des faisceaux primaires d'ions stables allant de l'hydrogène à l'uranium, avec des énergies pouvant aller jusqu'à des valeurs d'environ 200 MeV par nucléon et des puissances de faisceau pouvant atteindre 400 kW [6] [7]. Ces performances exceptionnelles offrent un accès inédit à des isotopes jusqu'alors inaccessibles ou produits en quantités insuffisantes.

FRIB devrait permettre la découverte de plus de 1 000 nouveaux isotopes, ce qui constitue un potentiel exceptionnel pour notre compréhension de la structure nucléaire, de l'astrophysique nucléaire, des interactions fondamentales et des applications sociétales liées aux isotopes. En effet, l'installation donne aux scientifiques la possibilité d'étudier de manière systématique les propriétés de noyaux rares et exotiques, allant de leur masse et de leur durée de vie à leurs modes d'excitation ou de désintégration. Ces études sont essentielles pour améliorer les modèles théoriques de la matière nucléaire et pour répondre à des questions fondamentales telles que l'origine des éléments lourds dans l'univers ou la nature des interactions entre nucléons.

Dans ce cadre général, de nouveaux défis expérimentaux apparaissent, notamment en ce qui concerne la production, la détection et la séparation efficace des isotopes rares parmi un large ensemble de fragments issus de la fragmentation relativiste. Ces défis sont au cœur des efforts actuels de développement d'instruments, de détecteurs et de méthodes d'analyse avancées.

Pour pouvoir séparer les isotopes, il est nécessaire de déterminer : (i) leur masse ainsi que (ii) leurs charges. La masse m des isotopes est déterminée par la relation : $P = m \times v$, avec P représentant l'impulsion de la particule et v sa vitesse. La charge de la particule, quant à elle, est déterminée en calculant l'énergie déposée lors de son passage dans un détecteur, en utilisant la formule de Beth-Block.

Depuis son installation, FRIB s'est essentiellement basé sur la technique du temps de vols (TOF- Time of Flight) pour séparer et identifier ces isotopes rares. Celle-ci présente plusieurs limitations qui influencent la capacité à séparer efficacement des isotopes [8][9][10][11] dont :

- La dispersion énergétique du faisceau : Les ions d'un même isotope peuvent présenter des variations d'énergie, ce qui induit des différences de vitesse et élargit les pics dans le spectre TOF. Cette dispersion réduit la netteté des distributions et complique la séparation d'isotopes de masses proches.
- La limite de la résolution liée au principe TOF et aux performances instrumentales : La discrimination entre isotopes repose sur la différence de leurs temps de vol, elle-même déterminée par leur rapport masse/charge. Lorsque les masses sont très proches, les temps de parcours deviennent quasi indiscernables, ce qui constitue une limite physique du principe TOF. Pour améliorer la séparation, le système doit atteindre une résolution temporelle très élevée et souvent disposer d'un trajet de vol suffisamment long, ce qui représente une contrainte instrumentale majeure.

Actuellement l'objectif principal du FRIB est d'augmenter l'énergie des particules accélérées afin d'élargir le champ de création des isotopes rares. Cette augmentation des énergies entraîne une hausse des vitesses des ions. Celle-ci combinée à la surface limitée de la zone expérimentale S2 qui ne varie pas, rend difficile, voire impossible, son utilisation pour certains noyaux. Cette méthode, combinée avec l'ensemble des PIDs (Particle Identification Detectors), sera présentée au Chapitre 2. Dans ce contexte, un détecteur Cherenkov apparaît comme une solution prometteuse car il viendrait compléter l'ensemble des détecteurs existants en utilisant l'effet Cherenkov [8]. L'émission de photons due à cet effet permet une mesure directe de la vitesse des ions, offrant ainsi une alternative efficace pour l'identification des isotopes à haute énergie.

Un détecteur Cherenkov se compose de la partie « radiateur » et d'une partie détection. Ce travail de thèse porte sur l'étude et la caractérisation de semiconducteurs à large bande interdite, dans le but d'identifier un candidat optimal pouvant jouer le rôle de pour la séparations et l'identification des isotopes radiateur dans le détecteur Cherenkov. Une séparation isotopique n'est possible que si le milieu radiateur conserve une transparence suffisante et un indice de réfraction stable dans le domaine du visible. Soit une bonne résistance à l'irradiation. Le choix du matériau constitue donc une étape cruciale pour garantir une émission efficace de la lumière Cherenkov, tout en assurant une transparence et une résistance adaptées aux conditions expérimentales.

L'objectif principale de ce travail de thèse est d'étudier les défauts induits par irradiations dans le SiC, le GaN et le diamant en balayant une large gamme de taux d'endommagement. Et ainsi, identifier l'impact de ces défauts sur les propriétés optiques et structurales du matériau, en lien avec son utilisation potentielle comme radiateur Cherenkov. Le but de ce travail est donc de caractériser et de sélectionner le meilleur matériau : (i) capable de générer un rayonnement Cherenkov détectable, et (ii) résistant à l'irradiation. Ce radiateur sera utilisé au laboratoire américain FRIB (*Facility for Rare Isotope Beams*).

Nous avons pour cela partagé notre travail en cinq chapitres :

Le **premier chapitre** présente l'état de l'art sur les détecteurs Cherenkov. Il commence par une introduction du principe de l'effet Cherenkov, puis décrit les principaux types de détecteurs ainsi que les critères permettant de choisir un radiateur Cherenkov adapté. Ce chapitre se poursuit par la présentation détaillée des trois semiconducteurs à large bande interdite (SiC, diamant et GaN) sur lesquels repose ce travail de thèse. Un état de l'art sur les défauts natifs et induits par irradiation termine ce chapitre.

Le **deuxième chapitre** expose la méthodologie adoptée dans ce travail de thèse. Les échantillons étudiés, à savoir : le SiC, le diamant et le GaN, y sont décrits, suivis de la présentation des outils de simulation utilisés (SRIM, GEANT4 et ROOT) pour comprendre les phénomènes mis en jeu. Sont également détaillées les différentes techniques de caractérisation complémentaires : la spectroscopie UV-Visible, la photoluminescence, la spectroscopie Raman et la spectroscopie d'annihilation des positons.

Le **troisième chapitre** porte sur l'étude des effets des implantations d'hydrogène à 2 MeV, réalisées au laboratoire CEMHTI/CNRS d'Orléans. Le large domaine de fluences utilisées permet surtout d'avoir une étude très complète sur la résistance des 3 semi-conducteurs soumis à des taux d'endommagement allant bien au-delà de ceux utilisés à FRIB.

Le **quatrième chapitre** se focalise sur l'étude des irradiations aux ions lourds à hautes énergies. Ces irradiations avec des ions lourds tels que le ^{12}C , le ^{17}C et le ^{37}Mg ont été réalisées à hautes énergies (≥ 85 MeV/n) au GANIL et à FRIB.

Enfin, le **cinquième chapitre** présente les différentes étapes mises en place pour la réalisation d'un prototype préliminaire d'un détecteur Cherenkov destinée à compléter l'appareillage expérimental de la Collaboration MoNA pour l'identification des particules (PID) du détecteur.

Références

- [1] D. E. Milenic et M. W. Brechbiel, « Targeting of Radio-Isotopes for Cancer Therapy », *Cancer Biology & Therapy*, vol. 3, n° 4, p. 361-370, avr. 2004, doi: 10.4161/cbt.3.4.790.
- [2] R. Grün, « Direct dating of human fossils », *Am. J. Phys. Anthropol.*, vol. 131, n° S43, p. 2-48, déc. 2006, doi: 10.1002/ajpa.20516.
- [3] A. Mushtaq, « Producing radioisotopes in power reactors », *J Radioanal Nucl Chem*, vol. 292, n° 2, p. 793-802, mai 2012, doi: 10.1007/s10967-011-1537-5.
- [4] J. Wei *et al.*, « Accelerator commissioning and rare isotope identification at the Facility for Rare Isotope Beams », *Mod. Phys. Lett. A*, vol. 37, n° 09, p. 2230006, mars 2022, doi: 10.1142/S0217732322300063.
- [5] B. M. Sherrill, « Future Opportunities at the Facility for Rare Isotope Beams », *EPJ Web Conf.*, vol. 178, p. 01001, 2018, doi: 10.1051/epjconf/201817801001.
- [6] R. Zegers, « The High Rigidity Spectrometer at the Facility for Rare Isotope Beams », *Nuclear Physics News*, vol. 32, n° 4, p. 16-19, oct. 2022, doi: 10.1080/10619127.2022.2100647.
- [7] K. McGee *et al.*, « Developments Towards FRIB Upgrade to 400 MeV/u for Heaviest Uranium Ions », *Proceedings of the 31st International Linear Accelerator Conference*, vol. LINAC2022, p. 4 pages, 1.301 MB, 2022, doi: 10.18429/JACOW-LINAC2022-TH1AA02.
- [8] M. F. L'Annunziata, « Cherenkov Radiation », in *Radioactivity*, Elsevier, 2023, p. 823-864. doi: 10.1016/B978-0-323-90440-7.00009-0.

Chapitre 1. État de l'art sur les détecteurs Cherenkov et le rôle des semi-conducteurs à grand gap comme radiateurs

Table des matières

1	État de l'art sur les détecteurs Cherenkov et le rôle des semi-conducteurs à grand gap comme radiateurs.....	6
1.1	Définition du détecteur Cherenkov.....	6
1.2	Les différents types de détecteurs Cherenkov	9
1.2.1	Détecteur Cherenkov à imagerie en anneau	9
1.2.2	Détecteur Cherenkov à temps de propagation.....	10
1.2.3	Détecteurs à seuils	11
1.3	Choix du radiateur	11
1.4	Description des semi-conducteurs à grands gaps : propriétés et applications dans le domaine de la physique nucléaire et des hautes énergies	13
1.4.1	Propriétés du SiC, diamant et GaN.....	14
1.4.2	Applications des grands gaps dans le domaine de la physique nucléaire et des hautes énergies.....	20
1.5	Défauts natifs et défauts créés par irradiation dans le SiC, le diamant et le GaN ...	22
1.5.1	Défauts natifs	22
1.5.2	Défauts induits par irradiation et leurs effets optiques sur le SiC, diamant et GaN	32
1.5.3	Effets des irradiations sur les propriétés optiques du SiC, diamant et GaN	37
1.6	Bilan du chapitre et objectif de la thèse	39
	Références.....	41

1 État de l'art sur les détecteurs Cherenkov et le rôle des semi-conducteurs à grand gap comme radiateurs

Ce chapitre est consacré à présenter un état de l'art sur l'effet et les détecteurs Cherenkov ainsi que leurs applications. Ce chapitre sera largement concentré sur les semi-conducteurs à grand gap qui pourraient être utilisés comme radiateurs potentiels dans une nouvelle génération de ce type de détecteurs destinés à la séparation des isotopes rares à FRIB.

Nous commencerons dans les deux premières sections par présenter les principes fondamentaux de l'effet Cherenkov (section1), ainsi que les deux parties essentielles qui constituent sa détection, avant de passer en revue les types de détecteurs couramment utilisés dans diverses expériences (section2). Sur cette base, nous avons identifié le rôle central du radiateur, élément clé dans la génération du rayonnement Cherenkov, et défini les critères essentiels guidant son choix ; indice de réfraction, transparence, résistance aux irradiations, etc. ; présenté dans la section 3. Nous avons ensuite mis en évidence le potentiel des matériaux à large bande interdite dans les conditions d'une forte irradiation. Trois semi-conducteurs à grand gap (section 4) : le carbure de silicium (SiC), le diamant et le nitrure de gallium (GaN) seront présentés en détail. Pour chacun, nous décrirons les propriétés physiques et électroniques, ensuite nous explorerons leurs applications dans le domaine des hautes énergies et des accélérateurs. Les défauts natifs, ainsi que ceux induits par irradiation et leurs effets sur les propriétés optiques de ces trois matériaux sont présentés dans la section 5. Enfin, nous explorerons leurs principales applications technologiques, avant de nous recentrer sur le cas spécifique qui nous intéresse : leur utilisation potentielle comme radiateurs dans des détecteurs Cherenkov à FRIB.

1.1 Définition du détecteur Cherenkov

Lorsqu'une particule traverse un milieu diélectrique d'indice de réfraction « n » avec une vitesse supérieure à la vitesse de la lumière « c » dans ce milieu ($v > c/n$), une lumière bleue est émise : c'est l'effet Cherenkov [1]. Ce dernier est souvent comparé à un bang supersonique : de la même manière qu'un avion dépassant la vitesse du son génère une onde de choc acoustique (« sonic boom »), comme on peut le constater sur la Figure 1.1a.

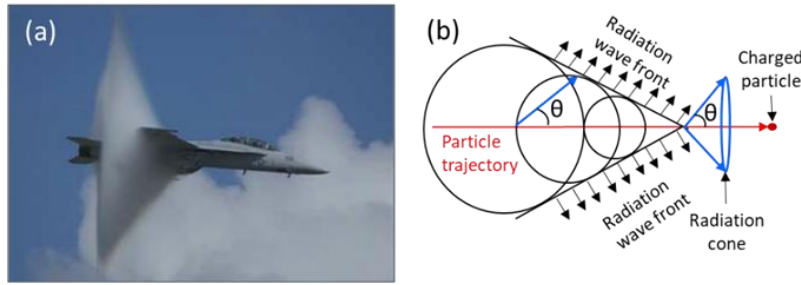


Figure 1.1 : Fronts d'onde coniques produits par : **(a)** un avion se déplaçant à une vitesse supersonique, et **(b)** une particule chargée se déplaçant à une vitesse supérieure à celle de la lumière dans un milieu transparent.

Les photons émis par l'effet Cherenkov sont dus aux changements rapides de polarisation causés par le déplacement de la particule et se propagent sous forme d'un cône (Figure 1.1b). L'angle d'ouverture du cône θ dépend de la vitesse de la particule par la relation $\cos\theta = \frac{1}{\beta \times n}$ avec $\beta = \frac{v}{c}$ est la vitesse relative. Ainsi, en détectant l'anneau du cône Cherenkov, il est possible de calculer la vitesse de la particule.

Par ailleurs, le nombre de photons émis N peut être calculé à l'aide de l'équation de Frank et Tamm [2] Figure 1.2a

$$\frac{dN}{dl} = 2\pi\alpha z^2 \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} \right) \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n^2} \right)$$

Cette équation décrit le nombre de photons émis par une particule chargée (z) avec une énergie E parcourant une distance dl dans un milieu d'indice de réfraction n . Ceci, dans une région spectrale comprise entre les longueurs d'onde λ_1 et λ_2 , où α est la constante de structure fine valant $1/137$. L'allure du spectre des photons est proportionnelle à $1/\lambda^2$. La Figure 1.2b montre la lumière bleue observée dans l'eau qui entoure les réacteurs nucléaires [3]

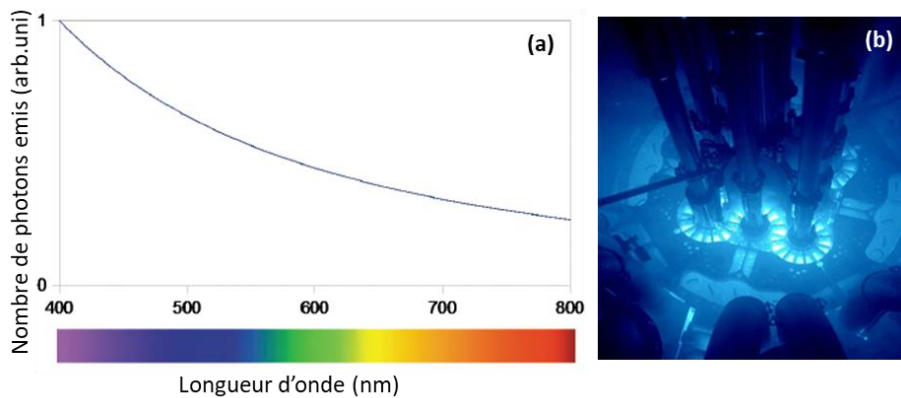


Figure 1.2 : **(a)** Spectre du rayonnement Cherenkov ainsi que **(b)** la lumière bleue émise.

Un détecteur Cherenkov se compose donc essentiellement de deux éléments principaux comme on peut le constater sur la Figure 1.3:

- Le radiateur (partie I) : c'est le milieu dans lequel la lumière Cherenkov est émise lorsque la particule incidente dépasse la vitesse de la lumière dans le milieu, celui-ci est la colonne vertébrale de notre étude ; et
- Le système de détection (partie II) : il capte et mesure les photons Cherenkov produits (Photomultiplicateurs (PMT), photodiodes à avalanche (APD), camera, etc.).

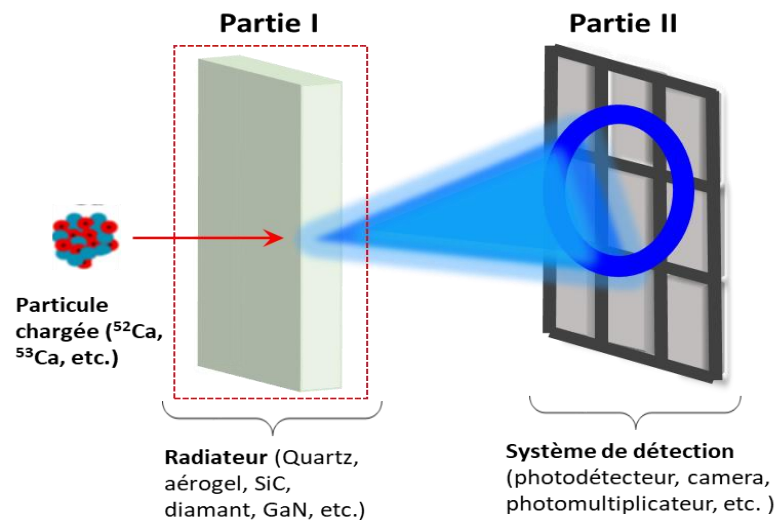


Figure 1.3 : Principe et structure d'un système de détection Cherenkov composé de deux parties essentielles : la partie I, correspondant au radiateur (entouré par des pointillés rouges) et la partie II, qui correspond au système de détection.

Le détecteur Cherenkov repose sur le phénomène de rayonnement Cherenkov dont l'intérêt principal est de mesurer la vitesse relative ($\beta = v/c$) des particules, ce qui permet, combiné à d'autres mesures (comme l'énergie ou l'impulsion), d'identifier leur type avec une grande précision. Contrairement aux détecteurs classiques (comme les scintillateurs), il est insensible aux particules lentes ou neutres (en-dessous du seuil d'émission des photons), ce qui en fait un outil sélectif et efficace pour discriminer les particules dans des environnements à haut flux, comme les accélérateurs ou les rayons cosmiques. Il offre une résolution temporelle et angulaire excellente, avec un faible coût relatif pour de grandes surfaces. Ces détecteurs sont utilisés dans plusieurs applications telles que :

- La physique nucléaire pour la séparation isotopique, en utilisant l'eau, les aérogels, des gaz ou même du quartz comme radiateur [4] [5] [6].
- Les applications médicales et imagerie, en utilisant l'eau ou les tissus biologiques comme radiateur [7] [8].

Avant de nous concentrer sur le radiateur, présentons d'abord les différents types de détecteur Cherenkov généralement utilisés.

1.2 Les différents types de détecteurs Cherenkov

Plusieurs types de détecteurs Cherenkov ont été développés depuis sa découverte. Ils se distinguent principalement par la nature du radiateur utilisé et par la manière dont le rayonnement Cherenkov est collecté et analysé.

1.2.1 Détecteur Cherenkov à imagerie en anneau

Aussi appelés « Ring Imaging Cherenkov Detector : RICH Detector », leur principe repose sur la détection de l'anneau lumineux formé par les photons Cherenkov, comme décrit dans la section 1.1. En d'autres termes, ceci consiste à imager les photons Cherenkov émis par une particule traversant un milieu radiateur.

Selon le mode de collecte des photons, deux types de détecteurs RICH peuvent être distingués :

- L'un d'eux utilise des lentilles pour focaliser les photons sur un plan d'imagerie de photons [9] (Figure 1.4a). Les photons sont émis selon un cône de demi-angle θ_c autour de la trajectoire de la particule et sont réfléchis par un miroir sphérique concave de rayon R , qui les focalise sur un plan focal situé à une distance $f = R/2$ du miroir. Les photons Cherenkov convergent alors sur ce plan focal pour former un anneau lumineux, dont le rayon r dépend directement de l'angle θ_c . Le rayon de l'anneau peut être exprimé par la relation : $r = \frac{R}{2} \tan \theta_c$.
- Un autre type de détecteur, appelé détecteur RICH à focalisation par proximité (« proximity focusing RICH detector »), repose sur le principe de la focalisation géométrique naturelle, sans recours à des éléments optiques tels que des lentilles ou des miroirs (Figure 1.4b). Lorsque le radiateur possède un indice de réfraction élevé, le nombre de photons Cherenkov émis augmente, et est approximé à $N \sim \sin 2\theta_c$. Dans cette configuration, l'utilisation d'un radiateur mince ($l \ll L$, où l est l'épaisseur du radiateur et L la distance au plan de détection) permet de générer un anneau lumineux de faible largeur. Si cette largeur reste suffisamment réduite pour garantir la résolution angulaire requise, aucun système de focalisation supplémentaire n'est nécessaire, ce qui simplifie considérablement la conception du détecteur. Ce type de détecteur est notamment utilisé au Jefferson Lab en Virginie pour la séparation des kaons et des pions.

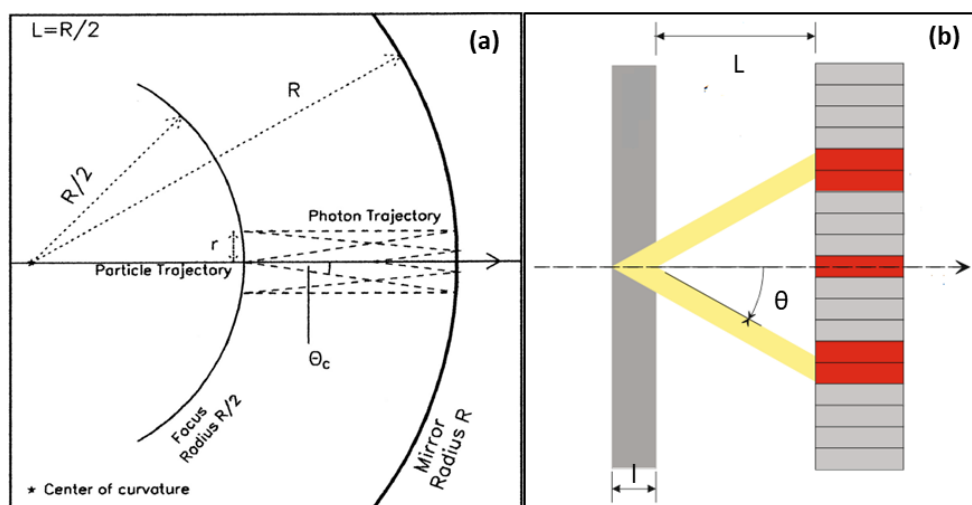


Figure 1.4 : Principe d'un détecteur RICH : **(a)** en forme sphérique entouré par un miroir également sphérique. Les trajectoires des photons Cherenkov sont représentées par des lignes pointillées, dans l'approximation des petits angles, autour de la trajectoire de la particule et **(b)** à focalisation par proximité [10].

1.2.2 Détecteur Cherenkov à temps de propagation

Ces détecteurs sont conçus pour l'identification de particules par la mesure du temps de propagation des photons Cherenkov à travers un radiateur en quartz. Ils sont aussi appelés « TOP : Time Of Propagation ». Cette approche est notamment utilisée dans l'expérience Belle II au Japon pour la détection des particules [11].

Le principe, illustré en Figure 1.5a, repose sur la réflexion totale interne des photons Cherenkov émis par une particule incidente dans une barre de quartz de dimensions 20 mm × 400 mm × 3150 mm (radiateur). Les photons se propagent le long de la barre par réflexions successives et sont détectés à l'extrémité par un système de détection ultra-rapide. Un miroir placé à l'extrémité opposée permet de renvoyer les photons vers le détecteur, optimisant ainsi leur collecte. La Figure 1.5b illustre la propagation des photons Cherenkov à l'intérieur de la barre de quartz. La trajectoire des photons issus d'un kaon est représentée en bleu, tandis que celle des photons émis par un pion est en rouge. En raison de leur plus grand angle Cherenkov, les pions génèrent des photons qui ont un trajet plus court dans la barre, ce qui se traduit par une arrivée rapide au détecteur, comparée à celle des photons émis par les kaons.

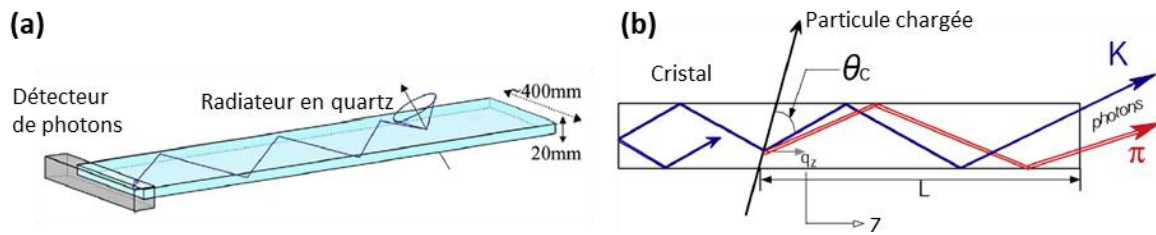


Figure 1.5 : (a) Principe de fonctionnement du détecteur TOP. La trajectoire d'une particule, émise depuis le point d'interaction d'un collisionneur électron-positon, est représentée par une flèche traversant la barre de quartz du détecteur depuis le bas. (b) Un exemple montrant les différences entre la détection des photons émis par les kaons (en bleu) et les pions (en rouge) [11].

Grâce à sa compacité, sa résolution temporelle élevée et l'absence de lentilles ou de miroirs volumineux (comme dans les RICH classiques), le détecteur TOP s'intègre facilement dans les expériences à haute densité, tout en conservant d'excellentes performances pour l'identification des particules.

1.2.3 Détecteurs à seuils

Aussi appelés threshold Cherenkov detectors, ces types de détecteurs sont basés sur le principe selon lequel seules les particules dont la vitesse relative dépasse le seuil β_{th} déterminé par le radiateur d'indice n ($\beta_{th} > 1/n$) produisent l'effet Cherenkov. Pour une même impulsion p , il est possible de séparer deux particules de masses m_1 et m_2 ayant des vitesses relatives β_1, β_2 respectivement, en choisissant un milieu radiateur dont l'indice de réfraction est tel que $\beta_1 < \beta_{th} < \beta_2$. Ainsi, seule la particule se déplaçant à la vitesse β_2 émettra des photons Cherenkov.

Dans ce contexte, Adachi *et al.* [12] ont conçu un détecteur Cherenkov à seuil pour identifier les pions π^+ et les kaons K^+ dans un faisceau de particules. Un aérogel de silice de 14 cm d'épaisseur, avec un indice de réfraction de $n = 1,0127$, a été utilisé comme radiateur, associé à des photomultiplicateurs pour détecter les photons émis. R. Siudak *et al.* [13] ont également appliqué ce concept pour la séparation des π^+ et K^+ , les pions étant les seuls à émettre l'effet Cherenkov avec une impulsion $p > 900$ MeV/c, tandis que les kaons, dont la vitesse reste inférieure au seuil, n'en émettent pas. De nombreuses autres études ont confirmé l'intérêt de ce type de détecteurs pour l'identification de particules [14] [15].

1.3 Choix du radiateur

Le radiateur est l'un des éléments fondamentaux du détecteur Cherenkov. Il s'agit d'un milieu transparent (gaz, liquide, solide) dans lequel une particule chargée peut produire, ou non, l'effet Cherenkov, selon sa vitesse. Le choix du radiateur repose sur deux critères important :

- La génération de l'effet Cherenkov

La condition seuil pour une émission Cherenkov dans un milieu transparent est $\beta_{th} > 1/n$. La valeur de β_{th} dépend de l'énergie cinétique E_K de la particule incidente, donnée par Jelley (1962)[16] :

$$E_k = m_0 c^2 \left[\frac{1}{(1 - \beta_{th}^2)^{1/2}} - 1 \right]$$

Avec m_0 la masse de la particule au repos, c la vitesse de la lumière dans le vide et E_k l'énergie cinétique de la particule. La vitesse relative seuil β_{th} peut donc s'écrire :

$$\beta_{th} = \left[1 - \left(\frac{1}{\left(\frac{E_k}{m_0 c^2} \right) + 1} \right)^2 \right]^{1/2}$$

Ainsi, l'indice de réfraction minimal du radiateur à choisir doit donc satisfaire la condition : $n > \frac{1}{\beta_{th}}$.

Un exemple d'application est montré sur la Figure 1.6, illustrant la variation de β_{th} ainsi que l'indice de réfraction équivalent en fonction de l'énergie cinétique de l'isotope ^{53}Ca . On observe clairement que lorsque l'énergie cinétique du ^{53}Ca augmente, sa vitesse relative seuil augmente également. Cela entraîne une diminution de l'indice de réfraction nécessaire à l'émission Cherenkov.

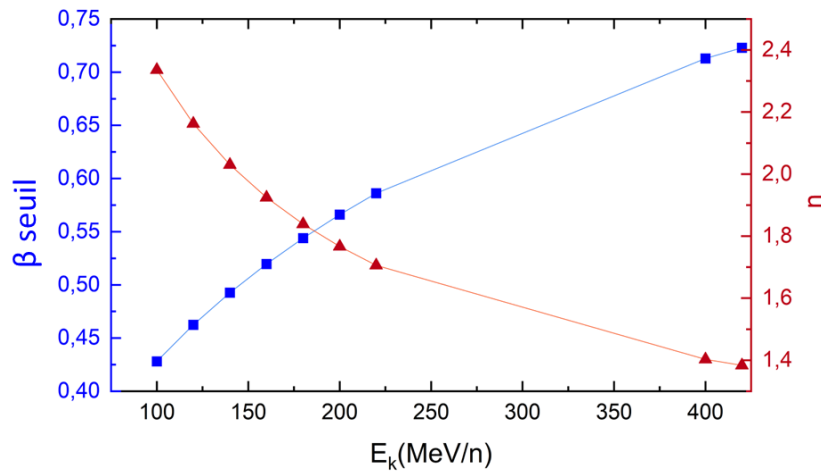


Figure 1.6 : Graphe représentant l'évolution de beta seuil β_{th} à gauche ainsi que l'indice de réfraction équivalent à droite, en fonction de l'énergie cinétique du ^{53}Ca .

- La transmission de l'effet Cherenkov

L'effet Cherenkov émet une lumière bleue qui doit être transmise par le matériau. Le choix du matériau doit donc d'une part satisfaire la condition suivante : $E_g > E_{ph}$ (avec E_g : énergie du gap et E_{ph} : énergie des photons), et d'autre part être résistant aux irradiations qui peuvent générer des défauts pouvant absorber les photons Cherenkov émis.

Plusieurs types de radiateurs ont été utilisés selon les applications expérimentales. Le Tableau 1.1 illustre les plus utilisés.

Tableau 1.1 : Différents radiateurs Cherenkov existants ainsi que leur application.

Types de radiateur	Indices de réfraction	Applications
Liquide (eau, Fréon)	(1,3– 1,5)	Détecteur TOF, Super-Kamiokande [17]
Gaz	1,001	Détecteur COMPASS RICH1 [18], Dual RICH de Electron–Ion Collider 'EIC [19]
Aérogels (Silice)	(1,01–1,06)	Compteur Cherenkov à seuil [20]
Solides (Quartz, LiF)	(1,4–1,5)	Détecteur RICH BELL II [21] [11] [22]

Ces matériaux conventionnels ayant **un faible indice de réfraction ($n < 1,3$)** sont conçus pour des particules ultra-relativistes ($\beta \rightarrow 1,0$). Ils sont donc inadaptés aux installations expérimentales travaillant avec des faisceaux d'isotopes rares à basse énergie (comme FRIB [23], RIKEN [24], GANIL [25]), où la vitesse relative des particules est de l'ordre de $\beta \approx 0,5$. Dans ce contexte, il est nécessaire d'utiliser des matériaux à indice de réfraction élevé (**$n > 1,85$**) pour permettre l'émission de lumière Cherenkov.

Les semi-conducteurs à grand gap, en plus de leur transparence dans le visible et de leur robustesse structurelle, doivent être résistants aux irradiations pour être compatibles avec des environnements de forte irradiation. De ce fait, la présence de défauts cristallins, qu'ils soient intrinsèques ou induits par irradiation, peut altérer le rayonnement Cherenkov.

1.4 Description des semi-conducteurs à grands gaps : propriétés et applications dans le domaine de la physique nucléaire et des hautes énergies

Le carbure de silicium (SiC), le nitrure de gallium (GaN) ainsi que le diamant, feront l'objet de notre étude pour identifier le radiateur idéal pour l'émission Cherenkov avec une application sur l'identification et la séparation des ions lourds. Le Tableau 1.2 résume les principales caractéristiques de ces différents matériaux.

Tableau 1.2 : Caractéristiques principales du SiC, diamant et GaN.

Matériaux	Gap	Densité	Indice de réfraction
	(eV)	(g/cm ³)	à 450 nm
4H-SiC	3,26	3,21	2,6
Diamant	5,5	3,5	2,5
GaN	3,4	6,15	2,44

1.4.1 Propriétés du SiC, diamant et GaN

1.4.1.1 Le carbure de silicium (SiC)

La synthèse d'un matériau composé contenant des liaisons silicium-carbone a été rapportée pour la première fois par Berzelius en 1824 [26]. En 1892, Acheson a inventé un processus de synthèse (appelé le processus d'Acheson [27]) à partir de silice, de carbone et d'autres additifs. Ce processus a constitué la première application industrielle du SiC en produisant en volume des poudres de SiC utilisées pour la coupe, le meulage et le polissage [28]. Étant rare sous forme naturelle, ce matériau a été découvert en 1904 par Henri Moissan dans une météorite en Arizona, ce qui a initié son étude sous forme minérale [29].

Le SiC est une composition de deux éléments de la colonne IV du tableau périodique : le silicium (Si) et le carbone (C). Ils forment entre eux des liaisons covalentes sous forme de tétraèdres (Figure 1.7a). L'énergie de liaison des atomes Si—C très élevée (4,6 eV) lui confère des propriétés exceptionnelles en termes de robustesse, de stabilité thermique et de transparence optique. D'un point de vue cristallographique, le SiC est l'exemple le plus connu de polytypisme [30] [31] [32] [33]. Ce phénomène résulte de la variation des sites atomiques le long de l'axe c dans un système hexagonal à empilement compact, donnant lieu à différentes structures cristallines, connues sous le nom de polytypes. Il existe environ 250 polytypes du SiC, chacun défini par une séquence spécifique d'empilement des tétraèdres. La Figure 1.7b montre les polytypes les plus couramment utilisés, en raison de leur stabilité à température ambiante.

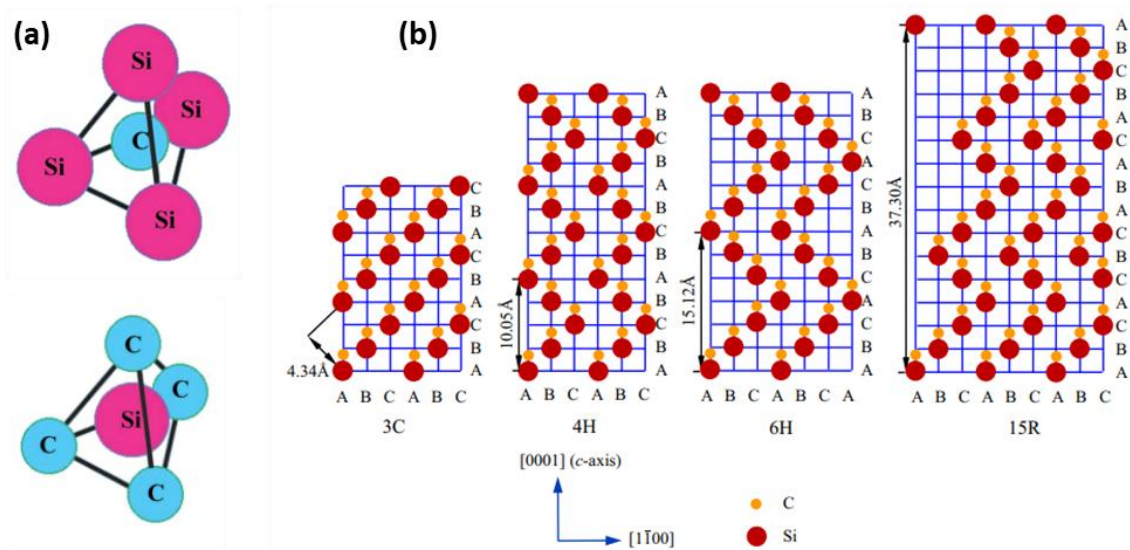


Figure 1.7 : (a) Coordination tétraédrique simple des atomes de Si et de C : tétraèdre Si₄C (atome de C situé au centre du tétraèdre et atomes de Si à ses sommets) et tétraèdre C₄Si (atome de Si situé au centre du tétraèdre et atomes de C à ses sommets). (b) Polytypes de SiC les plus courants : 3C-SiC, 4H-SiC, 6H-SiC et 15R-SiC. Les cercles rouges et oranges représentent les atomes de Si et de C respectivement [34].

La classification des polytypes du SiC est souvent faite en utilisant la notation de Ramsdell [35] qui combine le nombre de couches dans l'unité répétée et le système cristallin C pour cubique, H pour hexagonal et R pour rhomboédrique. Le Tableau 1.3 répertorie les plus courants.

Tableau 1.3 : Notation de Ramsdell des polytypes de SiC les plus utilisés.

Notation de Ramsdell	Structure	Séquence élémentaire
3C-SiC	Cubique	ABC
4H-SiC	Hexagonale	ABAC
6H-SiC	Hexagonale	ABCACB
15R-SiC	Rhomboédrique	ABCACBCABACACBCB [36]

Les principaux polytypes utilisés sont le 4H-SiC, le 6H-SiC et le 3C-SiC. Le Tableau 1.4 montre la comparaison à température ambiante de leurs propriétés physiques ainsi que de celles du Si.

Tableau 1.4 : Comparaison des propriétés physiques de certains polytypes du carbure de silicium et du silicium à température ambiante [37] [38].

Propriétés	SiC			Si
	3C-SiC	4H-SiC	6H-SiC	
Paramètre de maille (Å)	4,36	a = 3,08 c = 10,08	a = 3,08 c = 15,12	5,43
Bande interdite à 300 K (eV)	2,2–2,3	3,2–3,3	2,9–3,02	1,12
Densité (g/cm ³)	3,21	3,21	3,21	2,3
Champ de claquage (V/cm)	4×10^6	3×10^6	$(2,5-3,2) \times 10^6$	$(3-6) \times 10^5$
Conductivité thermique (W/m.K)	500	490	409	150
Température de fusion (K)	3100	3100	3100	1690

Les caractéristiques électroniques, mécaniques et chimiques du SiC font de lui un matériau d'intérêt dans de nombreux domaines, tels que l'électronique de puissance, l'automobile, l'énergie, etc. ses méthodes de synthèses sont présentées dans l'annexe.

1.4.1.2 Le diamant

La majorité des diamants naturels se forment dans les régions subcrustales profondes (environ 200 km) du manteau lithosphérique, à la limite de l'asthénosphère [39]. Les modèles traditionnels de formation des diamants dans cette zone font appel à la réduction des carbonates ou à l'oxydation du méthane. Toutefois, des travaux récents suggèrent qu'ils pourraient se former par refroidissement isochemique de fluides riches en H₂O, carbone, hydrogène et oxygène [40]. Une fois formés, les diamants sont transportés vers la surface de la Terre par des cheminées kimberlitiques, des conduits volcaniques très profonds et rapides [40] [41]. La Figure 1.8 montre la zone du manteau lithosphérique où les conditions sont favorables à la formation du diamant.

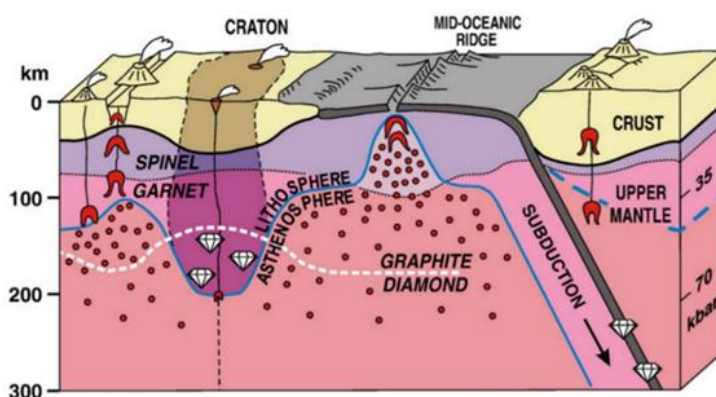


Figure 1.8 : Schéma représentant une section de la croûte terrestre et du manteau supérieur, avec indication de la profondeur sous la surface et de la pression (kbar) [39].

Les premières traces du diamant remontent à plus de 4.000 ans en Inde, où elles ont été découvertes dans des gisements alluviaux le long des rivières Krishna et Godavari. À cette époque, ce matériau était principalement utilisé pour orner les objets religieux [42]. Par la suite d'autres gisements ont été découverts, alimentant les marchés Européens et faisant baisser leur prix en 1725 au Brésil, en 1867 en Afrique du Sud, etc. [43]. La synthèse scientifique du diamant a débuté en 1797, lorsque le chimiste britannique Smithson Tennant a démontré que le diamant est une forme pure de carbone, ouvrant ainsi la voie à des tentatives en laboratoire, comme celles d'Henri Moissan en 1893.

Le diamant est l'un des allotropes du carbone [44] aux côtés du graphène, des nanotubes, du fullerène et du graphite (Figure 1.9). Il appartient à la famille des semi-conducteurs à ultra-large bande interdite (« ultra-wide band gap »), avec un gap direct d'une énergie de 5,5 eV, ce qui lui confère des propriétés électroniques et optiques remarquables.

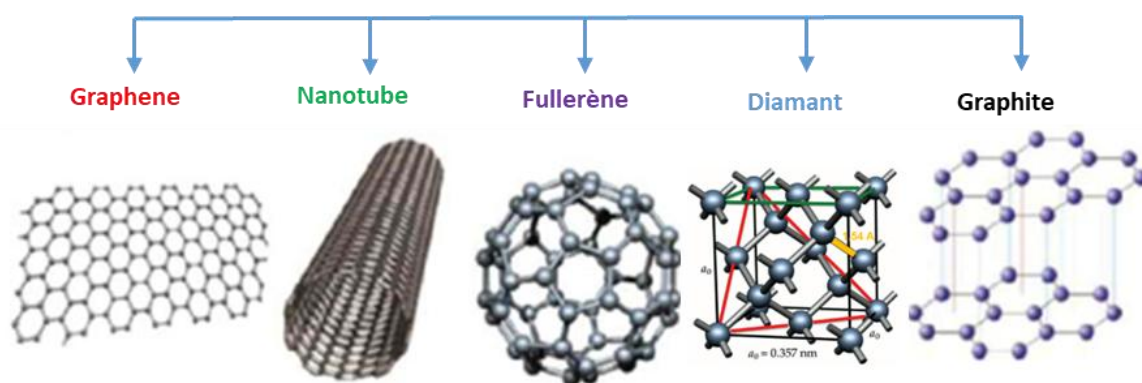


Figure 1.9 : Formes allotropiques du carbone et la structure cristallographique du diamant [44].

Dans le diamant, chaque atome de carbone est lié à quatre autres voisins par des liaisons covalentes de type sp^3 , formant une structure tétraédrique très stable. L'ensemble du réseau cristallin adopte une structure cubique faces centrées (CFC), dans laquelle un site tétraédrique sur deux est occupé [45]. La distance minimale entre deux atomes est de 1,54 Å et le paramètre de maille de $a_0 = 3,57 \text{ Å}$.

Le diamant présente de nombreuses propriétés remarquables, principalement dues à la forte énergie de liaison des atomes de carbone dans la configuration sp^3 (4,6 eV). Ces propriétés à la fois mécaniques et chimiques sont résumées dans le Tableau 1.5.

Tableau 1.5 : Les différentes propriétés du diamant.

Propriétés	Valeurs
Densité	3,5 g/cm ³
Indice de réfraction à 450 nm	2,4
Module d'Young	1050 – 1200 GPa
Coefficient de Poisson	0,1 – 0,21
Conductivité thermique	2500 W/m.K
Température de fusion	4000 °C
Champ de claquage	10 MV/cm

La formation du diamant requiert des conditions qui dépendent de la pression et de la température suivant la ligne de Simon-Berman, illustrée à la Figure 1.10.

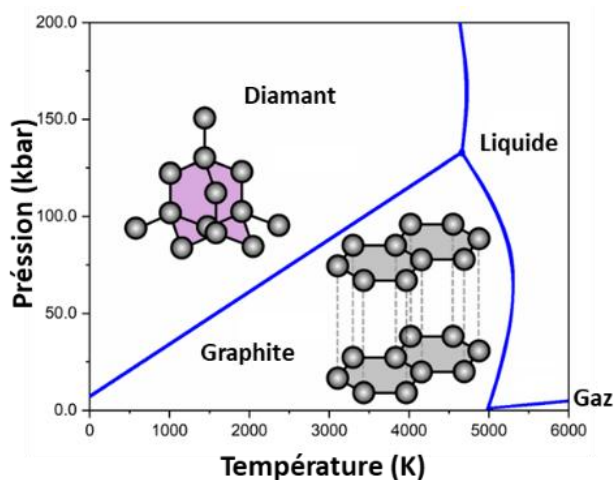


Figure 1.10 : Diagramme de phase de carbone, incluant la ligne de Simon-Berman [46].

Selon la ligne de Simon-Berman, le diamant peut être synthétisé sous haute pression et haute température. Les principales techniques de synthèse du diamant seront présentées en annexe. On peut distinguer deux types de diamants synthétiques : le monocristallin (sCVD), issu d'une croissance homoépitaxiale, et le polycristallin (pCVD), obtenu par croissance hétéroépitaxiale, généralement sur un substrat de silicium.

1.4.1.3 Le nitrure de gallium (GaN)

Contrairement au SiC et au diamant, le nitrure de gallium (GaN) n'existe pas à l'état naturel ; il s'agit d'un composé entièrement synthétique. La première synthèse documentée du GaN remonte à 1932, lorsqu'il fut obtenu par réaction entre du gallium métallique et de l'ammoniac à très hautes températures (900-1000 °C). Un progrès majeur survint en 1969, lorsque Maruska et Tietjen réussissent à déposer des couches minces de GaN monocristallin

par épitaxie en phase vapeur (HVPE) sur substrat saphir. Dans les années 1980, Isamu Akasaki et Hiroshi Amano perfectionnèrent la croissance du GaN grâce à l'introduction d'une couche tampon en AlN et au dopage p-type au magnésium activé par irradiation, permettant de former des jonctions p-n. Cette percée ouvrit la voie à la fabrication de diodes électroluminescentes bleues, que Shuji Nakamura développera avec succès en 1993. Ces innovations technologiques révolutionnèrent l'optoélectronique et valurent à Akasaki, Amano et Nakamura l'attribution du prix Nobel de physique en 2014 pour le développement des LEDs bleues à base de GaN.

Le GaN est un semi-conducteur de III-V du tableau périodique, à grand gap direct (3,4 eV). Il peut cristalliser sous deux formes : cubique et hexagonale. Cette dernière est la plus étudiée à cause de ses propriétés physiques qui lui confèrent une stabilité thermodynamique. Elle est définie par ses paramètres de maille a et c (Figure 1.11a), est constituée de 6 atomes de chaque groupe, empilés en deux sous-réseaux hexagonaux interpénétrés et séparés par une distance de $5/8 c$. La Figure 1.11b montre les directions cristallographiques représentant la maille hexagonale ainsi que les différents plans cristallographiques du GaN. Le plan-r est considéré comme plan semi-polaire, tandis que les plans -m et -a ne présentent aucune polarité. Il est à noter que le plan-c est le plus utilisé commercialement. Une polarisation spontanée peut apparaître dans le GaN selon deux orientations cristallographiques du plan-c : la polarité Ga avec une orientation de l'azote au gallium (0001) et une polarité N avec une orientation de Ga vers N (000-1) comme présenté sur la Figure 1.11c

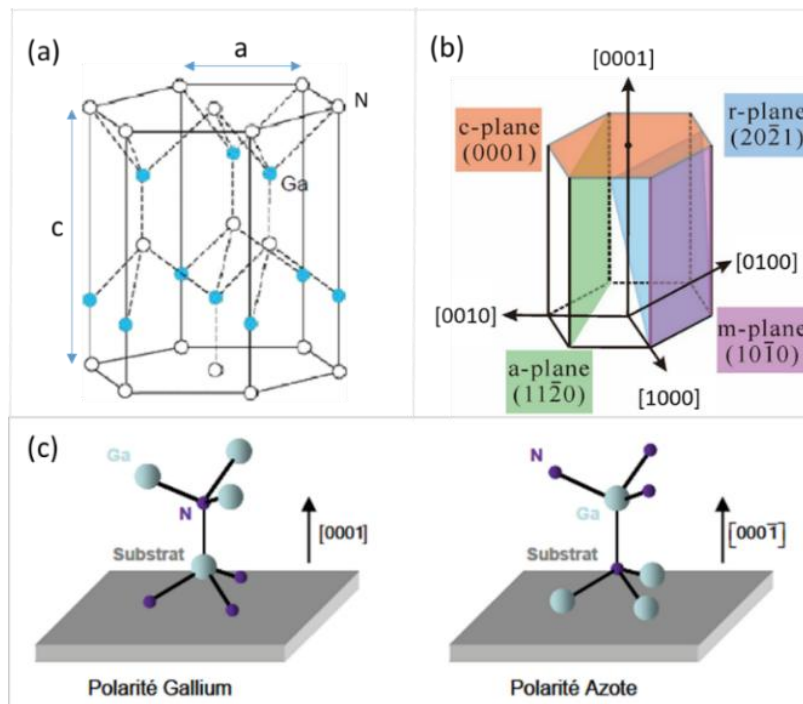


Figure 1.11 : (a) structure, (b) représentation du plan-c, -r, -m et -a et (c) schéma des polarités Ga et N, du GaN Wurtzite hexagonal.

Grâce à ses excellentes propriétés physiques et électriques le GaN est de plus en plus privilégié dans de nombreux domaines, notamment en électronique de puissance. Sur le plan thermique, il présente une conductivité typique de ~ 200 à $230 \text{ W/m}\cdot\text{K}$, supérieure à celle du silicium (~ 150 à $163 \text{ W/m}\cdot\text{K}$), ce qui améliore significativement la dissipation de chaleur dans les composants fonctionnant à haute densité de courant [47]. Sur le plan électrique, le champ de claquage représente un avantage décisif : le GaN peut supporter jusqu'à $3,3 \text{ MV/cm}$, soit environ 10 fois plus que le Si ($0,3 \text{ MV/cm}$) [48]. Cette caractéristique permet la conception de dispositifs plus compacts, capables de fonctionner à des tensions plus élevées sans risque de défaillance. Le **Tableau 1.6** présente un résumé comparatif de ces propriétés clés entre le GaN et le silicium.

Tableau 1.6 : Les propriétés physiques et électriques du GaN comparé au Si.

Propriétés	GaN	Si
Paramètres de maille (Å)	$a = 3,189$ $c = 5,185$	$a = 5,431$
Densité (g/cm ³)	6,15	2,21
Indice de réfraction à 450 nm	2,4	4,7
Module d'Young (GPa)	181	131
Coefficient de Poisson	0,35	0,266–0,28
Conductivité thermique (W/m.K)	200-230	150
Température de fusion (°C)	2500	1412
Champ de claquage (MV/cm)	3,4	0,3

Afin de développer des composants électroniques de haute qualité à base de GaN, de nombreuses études ont porté sur la synthèse de monocristaux de GaN présentant de bonnes propriétés cristallographiques. Plusieurs techniques ont ainsi été mises au point, elles consistent essentiellement à déposer du GaN sur des substrats de nature chimique différente. Celles-ci sont présentées en annexe.

Il est important de noter que malgré les progrès réalisés dans le développement des techniques de croissance du GaN, les épaisseurs et les surfaces obtenues, notamment pour les substrats de GaN, demeurent limitées.

1.4.2 Applications des grands gaps dans le domaine de la physique nucléaire et des hautes énergies

L'intérêt porté à ces matériaux, ainsi que l'évolution des techniques de croissance, ont permis d'augmenter progressivement leurs diamètres au fil des décennies (Figure 1.12). Le silicium a atteint une maturité industrielle avec des substrats allant jusqu'à 300 mm ($12''$), alors que les wafers de SiC et de GaN ont connu une forte croissance en taille. Le diamant monocristallin

(SCD pour single crystalline diamond), quant à lui, reste plus limité mais connaît des avancées notables.

Cette amélioration de la disponibilité des substrats ouvre la voie à des applications concrètes dans de nombreux secteurs. Les composants à grand gap permettent de repousser les limites des dispositifs traditionnels en termes d'efficacité énergétique, de tenue en température et de fiabilité, ouvrant ainsi la voie à des innovations dans divers secteurs.

Les matériaux à grand gap sont aussi des matériaux prometteurs pour les détecteurs de particules, en particulier dans les environnements soumis à de fortes irradiations, tels que les accélérateurs ou les réacteurs nucléaires. Leurs principaux avantages incluent :

- La résistance aux irradiations : meilleure tenue que le silicium classique.
- La large bande interdite : permet une excellente émission dans le visible (dans le cas des semi-conducteurs non dopés) et une détection avec un bruit électronique réduit.
- La haute température de fonctionnement (jusqu'à 1200 °C) : particulièrement utile dans les environnements extrêmes comme les réacteurs.

Des travaux montrent l'efficacité du SiC comme détecteur de particules alpha [49], de neutrons [98] ou même de rayons X. Le GaN, bien que moins répandu dans le domaine de la détection des particules, a également été étudié pour des applications similaires. Par exemple, un film mince de GaN a été utilisé comme détecteur de particules alpha [50], Zhou *et al.* [51] ont exploré son intérêt comme détecteur de neutrons, tandis que d'autres études ont démontré son potentiel comme détecteur de rayons X [52].

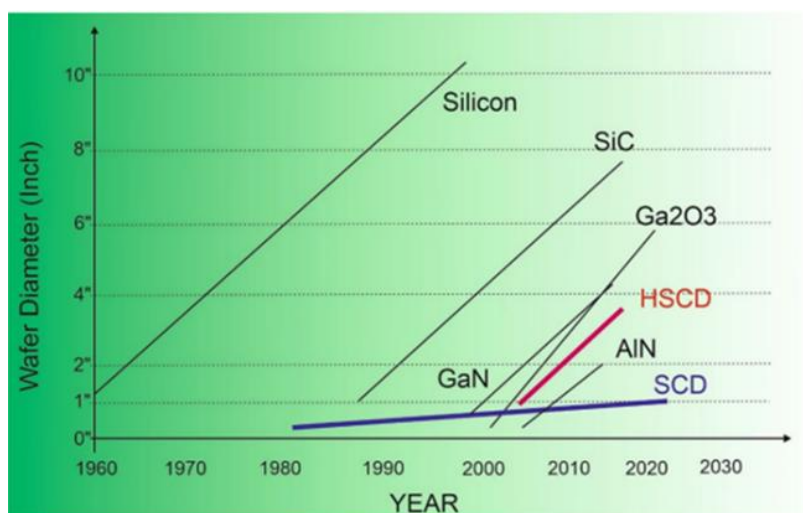


Figure 1.12 : L'évolution des dimensions des wafers en fonction du temps pour différents matériaux semi-conducteurs [53].

1.5 Défauts natifs et défauts créés par irradiation dans le SiC, le diamant et le GaN

1.5.1 Défauts natifs

1.5.1.1 Cas du SiC

La société Wolfspeed® [54] a démontré son avance technologique en faisant croître des substrats atteignant 20 cm de diamètre et ce grâce aux progrès réalisés dans les techniques de croissance.

Le développement des substrats de SiC de bonne qualité sans défaut est un facteur majeur dans la technologie SiC. L'amélioration de la qualité cristalline lors de la croissance, ainsi que le contrôle des composants à base de SiC lors de leur fabrication, restent des défis importants. Ils nécessitent une caractérisation fine permettant d'analyser localement les défauts et de comprendre, par la suite, le processus de leur formation. Ce paragraphe décrit quelques défauts structuraux présents dans le SiC.

- *Les micropipes*

Les micropipes sont des défauts structuraux hexagonaux qui correspondent à des microtubes vides traversant le lingot de SiC. Leur formation peut résulter de différents mécanismes, comme l'ont décrit R. C. Glass *et al.* [55] et par N. Ohtani *et al.* [56]. Ce dernier a mis en évidence la présence de micropipes (Figure 1.13a), où la croissance spirale est visible sur une surface de 6H-SiC à l'aide d'images obtenues par microscopie à force atomique (AFM - Atomic Force Microscope).

MacMillan *et al.* [57] ont utilisé la cathodoluminescence à basse température (10K) pour étudier ces défauts et détecter les inclusions de polytype 3C (Figure 1.13b). La spectroscopie Raman constitue également une technique sensible à ce type de défaut. E.Pernot *et al.* [58] ont montré un shift du mode LOPC $964,5 \text{ cm}^{-1}$ à proximité des micropipes (Figure 1.13c et Figure 1.13d) attribué à une diminution de la concentration de porteurs libres dans cette zone.

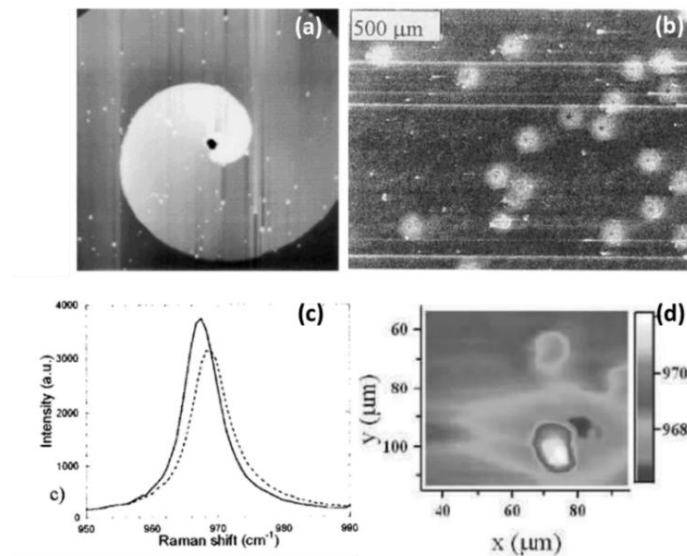


Figure 1.13 : (a) Image AFM d'une région contenant un micropipe, (b) Images de cathodoluminescence de micropipes dans un substrat 6H-SiC, et la spectroscopie Raman montrant : (c) La raie associée au phonon LOPC près (ligne continue) et loin d'un micropipe, et (d) Cartographie du déplacement de cette raie autour d'un micropipe.

- Les défauts d'empilement

Les défauts d'empilement, *Stracking Faults* en anglais, sont des défauts structuraux récemment étudiés et observés dans les jonctions p-n par différentes techniques de caractérisation. Ils jouent un rôle important en agissant comme centres de recombinaison des porteurs de charge minoritaires, ce qui peut fortement influencer les performances des dispositifs. La Figure 1.14 montre l'apparition des défauts d'empilement (SF) dans trois polytypes de SiC [59].

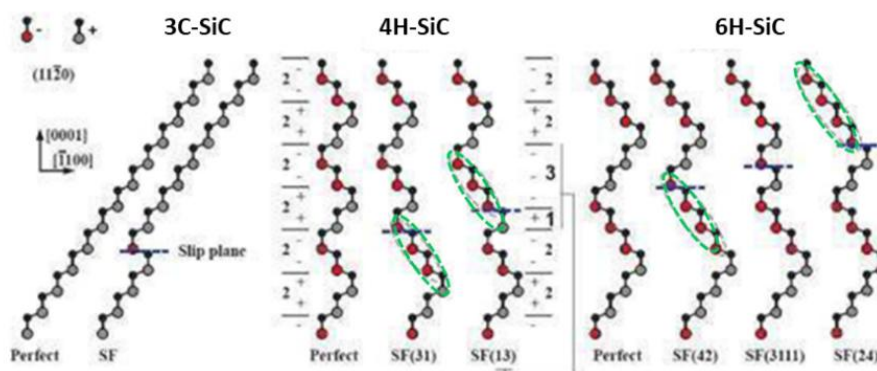


Figure 1.14 : Défauts d'empilement dans le 3C-SiC, 4H-SiC et 6H-SiC [60].

Des caractérisations en microscopie électronique en transmission haute résolution (HRTEM) ont été réalisées par Liu *et al.* [61] mettant en évidence des défauts

d'empilement, dans deux polytypes de SiC. La Figure 1.15 présente deux images HRXTEM de régions distinctes dans des diodes 4H-SiC et 6H-SiC présentant une faute d'empilement chacune. Chaque bicouche s'empile selon trois positions distinctes nommées A, B et C, avec un déplacement vers la gauche de la figure. Dans la séquence inverse, correspondant à un déplacement vers la droite, les positions sont notées A', B' et C'. Pour le polytype 4H parfait, sans faute d'empilement, la séquence d'empilement est notée « ABA'C'ABA'C'ABA'C' ». Avec une faute d'empilement due à un glissement d'un plan cristallin, représenté par une flèche sur la Figure 1.15a, la notation devient « ABA'C'ABCB'CAC'B' ». Pour le polytype 6H parfait, la séquence d'empilement est notée « ABCB'A'C'ABCB'A'C' ». Avec une faute d'empilement, la séquence d'empilement devient « ABCAC'B'CABA'C'B' » (Figure 1.15b).

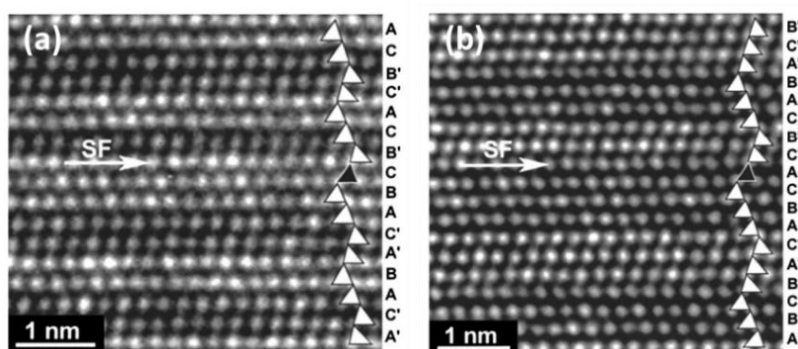


Figure 1.15 : Images TEM à haute résolution de deux régions contenant une faute d'empilement : **(a)** dans une diode 4H-SiC, **(b)** dans une diode 6H-SiC. D'après Liu [61].

- *Lacunes et antisites*

Les lacunes correspondent à l'absence d'un atome de silicium (V_{Si}) ou de carbone (V_C) dans le réseau cristallin. En raison de la forte énergie de liaison caractéristique du SiC, la mobilité de ces défauts est significativement réduite par rapport à celle observée dans des semi-conducteurs plus conventionnels comme le silicium (Si). Ces défauts sont ainsi thermiquement stables à température ambiante, voire à des températures plus élevées [62] [63]. Sur le plan électronique, ces défauts peuvent être actifs, c'est-à-dire qu'ils peuvent introduire des niveaux d'énergie dans la bande interdite du SiC. Cela entraîne des conséquences notables sur les propriétés électriques et optiques du matériau.

Les niveaux d'ionisation des lacunes ont été calculés par Zywietz *et al.* [64] pour les polytypes 4H et 3C-SiC, et par Torpo *et al.* [65], pour le polytype 3C-SiC uniquement. Ces résultats sont présentés sur la Figure 1.16.

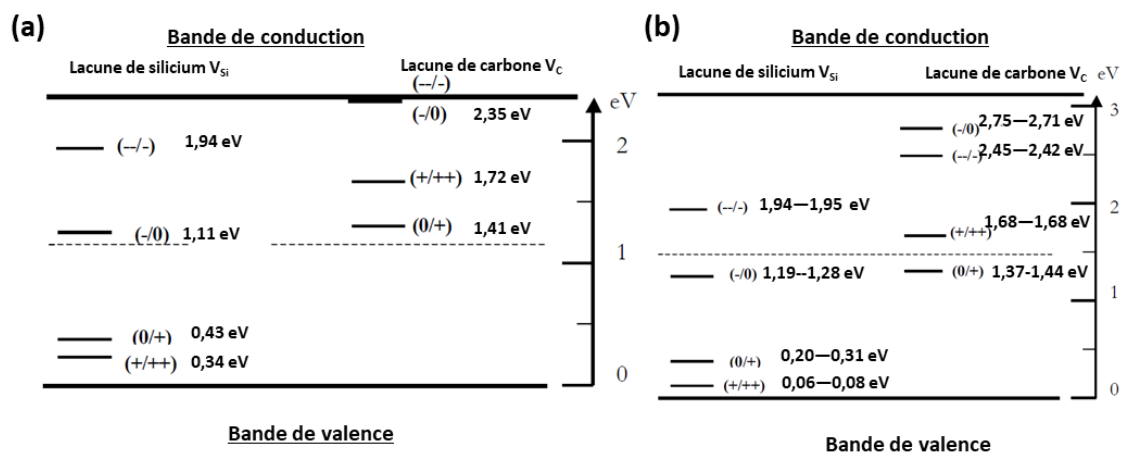


Figure 1.16 : Représentation des niveaux d'ionisation des lacunes de silicium et de carbone dans le : **(a)** 3C- SiC et **(b)** 4H-SiC [64].

Selon ces études, la lacune de carbone V_C serait positive dans des matériaux de type p ou semi-isolants, et pourrait atteindre des états de charge négatifs dans les matériaux de type n. La lacune de carbone V_C aurait un comportement U-Négatif, aussi bien pour les lacunes chargées positivement que pour celles chargées négativement.

L'antisite correspond à un échange de position entre deux atomes dans la structure cristalline, pouvant apparaître lors de la croissance du SiC [66] [67]. Ce défaut est noté C_{Si} (resp. Si_C) lorsqu'un atome de carbone (resp. silicium) occupe l'emplacement d'un atome de silicium (resp. carbone). De plus, des combinaisons de ces défauts sont souvent possibles pour créer d'autres types de défauts plus complexes. Le Tableau 1.7 présente les énergies de formation de certains de ces défauts dans le polytype 3C-SiC. Des études complémentaires ont également été rapportées pour le 4H-SiC [68].

Tableau 1.7 : Énergies de formation de quelques lacunes du 3C-SiC obtenues par calcul.

Type de défaut	V _C	V _C -C _{Si}	V _C -V _C	V _{Si} -V _C	V _{Si}	V _C -V _{Si} -V _C	V _{Si} -V _C -V _{Si}	V _{Si} -V _{Si}
Energies de formation (eV)	4,11	6,30	6,93	7,31	7,41	7,99	12,93	14,3

- Les interstitiels

Dans le SiC, deux types d'interstitiels peuvent être distingués selon l'atome concerné : ceux de silicium (Si) et ceux de carbone (C). Des études sur le 3C-SiC [69] [70] montrent que les interstitiels de silicium peuvent occuper des sites tétraédriques, où l'atome interstitiel est entouré de quatre atomes de carbone (SiTC), ou former des défauts partagés (split-interstitiels) le long des directions cristallographiques $\langle 100 \rangle$ ou $\langle 110 \rangle$. Parmi ces

configurations, la configuration Si_{sp} $\langle 110 \rangle$ est la plus stable pour un SiC de type n. Ce défaut peut induire des niveaux profonds dans la bande interdite, et son état de charge varie selon la position du niveau de Fermi (μ_F). En revanche, le site tétraédrique Si_{TC} est stable pour le type p, mais n'introduit pas de niveau électronique dans la bande interdite : les électrons excédentaires sont directement transférés à la bande de conduction. Les Figure 1.17a et Figure 1.17b illustrent respectivement les énergies de formation de ces défauts dans une structure riche en Si et la géométrie des interstitiels tétraédriques.

Concernant les interstitiels de carbone, les Figure 1.17c et Figure 1.17d présentent les résultats obtenus sur le 3C-SiC [71]. La configuration split-interstitiel C_{sp} $\langle 100 \rangle$, située sur un site de carbone, est la plus stable. Pour le type p, les états de charge dominants sont 2^+ et 1^+ , tandis que pour le type n, ce défaut peut devenir négatif si le niveau de Fermi (μ_F) dépasse 1,8 eV. Une autre configuration, C_{spSi} $\langle 100 \rangle$, où l'interstitiel de carbone occupe un site de silicium, est moins stable mais reste pertinente dans les mécanismes de migration, avec des états de charge allant de 2^+ à 2^- .

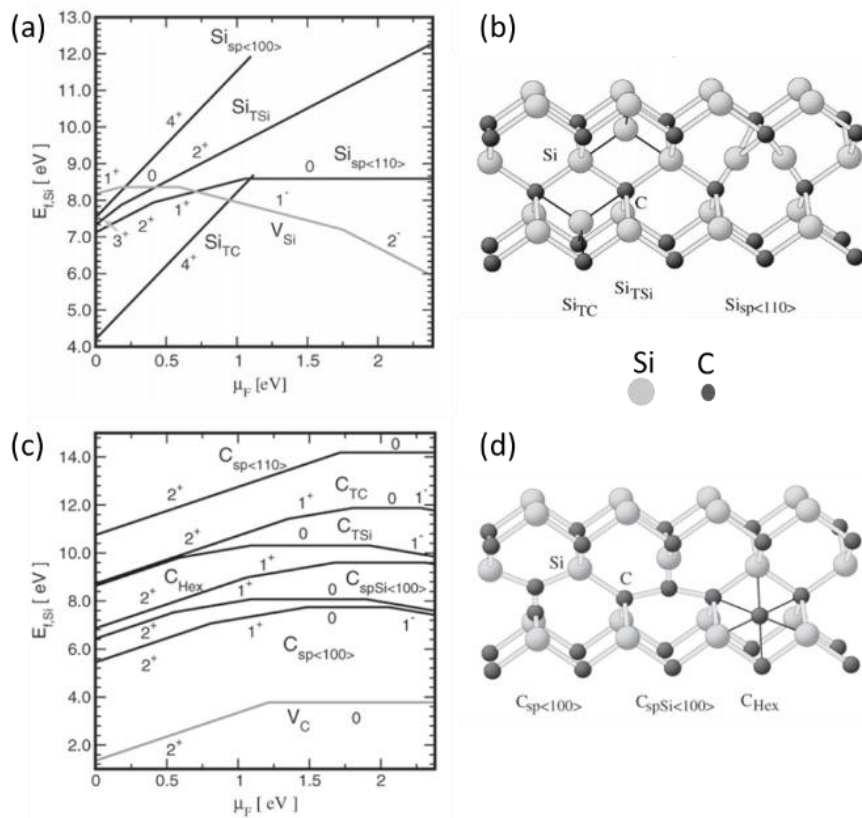


Figure 1.17 : Dans le 3C-SiC : **(a)** énergies de formation des interstitiels de silicium et de la lacune de silicium dans un matériau riche en silicium, **(b)** géométrie des interstitiels tétraédrique et de l'interstitiel partagé orienté selon la direction $\langle 110 \rangle$, **(c)** énergies de formation des interstitiels de carbone et de la lacune de carbone dans un matériau riche en silicium, **(d)** interstitiels partagés orientés selon la direction $\langle 100 \rangle$, positionnés sur les sites carbone et silicium, ainsi que l'interstitiel hexagonal [69] [71] .

Enfin, bien que les structures cristallines diffèrent entre le 3C-SiC et le 4H-SiC, les comportements fondamentaux des interstitiels sont similaires. Le polytype hexagonal (4H-SiC) présente une bande interdite plus large, ce qui stabilise certains états de charge supplémentaires, comme le $C_{sp} \langle 100 \rangle^{2-}$ pour le type-n.

Il est à noter que les micropipes et les défauts d'empilement sont considérés comme des défauts étendus, alors que les lacunes, les antisites et les interstitiels sont des défauts ponctuels.

1.5.1.2 Cas du diamant

La présence des défauts dans le diamant est principalement due à sa méthode de croissance. Leur identification est essentielle afin d'évaluer et contrôler les propriétés physiques du matériau.

A l'instar du SiC, les défauts dans le diamant peuvent être présents sous différentes formes : lacunes, dislocations, joints de grains ou d'autres imperfections structurales.

- *Les lacunes et les centres NV*

Le défaut le plus simple dans le diamant est la lacune (notée V), correspondant à l'absence complète d'un atome de carbone dans le réseau cristallin. Cette absence laisse les quatre atomes voisins avec des liaisons pendantes, perturbant ainsi la structure locale du cristal. Ce type de défaut ponctuel peut apparaître lors de la croissance du diamant ou résulter d'une déformation plastique du cristal. Les lacunes peuvent exister sous différents états de charge et ont un impact significatif sur les propriétés optiques du diamant. Elles peuvent également diffuser dans le réseau et former des agrégats, appelés clusters de lacunes [72], dont la forme la plus simple est l'association de deux lacunes (V_2) [73]. Par ailleurs, lorsqu'elles interagissent avec des impuretés chimiques présentes à proximité, elles peuvent former des complexes impureté-lacune. Le plus largement étudié de ces derniers est les centres NVs (Nitrogen-Vacancy) [74].

Le centre NV est constitué d'un atome d'azote (N) qui vient se substituer au carbone (avec une énergie d'activation de $5,0 \pm 0,3$ eV) et d'une lacune (V) (avec une énergie d'activation de $2,3 \pm 0,3$ eV) [75] [76]. Il existe sous deux états de charges différents (Figure 1.18a) : l'état de charge neutre NV^0 et l'état de charge négatif NV^- qui est généralement acquis par la capture d'un électron provenant d'une impureté d'azote substitutionnelle ionisée ($N_s^0 + NV^0 \rightarrow N_s^+ + NV^-$). Ces deux complexes peuvent être détectés grâce à leur émission en photoluminescence caractérisée par une large bande et une ligne zéro-phonon (ZPL) à 575 nm pour l'état de charge neutre, NV^0 [98] et à 637 nm pour l'état de charge négative comme représenté sur la Figure 1.18b [77].

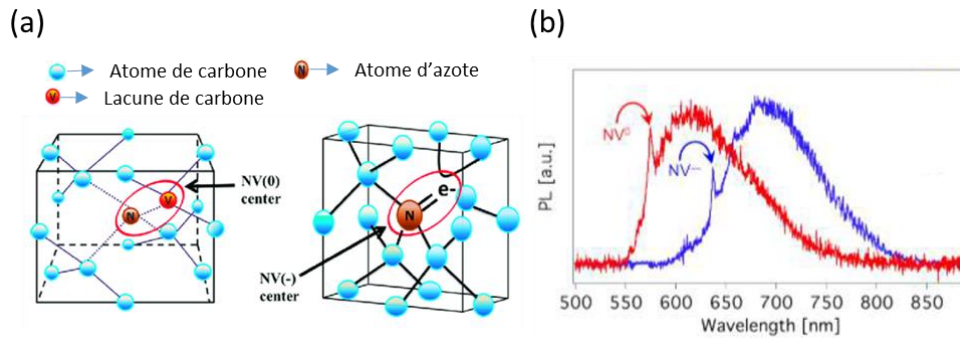


Figure 1.18 : (a) Schéma d'un centre NV dans la maille diamant sous ses deux états de charge : état de charge neutre NV^0 , état de charge négatif NV^- , (b) spectres de PL de : NV^0 (en rouge) et NV^- (en bleu). Les deux spectres sont normalisés à leur valeur maximale et les deux pics correspondent à la ligne zéro-phonon à 575 nm et 637 nm pour les états de charge NV^0 et NV^- , respectivement [75].

• Les dislocations

Les diamants naturels présentent des densités de dislocations très élevées (10^9 - 10^{10} cm^{-2}), résultant de la déformation plastique subie par le cristal au cours des millions d'années passées dans le manteau terrestre. En revanche, le diamant synthétique élaboré par CVD présente des densités plus faibles, généralement comprises entre 10^4 et 10^7 cm^{-2} selon les conditions de croissance. Des études réalisées par R. C. Burns et al. [78] montrent que les substrats obtenus par la technique HPHT les plus parfaits présentaient des densités de dislocations quasiment indétectables. D'autres travaux ont également montré que les films de diamant obtenus par croissance CVD sur des substrats HPHT affichaient une faible densité de dislocation [79]. Enfin, Le Thi Mai Hoa *et al.* ont confirmé, par des analyses de biréfringence menées avant (Figure 1.19a) et après dépôt de la couche CVD (Figure 1.19b), que non seulement les dislocations issues du substrat persistent (D1-D5), mais que de nouvelles dislocations apparaissent également (D6-D7)[80].

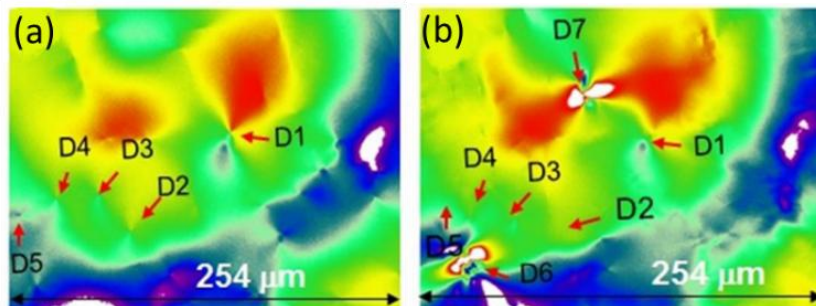


Figure 1.19 : Images de biréfringence acquises en transmission sur (a) un substrat HPHT, (b) au même endroit sur ce même substrat mais après dépôt d'une couche CVD d'environ 100 μm . On constate la persistance des motifs liés aux dislocations dites primaires D1-D5 et l'apparition de nouveaux défauts D6 et D7 [79].

- *Les macles*

La formation de macles lors de la croissance des films CVD est principalement liée à la présence de défauts d'empilement. Les macles sont le résultat de l'intercroissance de plusieurs cristaux d'orientations différentes et se forment généralement sur les plans (111) par rapport à la direction de croissance $\langle 100 \rangle$ [81] [82]. La Figure 1.20 montre une micrographie d'un fragment de la face (111) contenant des lamelles de macle. On observe que les puits d'attaque (etch pits) se localisent aux endroits où l'épaisseur des lamelles varie, tandis qu'aucun puits d'attaque n'est visible à l'extrémité des lamelles.

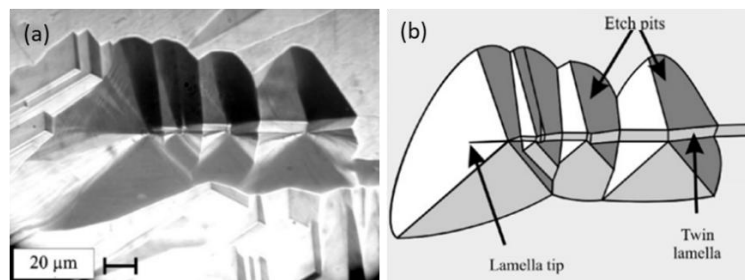


Figure 1.20 : Micrographie optique **(a)** et représentation schématique, **(b)** des lamelles de macle avec les puits d'attaque sur la face {111} d'un cristal de diamant synthétique [83].

A l'instar des dislocations, ces défauts ont un fort impact sur les propriétés électroniques du diamant et absorbent la lumière.

- *Les joints de grains*

Les joints de grains sont des interfaces homophases entre deux cristallites d'orientation différente. Ils correspondent à des zones où les atomes de carbone présentent souvent un désordre structural, avec une forte proportion d'atomes en hybridation sp^2 [84] [85]. De tels défauts sont typiquement observés dans le diamant polycristallin et nanocristallin [86]. Ils sont connus pour agir comme des pièges pour de nombreux défauts structuraux, de phases non-diamant hybridées sp^2 et d'impuretés chimiques telles que l'azote. La Figure 1.21 illustre une image MEB de morphologie d'un film diamant ultra-nanocristallin, déposé par CVD assistée par plasma micro-ondes (MPCVD), mettant en évidence la configuration des joints de grain (zone claire) [87].

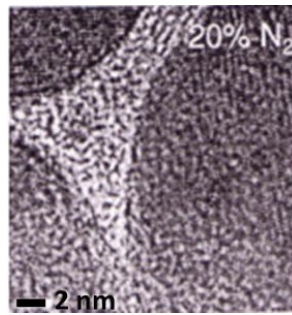


Figure 1.21 : Image MEB mettant en évidence la configuration des joints de grain dans le diamant.

1.5.1.3 Cas du GaN

Les méthodes de croissance de substrats de GaN peuvent introduire, de manière non intentionnelle, divers défauts, soit lors de la croissance, soit par contamination liée aux espèces présentes dans les gaz utilisés.

- *Les lacunes*

Ce type de défaut est le plus abondant dans le GaN à cause de sa faible énergie de formation, comparativement aux autres défauts ponctuels. Dans le n-GaN, la lacune de gallium (V_{Ga}) est dominante, alors que dans le p-GaN, c'est plutôt la lacune d'azote (V_N) qui est la plus courante. Les lacunes de gallium se comportent comme des défauts accepteurs dans le GaN et agissent comme centres de compensation dans le n-GaN. La Figure 1.22a montre les niveaux de transition de V_{Ga} dans la bande interdite : les transitions $0/-$, $-/2-$ et $2-/3-$ ainsi que leurs énergies de formation estimées respectivement à environ 0,25 eV, 0,64 eV et 1,10 eV au-dessus de la bande de valence. Certaines études rapportent des valeurs légèrement supérieures, de l'ordre de 0,5, 1,0 et 1,5 eV. La présence de V_{Ga} chargés négativement dans des substrats synthétisés sous pression a été confirmée par spectroscopie d'annihilation de positons, avec une concentration estimée à 10^{18} cm^{-3} . Les lacunes d'azote, quant à elles, agissent comme des défauts donneurs. Elles présentent un seul niveau de transition stable dans la bande interdite : l'état $3+/1+$ situé à environ $0,5 \pm 0,2 \text{ eV}$ au-dessus de la bande de valence (Figure 1.22a).

Comme les deux types de lacunes V_{Ga} et V_N sont mobiles à certaines températures, ils peuvent migrer pour former des complexes avec des défauts plus stables comme les bi-lacunes $V_{Ga}-V_N$ comme on peut le constater dans la Figure 1.22b. Ce type de défaut a une énergie de formation très élevée et est donc peu susceptible d'être présent en forte concentration [88].

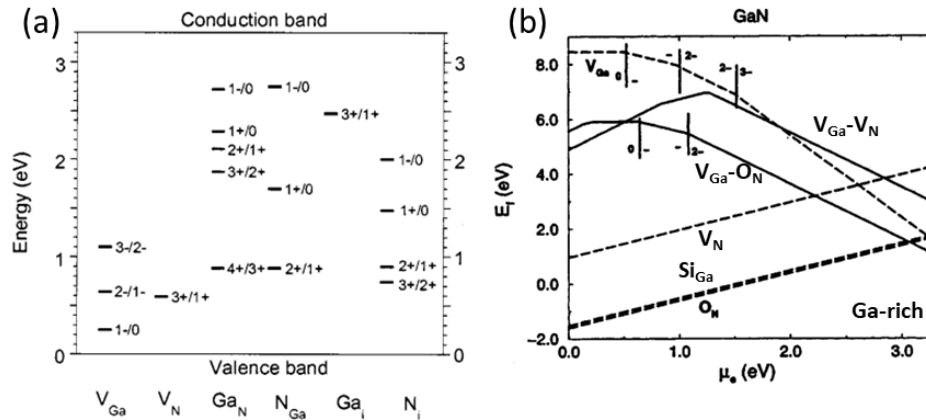


Figure 1.22 : (a) Niveaux de transition pour les défauts natifs dans le GaN, déterminés à partir des énergies de formation [89], (b) Énergies de formation des défauts ponctuels dans le GaN riche en Ga (Les lignes pointillées correspondent aux défauts ponctuels isolés et les lignes continues aux complexes de défauts, respectivement).

- Les dislocations

Ce type de défauts est essentiellement lié au fort désaccord de maille cristalline entre le GaN et le substrat utilisé lors de sa synthèse. La Figure 1.23a montre des dislocations formées lors de la croissance du GaN sur SiC, avec une densité de 10^5 cm^{-2} obtenue par analyse EBIC [90]. D'autres études ont montré que l'hétéroépitaxie du GaN sur des substrats en saphir (Figure 1.23b) entraîne la formation de films contenant des dislocations, avec des densités variant de $\sim 10^8$ à $\sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ [91], selon la méthode et les conditions de croissance. Ces dislocations sont principalement orientées parallèlement à l'axe c.

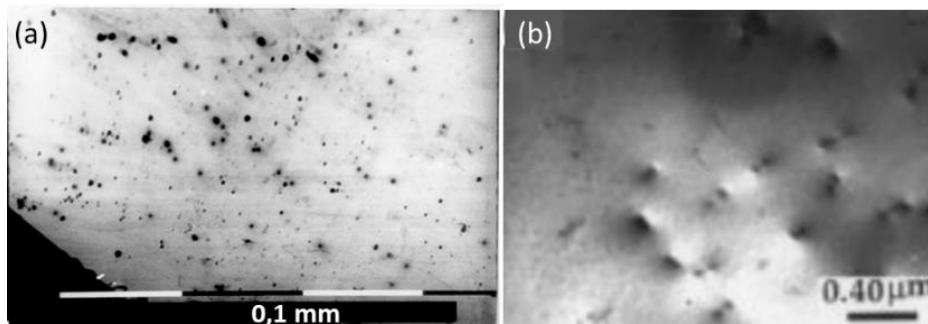


Figure 1.23 : Dislocation sur GaN lors d'une croissance MOCVD sur substrat (a) SiC et (b) saphir.

Les calculs *ab initio* permettent de comparer les énergies de formation et les structures des différents types de dislocations, ainsi que des défauts ponctuels susceptibles d'être piégés par les champs de contrainte associés. Contrairement à certaines études qui montrent que les dislocations n'introduisent aucun niveau d'énergie dans la bande

interdite [92], d'autres montrent que ces défauts peuvent au contraire introduire des niveaux d'énergie dans le gap [93] [94].

1.5.2 Défauts induits par irradiation et leurs effets optiques sur le SiC, diamant et GaN

Lorsqu'une particule (électron, ion ou neutron) pénètre dans un matériau avec une énergie donnée, elle transfère cette énergie aux atomes du réseau par deux mécanismes distincts :

- Une perte d'énergie par collisions nucléaires élastiques,
- Une perte d'énergie par freinage électronique via des collisions inélastiques.

La perte d'énergie nucléaire, notée $S_n = -\left(\frac{dE}{dx}\right)_n$ avec x , la distance parcourue par le projectile, et E , son énergie. Elle résulte des collisions élastiques entre les ions incidents et les noyaux de la cible. Ce mécanisme devient dominant à haute énergie.

Dans ce contexte, l'interaction est modélisée par un potentiel coulombien $V(r)$, exprimé comme suit :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi\left(\frac{r}{a}\right)$$

Avec Z_1 et Z_2 : les numéros atomiques du projectile et de la cible, e est la charge élémentaire, Φ : la fonction d'écrantage, a : le rayon d'écrantage et r : la distance entre les deux noyaux. Selon la vitesse du projectile, deux cas se distinguent :

- À grande vitesse, les interactions sont essentiellement coulombiennes, et l'écrantage est négligeable $\Phi\left(\frac{r}{a}\right) = 1$.
- À faible vitesse, l'interaction est modélisée de manière simplifiée : $V(r) = \infty$ si $r < R_0$ et $V(r) = 0$ si $r > R_0$, avec R_0 : la somme des rayons du projectile et de la cible.

Enfin, la perte d'énergie nucléaire S_n dépend de l'énergie moyenne transmise T aux noyaux de la cible et de leur densité n_2 . Elle s'exprime par :

$$S_n = -\left(\frac{dE}{dx}\right)_n = n_2 \int_0^{T_m} T \sigma(T) dT$$

Avec T_m : l'énergie maximale pouvant être transmise au noyau cible et $\sigma(T)$ est la section efficace de transfert d'énergie.

La perte d'énergie électronique, notée $S_e = -\left(\frac{dE}{dx}\right)_e$, résulte des interactions inélastiques entre l'ion incident et les électrons du matériau cible, provoquant ainsi des excitations électroniques ou des ionisations.

Pour les grandes vitesses, S_e est déterminée par la formule de Bethe-Bloch :

$$S_e = 4\pi n_2 Z_2 \left(\frac{Z_1 e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{1}{m_e v_1^2} \left[\text{Ln} \left(\frac{2m_e v_1^2}{\langle I \rangle} \right) - \text{Ln}(1 - \beta^2) - \beta \right]$$

Avec n_2 la densité atomique de la cible, Z_1 et Z_2 , respectivement les numéros atomiques du projectile et de la cible, m_e la masse de l'électron, $\langle I \rangle$ le potentiel moyen d'ionisation, β ($= v_1/c$) la vitesse relative du projectile et ϵ_0 , la permittivité diélectrique du vide.

Dans le cas de faibles vitesses, le potentiel d'interaction est fortement écranté par les électrons de valence des atomes de la cible. Dans ce cas, la perte d'énergie électronique est basée sur le modèle d'atome de Thomas-Fermi, selon l'expression :

$$S_e = Z_1^{1/6} 8\pi e^2 a_0 \frac{Z_1 Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \frac{v_1}{v_2}$$

Avec $a_0 = \frac{4\pi\epsilon_0\hbar}{m_e e^2}$, le rayon de Bohr et v_2 la vitesse des électrons de la cible.

La perte d'énergie des particules incidentes $S(E) = \frac{dE}{dx}$ est la somme de la perte d'énergie par interaction électronique S_e et de la perte d'énergie par interaction nucléaire S_n , elle est donnée par :

$$S_{tot}(E) = S_e(E) + S_n(E) \text{ en eV}/\mu\text{m}$$

Si l'énergie transmise à l'atome est supérieure à son énergie de déplacement, celui-ci est éjecté de sa position initiale, créant une lacune. L'atome éjecté est appelé PKA pour Primary Knock on Atom (= premier atome percuté). Si la quantité d'énergie cinétique reçue par ce PKA est supérieure à l'énergie seuil de déplacement, l'atome cible percuté peut à son tour déplacer un autre atome de la maille cristalline créant ainsi une cascade de collisions. Il en résulte la formation d'une zone d'endommagement constituée essentiellement de lacunes, d'interstitiels et éventuellement de défauts complexes, pouvant aller jusqu'à provoquer l'amorphisation du matériau.

1.5.2.1 Cas du SiC

La connaissance précise des énergies de déplacement atomique E_d est cruciale pour évaluer le niveau d'endommagement d'un matériau soumis à une irradiation. En effet, E_d dépend de

nombreux paramètres, tels que la structure cristalline, la position de l'atome considéré dans la maille et l'angle d'attaque de l'ion incident. Plusieurs investigations ont été réalisées afin de déterminer l'énergie de déplacement du Si ainsi que celle du C. Devanathan et al. ont déterminé par voie expérimentale et simulation numérique que des valeurs identiques d'énergie de déplacement pouvaient être utilisées, $E_d(\text{Si}) = 35 \text{ eV}$ et $E_d(\text{C}) = 21 \text{ eV}$ [95]. Ces valeurs servent de référence dans la modélisation des effets d'irradiation dans le SiC, notamment pour prédire la formation de défauts et simuler l'évolution microstructurale du matériau sous rayonnement.

Un récapitulatif des différents défauts induits par irradiation ionique dans le SiC est présenté dans le Tableau 1.8.

Tableau 1.8 : Récapitulatif de quelques défauts créés par irradiations dans le SiC.

Échantillons utilisés	Particules	Énergies	Défauts créés	Techniques de détection utilisées	Référence
6H-SiC	e-	2–20 MeV	V_C et défaut complexé avec V_{Si}	PAS*	[96]
6H-SiC	H+	Basse énergie 12 MeV	$(V_C - V_{Si})_2$ et $(V_C - V_{Si})_3$ clusters $(V_{Si}V_CV_{Si})_0$	PAS	[97] [98]
6H-SiC	C Kr	132 MeV 774 MeV	V_{Si} (majoritaire) + V_{Si-} V_C $V_{Si-}V_C$ (majoritaires)	PAS	[99]
4H-SiC et 6H-SiC	He	30-950 keV	V_{Si} et V_C	PAS	[100]
4H-SiC	H+	250-300 keV 12 MeV	V_{Si}^0 $V_{Si-}V_C$	PL** PAS	[101] [102]

*Spectroscopie d'annihilation des positons.

**Photoluminescence

Des études en photoluminescence (PL) ont mis en évidence une émission dans le domaine du proche infrarouge, généralement attribué à la présence de mono-lacunes, avec des longueurs d'onde comprises entre 850 et 950 nm. En revanche, les bi-lacunes se caractérisent par une luminescence située dans le domaine infrarouge [103].

1.5.2.2 Cas du diamant

L'irradiation du diamant par des particules énergétiques conduit principalement à la création de défauts ponctuels, notamment des lacunes de carbone (V_C) et des interstitiels (I_C). Parmi les défauts optiquement actifs induits, un centre bien connu, GR1 [76], a été observé en

photoluminescence (PL) à 741 nm et 744,5 nm. Ce centre est généralement attribué à la lacune neutre V_C^0 [104].

Des études de recuit ont montré qu'à une température de 400 °C, environ 30 % des centres GR1 sont détruits [105], ce qui est attribué à la recombinaison des lacunes avec les interstitiels. Lorsque la température dépasse 600 °C [106], les lacunes deviennent suffisamment mobiles pour migrer dans le réseau cristallin, ce qui conduit à une réduction supplémentaire de leur concentration, notamment par formation de bi-lacunes. Dans ce contexte, Zaitsev *et al.* [107] ont observé une raie d'émission à 733 nm dans un diamant monocristallin de type IIa obtenu par CVD, après une irradiation aux électrons de 1 MeV à une fluence de $10^{18} \text{ e}^-/\text{cm}^2$, suivie d'un recuit thermique à 1100 °C pendant une heure. Cette raie a été attribuée à la bilacune, ce qui confirme la mobilité accrue des lacunes à haute température et leur tendance à former des agrégats structurés.

En parallèle, les I_C peuvent également être formés pendant l'irradiation. Leur concentration dépend fortement de la température pendant l'irradiation, et peut ne pas être directement corrélée à celle des mono-lacunes. Ces interstitiels sont identifiables optiquement grâce à des lignes d'absorption caractéristiques localisées à 666,9 nm et 735,8 nm.

Deux autres défauts typiquement associés aux irradiations, le TR12, et le H3. Le TR12 a été observé la première fois via la spectroscopie d'absorption par C.D.Clark *et al.* en 1955 [106]. Ce défaut présente une raie zéro phonon (ZPL) à 470 nm et une bande vibronique complexe, incluant un mode de vibration local (LVM) à 509 nm [108]. Des études plus récentes l'attribuent à un défaut complexe reliant deux lacunes à deux interstitiels [109]. Le centre H3 quant à lui a été observé par Palmer et est détectable par la raie ZPL à 503,6 nm. La première tentative d'attribution du centre 3H a été formulée par Walker, qui le liait à un centre lacune-oxygène. Toutefois, cette hypothèse a depuis été largement abandonnée au profit d'interprétations plus plausibles. La majorité des travaux de la littérature s'accordent aujourd'hui à considérer que le centre 3H est d'origine intrinsèque, probablement lié à un interstitiel de carbone. Steeds *et al.* ont suggéré que 3H correspond à un interstitiel auto-induit isolé et neutre, de type $\langle 100 \rangle$ [110]. En alternative, Hunt *et al.* ont proposé que 3H soit un défaut multi-interstitiel, et plus précisément un complexe $(I-C-I)^0$ [111].

1.5.2.3 Cas du GaN

Le comportement du GaN face aux irradiations à basse énergie diffère de celui des semi-conducteurs conventionnels. Alors que ces derniers présentent une zone d'endommagement localisée autour de la profondeur moyenne d'implantation (R_p), plusieurs analyses comme celle de c-RBS réalisées sur des échantillons de GaN implantés par des ions Au à 300 keV, ont montré la présence de deux pics d'endommagement, un en surface et l'autre en volume [82]. Ce dernier est composé d'agrégats de défauts ponctuels tels que : les lacunes (V_{Ga} et V_N), les

interstitiels (I_{Ga} et I_N), et des boucles de dislocations [83], tandis que l'endommagement en surface est causé par la migration de ces défauts présents en profondeur après saturation. Il a été montré que cet endommagement augmente avec la fluence et reste partiellement cristallin, sans amorphisation complète.

En général, l'irradiation par protons ou électrons génère principalement des défauts ponctuels simples dans le réseau cristallin des nitrures [112] [113] [114]. Par ailleurs, des études expérimentales spécifiques ont permis d'identifier plusieurs signatures spectroscopiques de défauts induits par irradiation. Par exemple, M.G. Weinstein *et al.* [115] ont réalisé des irradiations aux protons avec des énergies allant de 25 à 300 keV qui montrent par spectroscopie vibrationnelle la formation d'un défaut complexe $V_{Ga}-H_4$ à $3139,5\text{ cm}^{-1}$ ainsi qu'une bande de luminescence jaune à 0,95 eV observée par PL. De plus, Perumal *et al.* [64] ont mis en évidence une bande d'absorption autour de 2,8 eV après irradiation par des ions Sn à 75 MeV. D'autre part, plusieurs auteurs ont observé la formation de bulles d'azote après une irradiation aux ions ayant une énergie de quelques MeV. Ceci s'explique par la diffusion de l'azote à la surface et un enrichissement en gallium. La formation des bulles entraîne un gonflement macroscopique du matériau.

La réponse du GaN à l'irradiation gamma est encore plus complexe. Les électrons Compton générés par les photons γ créent des paires électron-trou, modifiant ainsi l'occupation des pièges électroniques présents dans le matériau. Contrairement à l'irradiation par protons, certaines études ont montré que les défauts induits par les rayons gamma peuvent améliorer les performances électroniques de certains dispositifs, notamment en augmentant le courant de drain à saturation [116] [117].

À haute énergie, les études par MET ont montré l'apparition de traces le long de la trajectoire des particules, avec un seuil de formation d'environ 15 keV/nm [118]. Outre ces traces, une zone fortement endommagée en surface (HDZ : Heavily Damaged Zone), est observée, dont l'épaisseur augmente avec la dose d'implantation (Figure 1.24a et Figure 1.24b). D'après les études de F. Moisy, cette zone n'est pas complètement amorphe, mais conserve une structure partiellement cristalline.

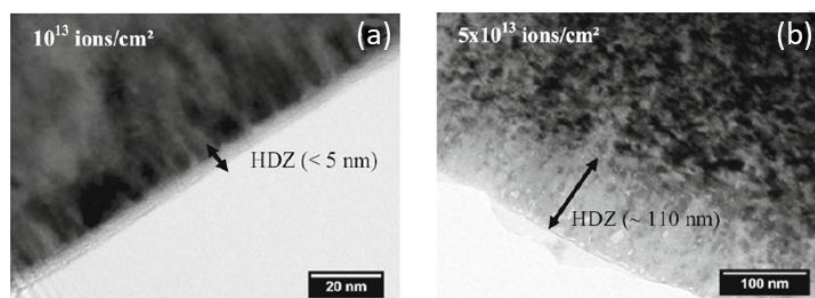


Figure 1.24 : Image MET de GaN irradié aux ions U 106 MeV à (a) 1×10^{13} et (b) 5×10^{13} ions/cm² montrant la zone fortement endommagée [118].

Cependant, des études réalisées au GANIL ont montré qu'il est possible de réduire l'endommagement par une augmentation de la fluence des particules. Ce phénomène est interprété comme une recombinaison ou une guérison des défauts, suggérant que certaines configurations de défauts peuvent se réorganiser ou s'annihiler sous irradiation [84].

1.5.3 Effets des irradiations sur les propriétés optiques du SiC, diamant et GaN

Certains états de charge de la lacune de silicium (V_{Si}) ou de la bilacune ($V_C V_{Si}$) sont connus pour présenter des transitions dans le proche infrarouge [119]. De plus, de nombreuses études ont rapporté des caractéristiques d'absorption et de photoluminescence dans le domaine UV-visible attribuées à ces défauts et à leurs complexes associés. Par exemple, dans le 4H-SiC, les complexes $V_C V_{Si}$ (lacune de carbone - antisite carbone) ont montré une émission dans le visible, en particulier après irradiation par électrons de haute énergie, comme démontré par Zhang et al. à l'aide de la spectroscopie de photoluminescence à basse température [120]. Kalinina *et al.* [121] ont montré que la formation de défauts ponctuels dans le SiC peut avoir un impact significatif sur les performances des photodétecteurs UV à base de ce matériau.

Dans le cas du SiC, l'irradiation par ions lourds rapides (par ex. ^{48}Ti à 332 MeV, ^{208}Pb à 106 MeV, et ^{238}U à 2.7 GeV) a été étudiée à l'aide de spectroscopies UV-visible et Raman [122]. Ces études révèlent l'accumulation de défauts ponctuels (V_C , V_{Si}), V_{Si} étant le défaut dominant dans les échantillons irradiés avec des ions hydrogène de basse énergie (keV).

De plus, Kalinina [123] a étudié l'effet des irradiations par protons et neutrons, à la fois à haute énergie (1 à 2,5 MeV) et à basse énergie (300 à 900 keV). Ces études mettent en évidence la formation de lacunes (V_{Si}), de bilacunes ($V_{Si} V_C$), ainsi que de complexes ($V_{Si} Si_C$) après recuit thermique post-irradiation.

De même, le diamant héberge une grande variété de défauts optiquement actifs qui absorbent et émettent dans les domaines UV-visible. Les plus étudiés sont les centres NV (nitrogen-vacancy), qui existent sous deux états de charge : le centre NV^- (chargé négativement), avec une ligne zéro phonon (ZPL) à 637 nm, et le centre NV^0 (neutre) avec une ZPL à 575 nm. D'autres centres optiquement actifs incluent : la lacune de silicium centre V_{Si} avec une émission à 738 nm, le centre H3 à 503 nm, et le centre N3 à 415 nm [107].

Des études plus récentes ont confirmé une photoluminescence intense dans le domaine visible, provenant des centres V_{Si} dans des nanostructures de diamant synthétiques [55]. Les analyses de niveaux d'énergie situent systématiquement les centres NV et les V_{Si} dans le spectre du visible [124] [125]. En particulier, Neu et al. ont démontré que les centres V_{Si}^- dans des nanodiamants peuvent être efficacement excités avec de la lumière visible (ex. 532 nm), émettant des photons uniques stables à 738 nm, confirmant leur activité optique dans le visible [126]. Par ailleurs, certains auteurs ont mis en évidence une modification de

l'absorption optique dans le diamant irradié par des ions H^+ , He^+ ou Ar^+ à des énergies de 200 ou 400 keV. Cette modification a été principalement attribuée à la formation de carbone amorphe de type sp^2 [127].

Comme pour le SiC et le diamant, de nombreux défauts peuvent affecter les propriétés optiques du GaN. Parmi eux, la luminescence jaune (YL), caractérisée par une émission autour de 2,2 eV, est l'une des signatures optiques les plus étudiées dans le GaN non dopé. Elle est généralement attribuée à des défauts profonds, en particulier à la lacune de gallium (V_{Ga}), qui agit comme un accepteur profond. Ogino et Aoki [128] ont suggéré que cette émission pourrait provenir d'un complexe V_{Ga}_C , liant une lacune de gallium à un atome de carbone. De plus, des impuretés telles que le carbone et l'oxygène, souvent introduites involontairement lors de la croissance par MOCVD, sont également impliquées dans des émissions de la YL (~2,2 eV) et de la GL (green luminescence) à ~2,4 eV [89]. En parallèle, d'autres bandes de luminescence caractéristiques ont été observées :

- Une bande DAP (donneur-accepteur) apparaît autour de 3,24–3,27 eV, et est typique des transitions radiatives entre des donneurs et accepteurs peu profonds [89].
- Le dopage au magnésium, utilisé pour obtenir du GaN de type p, conduit à la formation de complexes Mg–H électriquement passivant. Lorsqu'ils sont dissociés, soit par recuit thermique, soit par excitation optique, ils révèlent une transition radiative dans le bleu (~2,9 eV)[129],
- Une émission vers 3,0 eV est observée après irradiation par faisceau d'électrons de basse énergie (LEEBI) dans le GaN : Mg, attribuée à une transition entre un donneur profond V_N et un accepteur peu profond Mg_{Ga} .

Enfin, dans le domaine du proche infrarouge (1,4–1,7 eV), des émissions ont été observées et pourraient résulter de complexes impliquant des lacunes d'azote (V_N) associées à des impuretés métalliques ou non métalliques. Bien que ces lacunes d'azote soient généralement considérées comme des donneurs peu profonds, elles peuvent donner naissance à des niveaux profonds lorsqu'elles forment des complexes.

La Figure 1.25 résume les différentes bandes de luminescence présentes dans les GaN non dopés ainsi que dans le GaN dopé avec différents éléments. L'insert montre les longueurs d'onde correspondantes obtenues en PL (UVL : luminescence ultraviolette, BL : luminescence bleue, GL : luminescence verte et YL : luminescence jaune) [130].

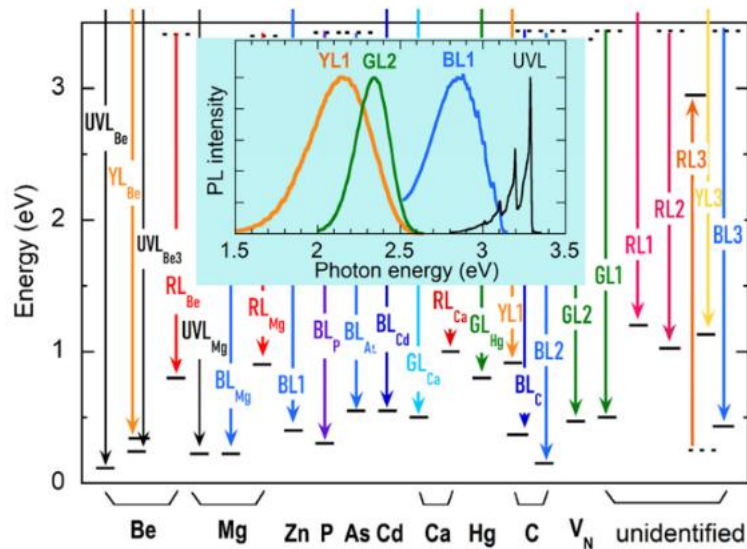


Figure 1.25 : Diagramme de bandes avec les principales transitions radiatives et les noms des bandes de photoluminescence (PL) dans le GaN non dopé et dopé.

Ces résultats montrent clairement que l'impact optique des défauts ne peut pas être limité au seul domaine infrarouge. Leur activité dans le domaine UV-visible doit également être prise en compte, en particulier dans les applications de détection de photons, où un recouvrement spectral avec les photons émis peut dégrader les performances du dispositif par l'introduction d'une absorption ou d'une diffusion indésirable. Il est donc essentiel de comprendre les mécanismes de création de ces défauts afin de pouvoir contrôler les propriétés optiques de ces semi-conducteurs à grand gap.

Toutefois, à ce jour, il reste très difficile de disposer d'une cartographie complète décrivant la formation et l'évolution des défauts en fonction de l'énergie et de la fluence d'irradiation.

1.6 Bilan du chapitre et objectif de la thèse

Ce chapitre a présenté une vue d'ensemble de l'effet Cherenkov, des différents types de détecteurs exploitant ce principe, ainsi que des matériaux radiateurs traditionnellement utilisés. L'analyse a mis en évidence les limitations de ces matériaux dans les environnements à faibles vitesses relatives.

Dans ce contexte, les semi-conducteurs à grand gap ont été introduits comme des candidats prometteurs pour remplacer les radiateurs conventionnels, en raison de leur indice de réfraction élevé et de leur transparence optique dans le domaine visible. Les propriétés du carbure de silicium (SiC), du diamant et du nitrure de gallium (GaN), trois matériaux représentatifs des semi-conducteurs à large bande interdite, ont été décrites. Leurs caractéristiques optiques, électriques et physiques remarquables telles qu'une transmittance élevée dans le domaine du visible, une tenue en température importante, une forte mobilité

des porteurs ou encore une excellente tenue diélectrique en font des candidats de choix pour la détection et la séparation des isotopes en exploitant l'effet Cherenkov.

Cependant, malgré ces propriétés, leurs performances essentiellement en tant qu'émetteurs de photons reposent fortement sur leur qualité cristalline. Le Tableau 1.9 résume quelques défauts natifs ainsi que ceux induits par irradiation dans le SiC, le diamant et le GaN. Ces défauts peuvent perturber l'utilisation des matériaux comme radiateur Cherenkov et compromettre son efficacité. Leur étude ainsi que leur caractérisation, avant et après irradiation, constituent donc un enjeu majeur pour le développement de dispositifs fiables, tels que le détecteur Cherenkov.

Tableau 1.9 : Résumé des défauts natifs et ceux créés par irradiation dans le SiC, le diamant et le GaN.

Échantillons	SiC	Diamant	GaN
Défauts natifs	Défauts d'empilement, V_{Si} , V_C , C_{Si} (resp. Si_C), C_{spSi}	NV^0 , NV^- , macles, joints de grains, dislocations	V_{Ga} , V_N , dislocations
Défauts créés par irradiation	Clusters $(V_{Si}V_CV_{Si})_0$, V_{Si} , V_C , $V_C C_{Si}$ (CAV), $V_{Si}-V_C$	GR1, H3, V_C , TR12, $(I-C-I)^0$	I_{Ga} , I_N , $V_{Ga}-H_4$, $V_{Ga}-C$

Ce travail de thèse vise à :

- Étudier les défauts natifs, le cas échéant ;
- Avoir une vision globale des défauts créés après irradiation sur le SiC, le GaN et le diamant en plus des défauts natifs en utilisant des techniques de caractérisation optiques et structurales complémentaire dans un domaine de taux d'endommagement très larges ; et
- Étudier l'effet du taux d'endommagement sur la formation des défauts après irradiation.

Bien que les défauts créés par irradiation aient été largement étudiés dans la littérature, il n'existe pas à ce jour de cartographie complète couvrant l'ensemble des domaines d'énergie auxquels le détecteur sera soumis. Étudier le comportement des semiconducteurs face à ces défauts dans le domaine du visible est donc une étape cruciale pour le choix du radiateur idéal pour l'émission de l'effet Cherenkov, qui sera utilisé à FRIB.

Cette recherche s'inscrit dans une approche multidisciplinaire, croisant la physique des matériaux et la simulation de l'effet Cherenkov, avec pour objectif de contribuer au développement de nouvelles générations de détecteurs robustes et efficaces.

Références

- [1] M. F. L'Annunziata, « Cherenkov Radiation », in *Radioactivity*, Elsevier, 2023, p. 823-864. doi: 10.1016/B978-0-323-90440-7.00009-0.
- [2] E. Jean, S. Lambert-Girard, F. Therriault-Proulx, et L. Beaulieu, « External beam irradiation angle measurement using a hybrid Cerenkov-scintillation detector », *Phys. Med. Biol.*, vol. 67, n° 10, p. 105011, mai 2022, doi: 10.1088/1361-6560/ac6b79.
- [3] « How a particle racing through a vacuum leaves a trail of blue light », *Nature*, vol. 569, n° 7755, p. 162-162, mai 2019, doi: 10.1038/d41586-019-01430-0.
- [4] A. H. Harvey, E. Paulechka, et P. F. Egan, « Candidates to replace R-12 as a radiator gas in Cherenkov detectors », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 425, p. 38-42, juin 2018, doi: 10.1016/j.nimb.2018.04.006.
- [5] H. Ito, S. Han, A. Kobayashi, N. Kaneko, H. Kawai, et M. Tabata, « Identification of $^{90}\text{Sr}/^{40}\text{K}$ Based on Cherenkov Detector for Recovery from the Fukushima Nuclear Accident », in *Proceedings of International Symposium on Radiation Detectors and Their Uses (ISR2016)*, Tsukuba, Japan: Journal of the Physical Society of Japan, nov. 2016. doi: 10.7566/JPSCP.11.070002.
- [6] M. Machida *et al.*, « Development Of Ring-imaging Cherenkov Counter For Heavy Ions », in *Proceedings of The 26th International Nuclear Physics Conference — PoS(INPC2016)*, Adelaide, Australia: Sissa Medialab, mai 2017, p. 084. doi: 10.22323/1.281.0084.
- [7] A. Parks, J. Hallett, A. Niver, R. Zhang, P. Bruza, et B. W. Pogue, « Review of Cherenkov imaging technology advances in radiotherapy: single-photon-level imaging in high ambient light and radiation backgrounds », *Biophoton. Discovery*, vol. 1, n° 02, juill. 2024, doi: 10.1117/1.BIOS.1.2.020901.
- [8] B. Mc Larney, M. Skubal, et J. Grimm, « A Review of Recent and Emerging Approaches for the Clinical Application of Cerenkov Luminescence Imaging », *Front. Phys.*, vol. 9, p. 684196, juill. 2021, doi: 10.3389/fphy.2021.684196.
- [9] J. Engelfried, « Cherenkov light imaging—Fundamentals and recent developments », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 639, n° 1, p. 1-6, mai 2011, doi: 10.1016/j.nima.2010.10.023.
- [10] F. Mammoliti *et al.*, « A RICH detector for hadron identification at JLab », *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 69, n° 8, p. 1118-1120, août 2011, doi: 10.1016/j.apradiso.2010.10.020.
- [11] K. Inami, « TOP counter for particle identification at the Belle II experiment », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 766, p. 5-8, déc. 2014, doi: 10.1016/j.nima.2014.07.006.
- [12] I. Adachi *et al.*, « Study of a threshold Cherenkov counter based on silica aerogels with low refractive indices », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 355, n° 2-3, p. 390-398, févr. 1995, doi: 10.1016/0168-9002(94)01119-2.
- [13] R. Siudak *et al.*, « A threshold Cherenkov detector for separation using silica aerogel », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators,*

- Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 596, n° 3, p. 311-316, nov. 2008, doi: 10.1016/j.nima.2008.08.129.
- [14] R. Asaturyan *et al.*, « The aerogel threshold Cherenkov detector for the High Momentum Spectrometer in Hall C at Jefferson Lab », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 548, n° 3, p. 364-374, août 2005, doi: 10.1016/j.nima.2005.04.058.
- [15] T. Iijima *et al.*, « Aerogel Cherenkov counter for the BELLE detector », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 453, n° 1-2, p. 321-325, oct. 2000, doi: 10.1016/S0168-9002(00)00652-5.
- [16] J. V. Jelley, « Cerenkov radiation and its applications », *Br. J. Appl. Phys.*, vol. 6, n° 7, p. 227-232, juill. 1955, doi: 10.1088/0508-3443/6/7/301.
- [17] F. Di Lodovico et Hyper-Kamiokande Collaboration, « The Hyper-Kamiokande Experiment », *J. Phys.: Conf. Ser.*, vol. 888, p. 012020, sept. 2017, doi: 10.1088/1742-6596/888/1/012020.
- [18] E. Albrecht *et al.*, « COMPASS RICH-1 », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 504, n° 1-3, p. 354-355, mai 2003, doi: 10.1016/S0168-9002(03)00769-1.
- [19] S. Vallarino *et al.*, « Prototype of a dual-radiator RICH detector for the Electron-Ion Collider », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 1058, p. 168834, janv. 2024, doi: 10.1016/j.nima.2023.168834.
- [20] K. Nanbu *et al.*, « Bunch Length Measurement Employing Cherenkov Radiation from a Thin Silica Aerogel », *Particles*, vol. 1, n° 1, p. 305-314, déc. 2018, doi: 10.3390/particles1010025.
- [21] E. Torassa, « TOP detector for particle identification at Belle II », *Int. J. Mod. Phys. A*, vol. 39, n° 26n27, p. 2442014, sept. 2024, doi: 10.1142/S0217751X24420144.
- [22] V. Kyryanchuk, H. Machner, R. Siudak, et J. Ritman, « Event Reconstruction for a DIRC », 2009, doi: 10.48550/ARXIV.0906.5547.
- [23] B. M. Sherrill, « Future Opportunities at the Facility for Rare Isotope Beams », *EPJ Web Conf.*, vol. 178, p. 01001, 2018, doi: 10.1051/epjconf/201817801001.
- [24] I. Tanihata, « Riken accelerator research facility: The center of heavy-ion research and radioactive beams in japan », *Nuclear Physics News*, vol. 5, n° 1, p. 5-10, janv. 1995, doi: 10.1080/10506899508223911.
- [25] H. Franberg Delahaye, « The New GANIL Beams: Commissioning of SPIRAL 2 Accelerator and Recent Developments », *Proceedings of the 15th International Conference on Heavy Ion Accelerator Technology*, vol. HIAT2022, p. 6 pages, 1.736 MB, 2022, doi: 10.18429/JACOW-HIAT2022-WE211.
- [26] J. Wisniak, « Jöns Jacob Berzelius A Guide to the Perplexed Chemist », *Chem. Educator*, vol. 5, n° 6, p. 343-350, déc. 2000, doi: 10.1007/s00897000430a.
- [27] P. J. Guichelaar, « Acheson Process », in *Carbide, Nitride and Boride Materials Synthesis and Processing*, A. W. Weimer, Éd., Dordrecht: Springer Netherlands, 1997, p. 115-129. doi: 10.1007/978-94-009-0071-4_4.
- [28] H. J. Round, « A Note on Carborundum », in *Semiconductor Devices: Pioneering Papers*, WORLD SCIENTIFIC, 1991, p. 879-879. doi: 10.1142/9789814503464_0116.
- [29] A. C. Sparavigna, « The Invention of Carborundum, the Synthetic Silicon Carbide ».

- [30] P. J. H. Denteneer et W. Van Haeringen, « Ground-state properties of polytypes of silicon carbide », *Phys. Rev. B*, vol. 33, n° 4, p. 2831-2834, févr. 1986, doi: 10.1103/PhysRevB.33.2831.
- [31] G. R. Fisher et P. Barnes, « Towards a unified view of polytypism in silicon carbide », *Philosophical Magazine B*, vol. 61, n° 2, p. 217-236, févr. 1990, doi: 10.1080/13642819008205522.
- [32] T. Kimoto et J. A. Cooper, *Fundamentals of silicon carbide technology: growth, characterization, devices and applications*. Singapore : Wiley, 2014. doi: 10.1002/9781118313534.
- [33] A. L. Ortiz, F. Sánchez-Bajo, F. L. Cumbreira, et F. Guiberteau, « The prolific polytypism of silicon carbide », *J Appl Crystallogr*, vol. 46, n° 1, p. 242-247, févr. 2013, doi: 10.1107/S0021889812049151.
- [34] R. Wu, K. Zhou, C. Y. Yue, J. Wei, et Y. Pan, « Recent progress in synthesis, properties and potential applications of SiC nanomaterials », *Progress in Materials Science*, vol. 72, p. 1-60, juill. 2015, doi: 10.1016/j.pmatsci.2015.01.003.
- [35] L. S. Ramsdell, « Studies on silicon carbide », *American Mineralogist*, vol. 32, n° 1-2, p. 64-82, févr. 1947.
- [36] Y. Zhang *et al.*, « Nucleation Mechanism of 6H-SiC Polytype Inclusions Inside 15R-SiC Crystals », *Journal of Elec Materi*, vol. 39, n° 6, p. 799-804, juin 2010, doi: 10.1007/s11664-010-1105-8.
- [37] P. G. Neudeck, « Progress in silicon carbide semiconductor electronics technology », *JEM*, vol. 24, n° 4, p. 283-288, avr. 1995, doi: 10.1007/BF02659688.
- [38] W. Taha, « Comparative Study on Silicon Carbide (SiC) Polytypes in High Voltage Devices », in *2021 International Conference on Sustainable Energy and Future Electric Transportation (SEFET)*, Hyderabad, India: IEEE, janv. 2021, p. 1-6. doi: 10.1109/SeFet48154.2021.9375815.
- [39] T. Stachel et J. W. Harris, « The origin of cratonic diamonds — Constraints from mineral inclusions », *Ore Geology Reviews*, vol. 34, n° 1-2, p. 5-32, sept. 2008, doi: 10.1016/j.oregeorev.2007.05.002.
- [40] T. Stachel et R. W. Luth, « Diamond formation — Where, when and how? », *Lithos*, vol. 220-223, p. 200-220, avr. 2015, doi: 10.1016/j.lithos.2015.01.028.
- [41] H. Bureau, D. J. Frost, N. Bolfan-Casanova, C. Leroy, I. Esteve, et P. Cordier, « Diamond growth in mantle fluids », *Lithos*, vol. 265, p. 4-15, nov. 2016, doi: 10.1016/j.lithos.2016.10.004.
- [42] T. W. Overton et J. E. Shigley, « A History of Diamond Treatments », 2008.
- [43] S. B. Shirey et J. E. Shigley, « Recent Advances in Understanding the Geology of Diamonds », *G&G*, vol. 49, n° 4, p. 188-222, févr. 2014, doi: 10.5741/GEMS.49.4.188.
- [44] S. K. Tiwari, V. Kumar, A. Huczko, R. Oraon, A. D. Adhikari, et G. C. Nayak, « Magical Allotropes of Carbon : Prospects and Applications », *Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences*, vol. 41, n° 4, p. 257-317, juill. 2016, doi: 10.1080/10408436.2015.1127206.
- [45] C. Kittel, *Introduction to solid state physics*, 8th ed. Hoboken, NJ: Wiley, 2005.
- [46] C. Tavares, « Étude et réalisation de jonctions p/n en diamant, » Ph.D. dissertation, Université Joseph Fourier – Grenoble I, Grenoble, France, 2006. [En ligne]. Disponible sur : HAL TEL – tel-00201822.

- [47] A. Filatova-Zalewska *et al.*, « Anisotropic thermal conductivity of AlGa_N/Ga_N superlattices », *Nanotechnology*, vol. 32, n° 7, p. 075707, févr. 2021, doi: 10.1088/1361-6528/abc5f2.
- [48] D. Donoval, C. M. Snowden, V. Nagl, J. Racko, et M. Barus, « Modeling of CrSi/sub 2/-Si and MoSi/sub 2/-Si Schottky barrier contacts », *IEEE Trans. Electron Devices*, vol. 42, n° 6, p. 1187-1189, juin 1995, doi: 10.1109/16.387256.
- [49] R. W. Flammang, J. G. Seidel, et F. H. Ruddy, « Fast neutron detection with silicon carbide semiconductor radiation detectors », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 579, n° 1, p. 177-179, août 2007, doi: 10.1016/j.nima.2007.04.034.
- [50] J. Vaitkus *et al.*, « Space charge effects, carrier capture transient behaviour and α particle detection in semi-insulating GaN », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 514, n° 1-3, p. 141-145, nov. 2003, doi: 10.1016/j.nima.2003.08.096.
- [51] C. Zhou, A. G. Melton, E. Burgett, N. Hertel, et I. T. Ferguson, « Neutron detection performance of gallium nitride based semiconductors », *Sci Rep*, vol. 9, n° 1, p. 17551, nov. 2019, doi: 10.1038/s41598-019-53664-7.
- [52] J.-Y. Duboz *et al.*, « GaN for x-ray detection », *Applied Physics Letters*, vol. 92, n° 26, p. 263501, juin 2008, doi: 10.1063/1.2951619.
- [53] C. E. Nebel, « CVD diamond: a review on options and reality », *Functional Diamond*, vol. 3, n° 1, p. 2201592, déc. 2023, doi: 10.1080/26941112.2023.2201592.
- [54] Wolfspeed, « Cree compagy », Cree, Inc. Officially Changes Company Name to Wolfspeed, Inc., Marking Successful Transition to Global Semiconductor Powerhouse. [En ligne]. Disponible sur : <https://www.wolfspeed.com/>
- [55] R. C. Glass, D. Henshall, V. F. Tsvetkov, et C. H. Carter, Jr., « SiC Seeded Crystal Growth », *phys. stat. sol. (b)*, vol. 202, n° 1, p. 149-162, juill. 1997, doi: 10.1002/1521-3951(199707)202:1%3C149::AID-PSSB149%3E3.0.CO;2-M.
- [56] N. Ohtani, M. Katsuno, T. Fujimoto, T. Aigo, et H. Yashiro, « Surface step model for micropipe formation in SiC », *Journal of Crystal Growth*, vol. 226, n° 2-3, p. 254-260, juin 2001, doi: 10.1016/S0022-0248(01)01387-2.
- [57] M. F. MacMillan *et al.*, « Cathodoluminescence of Defect Regions in SiC Epi-Films », *MSF*, vol. 264-268, p. 653-656, févr. 1998, doi: 10.4028/www.scientific.net/MSF.264-268.653.
- [58] E. Pernot *et al.*, « X-ray Diffraction, Micro-Raman and Birefringence Imaging of Silicon Carbide », *MSF*, vol. 353-356, p. 283-286, janv. 2001, doi: 10.4028/www.scientific.net/MSF.353-356.283.
- [59] H. Iwata, U. Lindefelt, S. Öberg, et P. R. Briddon, « A new type of quantum wells: stacking faults in silicon carbide », *Microelectronics Journal*, vol. 34, n° 5-8, p. 371-374, mai 2003, doi: 10.1016/S0026-2692(03)00027-2.
- [60] P. Kwasnicki, « Evaluation of doping in 4H-SiC by optical spectroscopies », UNIVERSITE MONTPELLIER II SCIENCES ET TECHNIQUES DU LANGUEDOC, MONTPELLIER, 2014. [En ligne]. Disponible sur : <https://theses.hal.science/tel-01713581v1>
- [61] J. Q. Liu, M. Skowronski, C. Hallin, R. Söderholm, et H. Lendenmann, « Structure of recombination-induced stacking faults in high-voltage SiC *p-n* junctions », *Applied Physics Letters*, vol. 80, n° 5, p. 749-751, févr. 2002, doi: 10.1063/1.1446212.

- [62] H. Itoh *et al.*, « Intrinsic Defects in Cubic Silicon Carbide », *phys. stat. sol. (a)*, vol. 162, n° 1, p. 173-198, juill. 1997, doi: 10.1002/1521-396X(199707)162:1%3C173::AID-PSSA173%3E3.0.CO;2-W.
- [63] J. Coutinho, « Theory of the Thermal Stability of Silicon Vacancies and Interstitials in 4H-SiC », *Crystals*, vol. 11, n° 2, p. 167, févr. 2021, doi: 10.3390/cryst11020167.
- [64] A. Zywietz, J. Furthmüller, et F. Bechstedt, « Vacancies in SiC : Influence of Jahn-Teller distortions, spin effects, and crystal structure », *Phys. Rev. B*, vol. 59, n° 23, p. 15166-15180, juin 1999, doi: 10.1103/PhysRevB.59.15166.
- [65] L. Torpo, R. M. Nieminen, K. E. Laasonen, et S. Pöykkö, « Silicon vacancy in SiC : A high-spin state defect », *Applied Physics Letters*, vol. 74, n° 2, p. 221-223, janv. 1999, doi: 10.1063/1.123299.
- [66] J. A. Freitas, S. G. Bishop, J. A. Edmond, J. Ryu, et R. F. Davis, « Photoluminescence spectroscopy of ion-implanted 3C-SiC grown by chemical vapor deposition », *Journal of Applied Physics*, vol. 61, n° 5, p. 2011-2016, mars 1987, doi: 10.1063/1.337997.
- [67] T. Umeda, J. Ishoya, T. Ohshima, N. Morishita, H. Itoh, et A. Gali, « Identification of positively charged carbon antisite-vacancy pairs in 4 H – Si C », *Phys. Rev. B*, vol. 75, n° 24, p. 245202, juin 2007, doi: 10.1103/PhysRevB.75.245202.
- [68] M. Bockstedte, A. Gali, A. Mattausch, O. Pankratov, et J. W. Steeds, « Identification of intrinsic defects in SiC : Towards an understanding of defect aggregates by combining theoretical and experimental approaches », *Physica Status Solidi (b)*, vol. 245, n° 7, p. 1281-1297, juill. 2008, doi: 10.1002/pssb.200844048.
- [69] C. Wang, J. Bernholc, et R. F. Davis, « Formation energies, abundances, and the electronic structure of native defects in cubic SiC », *Phys. Rev. B*, vol. 38, n° 17, p. 12752-12755, déc. 1988, doi: 10.1103/PhysRevB.38.12752.
- [70] F. Gao, E. J. Bylaska, W. J. Weber, et L. R. Corrales, « *Ab initio* and empirical-potential studies of defect properties in 3 C – SiC », *Phys. Rev. B*, vol. 64, n° 24, p. 245208, déc. 2001, doi: 10.1103/PhysRevB.64.245208.
- [71] A. Gali, P. Deák, P. Ordejón, N. T. Son, E. Janzén, et W. J. Choyke, « Aggregation of carbon interstitials in silicon carbide: A theoretical study », *Phys. Rev. B*, vol. 68, n° 12, p. 125201, sept. 2003, doi: 10.1103/PhysRevB.68.125201.
- [72] A. A. Khomich, R. Khmel'nitskii, M. Kozlova, A. V. Khomich, et V. Ralchenko, « IR Spectroscopy of Vacancy Clusters (Amber Centers) in CVD Diamonds Nanostructured by Fast Neutron Irradiation », *C*, vol. 9, n° 2, p. 55, mai 2023, doi: 10.3390/c9020055.
- [73] B. Slepetz et M. Kertesz, « Divacancies in diamond: a stepwise formation mechanism », *Phys. Chem. Chem. Phys.*, vol. 16, n° 4, p. 1515-1521, 2014, doi: 10.1039/C3CP53384K.
- [74] « Forefront engineering of nitrogen-vacancy centers in diamond for quantum technologies.pdf ».
- [75] « Engineering of NV color centers in diamond for their applications in quantum information and magnetometry.pdf ».
- [76] G. Davies, S. C. Lawson, A. T. Collins, A. Mainwood, et S. J. Sharp, « Vacancy-related centers in diamond », *Phys. Rev. B*, vol. 46, n° 20, p. 13157-13170, nov. 1992, doi: 10.1103/PhysRevB.46.13157.
- [77] A. Haque et S. Sumaiya, « An Overview on the Formation and Processing of Nitrogen-Vacancy Photonic Centers in Diamond by Ion Implantation », *JMMP*, vol. 1, n° 1, p. 6, août 2017, doi: 10.3390/jmmp1010006.

- [78] R. C. Burns *et al.*, « HPHT growth and x-ray characterization of high-quality type IIa diamond », *J. Phys.: Condens. Matter*, vol. 21, n° 36, p. 364224, sept. 2009, doi: 10.1088/0953-8984/21/36/364224.
- [79] A. Tallaïre *et al.*, « Thick CVD diamond films grown on high-quality type IIa HPHT diamond substrates from New Diamond Technology », *Diamond and Related Materials*, vol. 77, p. 146-152, août 2017, doi: 10.1016/j.diamond.2017.07.002.
- [80] L. T. M. Hoa, T. Ouisse, D. Chaussende, M. Naamoun, A. Tallaïre, et J. Achard, « Birefringence Microscopy of Unit Dislocations in Diamond », *Crystal Growth & Design*, vol. 14, n° 11, p. 5761-5766, nov. 2014, doi: 10.1021/cg5010193.
- [81] C. Wild *et al.*, "Textured growth and twinning in polycrystalline CVD diamond films," in *2nd Int. Symp. Diamond Materials*, Electrochemical Society Proc. 91-8, pp. 224-239, 1991.
- [82] S. Kaboli et P. C. Burnley, « Direct observations of crystal defects in polycrystalline diamond », *Materials Characterization*, vol. 142, p. 154-161, août 2018, doi: 10.1016/j.matchar.2018.05.036.
- [83] A. F. Khokhryakov et Y. N. Palyanov, « Revealing of planar defects and partial dislocations in large synthetic diamond crystals by the selective etching », *Journal of Crystal Growth*, vol. 306, n° 2, p. 458-464, août 2007, doi: 10.1016/j.jcrysgr.2007.05.028.
- [84] T. Liu, D. Raabe, W. Mao, et S. Zaefferer, « Microtexture and Grain Boundaries in Freestanding CVD Diamond Films : Growth and Twinning Mechanisms », *Adv Funct Materials*, vol. 19, n° 24, p. 3880-3891, déc. 2009, doi: 10.1002/adfm.200901231.
- [85] P. Koblinski, S. R. Phillpot, D. Wolf, et H. Gleiter, « On the nature of grain boundaries in nanocrystalline diamond », *Nanostructured Materials*, vol. 12, n° 1-4, p. 339-344, janv. 1999, doi: 10.1016/S0965-9773(99)00130-0.
- [86] P. Koblinski, D. Wolf, F. Cleri, S. R. Phillpot, et H. Gleiter, « Grain Boundaries in Nanocrystalline Diamond », *MRS BULLETIN*, 1998.
- [87] E. Kohn, A. Denisenko, M. Kubovic, T. Zimmermann, O. A. Williams, et D. M. Gruen, « A new diamond based heterostructure diode », *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 21, n° 4, p. L32-L35, avr. 2006, doi: 10.1088/0268-1242/21/4/L02.
- [88] T. Mattila et R. M. Nieminen, « Point-defect complexes and broadband luminescence in GaN and AlN », *Phys. Rev. B*, vol. 55, n° 15, p. 9571-9576, avr. 1997, doi: 10.1103/PhysRevB.55.9571.
- [89] M. A. Reshchikov et H. Morkoç, « Luminescence properties of defects in GaN », *Journal of Applied Physics*, vol. 97, n° 6, p. 061301, mars 2005, doi: 10.1063/1.1868059.
- [90] L. Rigutti, « Study of transformation of defect states in GaN- and SiC-based materials and devices ».
- [91] X. H. Wu *et al.*, « Dislocation generation in GaN heteroepitaxy », *Journal of Crystal Growth*, vol. 189-190, p. 231-243, juin 1998, doi: 10.1016/S0022-0248(98)00240-1.
- [92] J. Elsner *et al.*, « Theory of Threading Edge and Screw Dislocations in GaN », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 79, n° 19, p. 3672-3675, nov. 1997, doi: 10.1103/PhysRevLett.79.3672.
- [93] A. F. Wright et U. Grossner, « The effect of doping and growth stoichiometry on the core structure of a threading edge dislocation in GaN », *Applied Physics Letters*, vol. 73, n° 19, p. 2751-2753, nov. 1998, doi: 10.1063/1.122579.
- [94] I. Belabbas *et al.*, « Local electronic structure of threading screw dislocation in wurtzite GaN », *Computational Materials Science*, vol. 37, n° 3, p. 410-416, sept. 2006, doi: 10.1016/j.commatsci.2005.11.002.

- [95] R. Devanathan et W. J. Weber, « Displacement energy surface in 3C and 6H SiC », *Journal of Nuclear Materials*, vol. 278, n° 2-3, p. 258-265, avr. 2000, doi: 10.1016/S0022-3115(99)00266-4.
- [96] S. Dannefaer, D. Craigen, et D. Kerr, « Carbon and silicon vacancies in electron-irradiated 6 H -SiC », *Phys. Rev. B*, vol. 51, n° 3, p. 1928-1930, janv. 1995, doi: 10.1103/PhysRevB.51.1928.
- [97] M.-F. Barthe *et al.*, « Negatively charged vacancy defects in 6H-SiC after low-energy proton implantation and annealing », *Physica B: Condensed Matter*, vol. 308-310, p. 668-670, déc. 2001, doi: 10.1016/S0921-4526(01)00786-4.
- [98] X. Karibirou « Propriétés des défauts ponctuels natifs et induits par irradiation dans les polytypes 3C et 6H du carbure de silicium déterminées par annihilation de positons et RPE », Thèse de doctorat, Université d'Orléans, Orléans, France, 2006.
- [99] F. Linez, « Propriété des défauts lacunaires dans le carbure de silicium : évolution de leur nature en fonction des conditions d'irradiation et interaction avec l'hélium », Thèse de doctorat, Université d'Orléans, Orléans, France, 2012.
- [100] A. Kawasuso *et al.*, « Vacancies in He-implanted 4H and 6H SiC epilayers studied by positron annihilation », *Physica B : Condensed Matter*, vol. 308-310, p. 660-663, déc. 2001, doi: 10.1016/S0921-4526(01)00783-9.
- [101] W. Sullivan, J. W. Steeds, H. J. Von Bardeleben, et J. L. Cantin, « A Combined Photoluminescence and Electron Paramagnetic Resonance Study of Low Energy Electron Irradiated 4H SiC », *MSF*, vol. 527-529, p. 477-480, oct. 2006, doi: 10.4028/www.scientific.net/MSF.527-529.477.
- [102] L. Henry *et al.*, « Silicon vacancy-type defects in as-received and 12-MeV proton-irradiated 6 H – SiC studied by positron annihilation spectroscopy », *Phys. Rev. B*, vol. 67, n° 11, p. 115210, mars 2003, doi: 10.1103/PhysRevB.67.115210.
- [103] A. S. Al Atem, *Ingénierie des centres colorés dans SiC pour la photonique et la solotronique*, Ph.D. dissertation, Université de Lyon, INSA Lyon, Villeurbanne, France, 2018. NNT: 2018LYSEI097. Available: <https://theses.fr/2018LYSEI097>.
- [104] L. A. Mills, *Optical Characterisation of Point Defects in CVD Diamond*, Ph.D. dissertation, Department of Physics, University of Warwick, Coventry, UK, Dec. 2022. [En ligne]. Disponible sur : <http://wrap.warwick.ac.uk/180627>.
- [105] A. G. Alekseev, V. N. Amosov, A. V. Krasil'nikov, S. N. Tugarinov, V. V. Frunze, et A. Yu. Tsutskikh, « Transformation of GR1 defects in annealed natural type IIa diamonds », *Tech. Phys. Lett.*, vol. 26, n° 6, p. 496-498, juin 2000, doi: 10.1134/1.1262889.
- [106] « The absorption spectra of natural and irradiated diamonds », *Proc. R. Soc. Lond. A*, vol. 234, n° 1198, p. 363-381, févr. 1956, doi: 10.1098/rspa.1956.0040.
- [107] A. M. Zaitsev, *Optical Properties of Diamond*. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2001. doi: 10.1007/978-3-662-04548-0.
- [108] G. Davies, C. Foy, et K. O'Donnell, « The TR12 vibronic band in diamond », *J. Phys. C: Solid State Phys.*, vol. 14, n° 28, p. 4153-4165, oct. 1981, doi: 10.1088/0022-3719/14/28/016.
- [109] Z. Ma, Y. Zheng, et H. Naramoto, « Subsurface modification and relative optical density of synthetic diamond », *Applied Surface Science*, vol. 119, n° 3-4, p. 181-184, oct. 1997, doi: 10.1016/S0169-4332(97)00214-6.
- [110] J. W. Steeds, T. J. Davis, S. J. Charles, J. M. Hayes, et J. E. Butler, « 3H luminescence in electron-irradiated diamond samples and its relationship to self-interstitials », *Diamond*

- and Related Materials*, vol. 8, n° 10, p. 1847-1852, oct. 1999, doi: 10.1016/S0925-9635(99)00144-2.
- [111] D. C. Hunt *et al.*, « Identification of the neutral carbon $\langle 100 \rangle$ -split interstitial in diamond », *Phys. Rev. B*, vol. 61, n° 6, p. 3863-3876, févr. 2000, doi: 10.1103/PhysRevB.61.3863.
- [112] K. H. Chow, G. D. Watkins, A. Usui, et M. Mizuta, « Detection of Interstitial Ga in GaN », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 85, n° 13, p. 2761-2764, sept. 2000, doi: 10.1103/PhysRevLett.85.2761.
- [113] A. Tiwari et S. Valyukh, *Advanced energy materials*. in Advance materials series. Hoboken, New Jersey: John Wiley & Sons, 2014.
- [114] S. J. Pearton, Y.-S. Hwang, et F. Ren, « Radiation Effects in GaN-Based High Electron Mobility Transistors », *JOM*, vol. 67, n° 7, p. 1601-1611, juill. 2015, doi: 10.1007/s11837-015-1359-y.
- [115] M. G. Weinstein *et al.*, « Spectroscopy of Proton Implanted GaN », *MRS Internet j. nitride semicond. res.*, vol. 4, n° S1, p. 542-547, 1999, doi: 10.1557/S109257830000301X.
- [116] A. M. Kurakin *et al.*, « Mechanism of mobility increase of the two-dimensional electron gas in AlGaIn/GaN heterostructures under small dose gamma irradiation », *Journal of Applied Physics*, vol. 103, n° 8, p. 083707, avr. 2008, doi: 10.1063/1.2903144.
- [117] C. Schwarz *et al.*, « Gamma irradiation impact on electronic carrier transport in AlGaIn/GaN high electron mobility transistors », *Applied Physics Letters*, vol. 102, n° 6, p. 062102, févr. 2013, doi: 10.1063/1.4792240.
- [118] M. Sall *et al.*, « Track formation in III-N semiconductors irradiated by swift heavy ions and fullerene and re-evaluation of the inelastic thermal spike model », *J Mater Sci*, vol. 50, n° 15, p. 5214-5227, août 2015, doi: 10.1007/s10853-015-9069-y.
- [119] T. Sun *et al.*, « Divacancy and silicon vacancy color centers in 4H-SiC fabricated by hydrogen and dual ions implantation and annealing », *Ceramics International*, vol. 49, n° 5, p. 7452-7465, mars 2023, doi: 10.1016/j.ceramint.2022.10.219.
- [120] Y. Zhang *et al.*, « Optical Characterization of Native Defects in 4H-SiC Irradiated by 10 MeV Electrons with Subsequent Annealing », *J Appl Spectrosc*, vol. 87, n° 6, p. 1023-1028, janv. 2021, doi: 10.1007/s10812-021-01104-8.
- [121] E. V. Kalinina *et al.*, « Structural, Electrical, and Optical Properties of 4H-SiC for Ultraviolet Photodetectors », *Semiconductors*, vol. 54, n° 12, p. 1628-1633, déc. 2020, doi: 10.1134/S1063782620120118.
- [122] S. Sorieul, X. Kerbiriou, J.-M. Costantini, L. Gosmain, G. Calas, et C. Trautmann, « Optical spectroscopy study of damage induced in 4H-SiC by swift heavy ion irradiation », *J. Phys.: Condens. Matter*, vol. 24, n° 12, p. 125801, mars 2012, doi: 10.1088/0953-8984/24/12/125801.
- [123] E. V. Kalinina, « The effect of irradiation on the properties of SiC and devices based on this compound », *Semiconductors*, vol. 41, n° 7, p. 745-783, juill. 2007, doi: 10.1134/S1063782607070019.
- [124] A. Faraon, P. E. Barclay, C. Santori, K.-M. C. Fu, et R. G. Beausoleil, « Resonant enhancement of the zero-phonon emission from a colour centre in a diamond cavity », *Nature Photon*, vol. 5, n° 5, p. 301-305, mai 2011, doi: 10.1038/nphoton.2011.52.

- [125] A. M. Flatae *et al.*, « Single-photon emission from silicon-vacancy color centers in polycrystalline diamond membranes », *Applied Physics Letters*, vol. 124, n° 9, p. 094001, févr. 2024, doi: 10.1063/5.0191665.
- [126] E. Neu *et al.*, « Single photon emission from silicon-vacancy colour centres in chemical vapour deposition nano-diamonds on iridium », *New J. Phys.*, vol. 13, n° 2, p. 025012, févr. 2011, doi: 10.1088/1367-2630/13/2/025012.
- [127] R. Brunetto, G. A. Baratta, et G. Strazzulla, « Raman spectroscopy of ion irradiated diamond », *Journal of Applied Physics*, vol. 96, n° 1, p. 380-386, juill. 2004, doi: 10.1063/1.1759080.
- [128] T. Ogino et M. Aoki, « Mechanism of Yellow Luminescence in GaN », *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 19, n° 12, p. 2395-2405, déc. 1980, doi: 10.1143/JJAP.19.2395.
- [129] O. Gelhausen *et al.*, « Dissociation of H-related defect complexes in Mg-oped GaN », *Phys. Rev. B*, vol. 69, n° 12, p. 125210, mars 2004, doi: 10.1103/PhysRevB.69.125210.
- [130] M. A. Reshchikov, « Luminescence Properties of Defects in GaN: Solved and Unsolved Problems », *Solids*, vol. 6, n° 3, p. 52, sept. 2025, doi: 10.3390/solids6030

Chapitre 2. Méthodologie expérimentale et simulation

Table des matières

2	Méthodologie expérimentale et simulation.....	41
2.1	Propriétés des matériaux utilisés	51
2.1.1	Le SiC	51
2.1.2	Le diamant.....	51
2.1.3	Le GaN	52
2.2	Outils de simulation	52
2.2.1	Stopping and Range of Ion in Matter (SRIM)	52
2.2.2	GEometry ANd Tracking version 4 (GEANT4).....	53
2.2.3	Rapid Object-Oriented Technology (ROOT)	56
2.3	Conditions d'irradiation	56
2.3.1	Le Pelletron au CEMHTI (CNRS, Orléans)	56
2.3.2	Le Grand Accélérateur National d'Ions Lourds (GANIL).....	59
2.3.3	La Facility for Rare Isotope Beam (FRIB)	61
2.4	Techniques de caractérisations.....	66
2.4.1	La spectroscopie UV-Visible	66
2.4.2	La photoluminescence	68
2.4.3	La spectroscopie Raman.....	69
2.4.4	Spectroscopie d'annihilation des positons	72
2.5	Bilan du chapitre	78
	Références.....	79

2 Méthodologie expérimentale et simulation

Ce chapitre présente les différentes techniques utilisées pour évaluer l'effet des irradiations sur des matériaux à grand gap tels que le carbure de silicium (SiC), le diamant et le nitrure de gallium (GaN). Nous décrivons tout d'abord les différents échantillons étudiés (section 2.1), ainsi que les accélérateurs de particules employés et les conditions d'irradiation (section 2.3): le pelletron au CNRS d'Orléans [1] pour l'implantation d'hydrogène, l'accélérateur de la salle G4 au GANIL [2] pour les irradiations au carbone 12 (^{12}C) à hautes énergies (85 MeV/n et 95 MeV/n, où n représente les nucléons), et le LINAC [3] au FRIB [4] pour des irradiations à 100 MeV/n du carbone 17 (^{17}C), ainsi qu'un ensemble de particules ioniques rares résultants de la collision du ^{48}Ca à 215 MeV/n sur une cible de ^9Be . En parallèle, des simulations réalisées avec SRIM, GEANT4 [5] et ROOT (section 2.2) ont permis de déterminer les fluences de ces particules en travaillant à dpa constant et de modéliser leur passage à travers la matière. Afin d'étudier et d'évaluer les défauts induits par les irradiations dans les matériaux, différentes techniques de caractérisation (section 2.4) viennent compléter cette analyse, notamment la spectroscopie UV-visible, la photoluminescence, la spectroscopie Raman, ainsi que la spectroscopie d'annihilation des positons.

2.1 Propriétés des matériaux utilisés

Dans notre travail, plusieurs substrats massifs de semiconducteurs à grand gap ont été utilisés, tel que : le SiC, le diamant et le GaN.

2.1.1 Le SiC

Deux types de SiC ont été choisis durant notre étude :

- Un wafer de $350 \pm 25 \mu\text{m}$ d'épaisseur, de 6" de 4H-SiC de type n avec une orientation $\langle 0001 \rangle$ et une concentration de dopants de $4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, fourni par la compagnie CREE® (actuellement Wolfspeed) [6], a été utilisé. Les conditions de croissance n'ont pas été fournies par le fabricant.
- Un wafer de $450 \pm 25 \mu\text{m}$ d'épaisseur, de 4H-SiC HPSI « High Purity Semi-Insulating » non dopé $\langle 0001 \rangle$ et une concentration de dopants $\sim 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, fourni par la même compagnie.

2.1.2 Le diamant

En raison du coût élevé du diamant monocristallin synthétique, nous avons choisi d'étudier et de comparer le comportement de deux types d'échantillons face aux irradiations. Ces échantillons, obtenus par dépôt chimique en phase vapeur (CVD) sur substrat Si, ont été fournis par la société MSE Supplies® [7]:

- Un échantillon polycristallin ($10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 0,3 \pm 0,015\text{ mm}$), avec les deux faces polies, présentant une rugosité moyenne de surface (R_a) $< 1\text{ nm}$, et une orientation cristalline préférentielle $\langle 110 \rangle$.
- Un échantillon monocristallin ($5\text{ mm} \times 5\text{ mm} \times 0,3 \pm 0,05\text{ mm}$), avec une seule face polie, une rugosité $R_a < 20\text{ nm}$, et une orientation cristalline $\langle 100 \rangle$.

2.1.3 Le GaN

La société MSE Supplies® propose des substrats monocristallins de GaN de haute qualité, caractérisés par une faible densité de dislocations (de l'ordre de 10^5 cm^{-2}) et une surface uniforme, exempte de défauts périodiques. Ces échantillons sont non intentionnellement dopés, avec une concentration d'environ $\sim 1 \times 10^{17}\text{ cm}^{-3}$.

Dans le cadre de notre étude, trois types de substrats de GaN à structure hexagonale ont été sélectionnés :

- GaN plan-c ($10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 0,35 \pm 0,025\text{ mm}$), d'orientation $\langle 0001 \rangle$ avec les deux faces polies (face Ga et face N), présentant une polarité Ga.
- GaN plan-c ($10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 0,35 \pm 0,025\text{ mm}$), d'orientation $\langle 0001 \rangle$, avec une seule face polie (la face Ga), et une polarité Ga.
- GaN plan-a ($5\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 0,35 \pm 0,025\text{ mm}$) et d'orientation $\langle 11\text{-}20 \rangle$, avec les deux faces polies. Ce dernier est un substrat non polaire.

Ce choix est motivé par le fait que le plan c et le plan a sont considérés selon une étude comme étant les plans qui présentent le moins de dislocations comparativement aux plans r et m [8].

2.2 Outils de simulation

2.2.1 Stopping and Range of Ion in Matter (SRIM)

SRIM est un logiciel de simulation développé par J.F. Ziegler *et al.* [9], basé sur la méthode Monte-Carlo qui suit individuellement chaque particule à travers un matériau considéré comme amorphe. Il permet d'estimer plusieurs grandeurs physiques, telles que les pertes d'énergie des ions lors de leurs collisions avec les atomes du matériau, leur profondeur moyenne de pénétration (R_p), le profil d'endommagement, ainsi que la densité des défauts lacunaires générés.

Ce logiciel est largement utilisé dans les domaines de la science des matériaux, de la microélectronique et d'autres disciplines pour une évaluation rapide des effets de l'irradiation ionique. Il s'appuie sur plusieurs modèles de calcul :

- Une méthode classique « Ion distribution and quick calculation of damages »[10]

- Une méthode « Detailed calculation with full damage cascades » [10], dans laquelle chaque atome déplacé par l'ion incident, par un atome primaire (PKA : primary knock-on atom), ou par un autre atome déplacé, est pris en considération. Cette approche permet d'obtenir une distribution des lacunes plus réaliste.

Cependant, il convient de noter que les modèles utilisés dans SRIM ne prennent pas en compte les effets thermiques ni les phénomènes de recombinaison (lacunes et interstitiels) susceptibles d'avoir lieu, contrairement à d'autres codes tels que Geant4 [11] (section 2.2.2) ou Dynamique Moléculaire (MD).

Dans le cadre de notre travail de thèse, SRIM est utilisé pour évaluer la profondeur de pénétration projetée R_p (Projected Range), mais essentiellement le nombre de déplacements par atome (dpa).

Le dpa représente le nombre moyen de déplacements d'atomes cibles par atome du matériau, induits par les dommages radiatifs. Dans SRIM, cette valeur peut être estimée à partir du nombre de lacunes par atome et par angström ($V/\text{atome } \text{\AA}$), qu'on peut considérer ici comme ν , obtenu via la simulation. Pour calculer les dpa en fonction de la dose d'implantation Φ (en ion.cm^{-2}) et de la densité atomique N (en atoms.cm^{-3}), on utilise la formule [12] [13]:

$$dpa = \frac{\Phi \times \nu}{N}$$

Le Tableau 2.1 présente les énergies de déplacements des atomes dans le SiC, le diamant ainsi que le GaN utilisées pour le calcul des dpa. Les densités atomiques représentent celles calculées par SRIM.

Tableau 2.1 : densité atomique calculée par SRIM des matériaux utilisés.

Échantillons	SiC	Diamant	GaN
Densité atomique (atomes/cm ³)	$9,641 \times 10^{22}$	$17,64 \times 10^{22}$	$8,846 \times 10^{22}$
Energie de déplacement (eV)	Si = 35 C = 21	C = 35 [14] [15]	Ga = 25–73,4 N = 28–32,4

2.2.2 GEometry ANd Tracking version 4 (GEANT4)

GEANT4 est un outil de simulation Monte Carlo développé en langage C++ par une collaboration internationale sous la coordination du CERN. Elle a pour objectif de fournir des outils constamment mis à jour pour la modélisation précise du transport et des interactions des particules dans la matière. GEANT4 couvre un large éventail d'énergies (du keV aux TeV) et intègre un ensemble complet de processus physiques (électromagnétiques, hadroniques, optiques, etc.). L'un de ses atouts majeurs réside dans sa capacité à décrire des géométries complexes, à intégrer des champs magnétiques et électriques, et à assurer le suivi détaillé des

trajectoires des particules primaires et secondaires. Il est largement utilisé dans divers domaines scientifiques et technologiques, notamment la physique nucléaire et des particules, la physique médicale, la physique des matériaux, les sciences spatiales et les applications industrielles [16].

2.2.2.1 Structure générale

La structure globale du code GEANT4 est illustrée sur la Figure 2.1. Elle est constituée d'un ensemble de classes, chacune décrivant des composants fondamentaux nécessaires à l'architecture du logiciel.

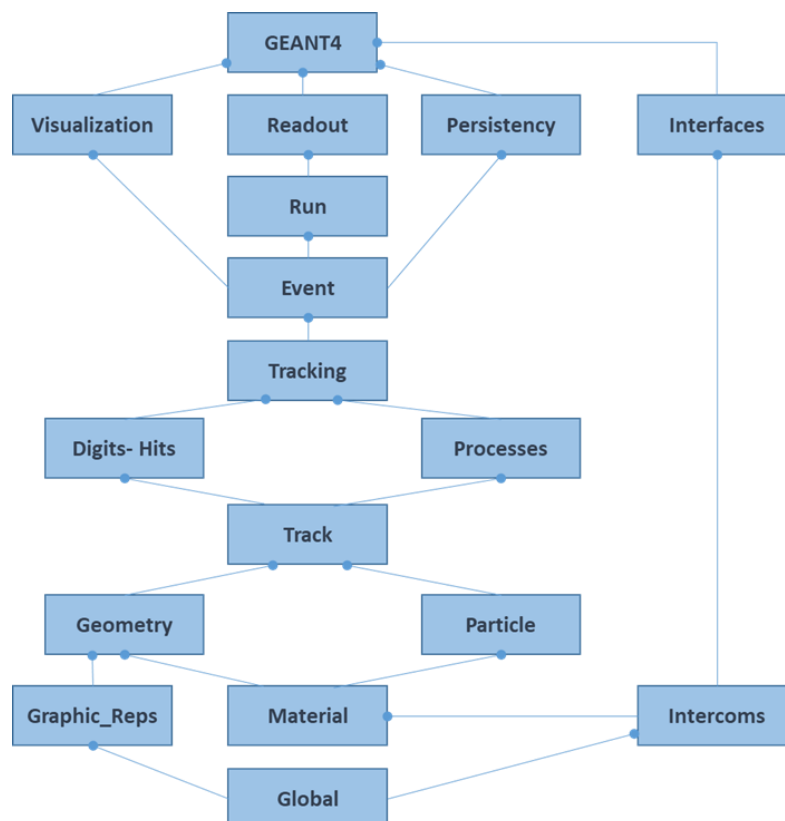


Figure 2.1 : Structure globale du code GEANT4 : catégories de classes C++ de GEANT4. Les catégories situées en bas du diagramme sont utilisées par pratiquement toutes les catégories supérieures et constituent la base de la boîte à outils [16].

L'architecture de GEANT4 repose sur des modules fondamentaux dédiés à la gestion des constantes physiques, des unités, des matériaux, des particules et de la géométrie, qui permettent de définir avec précision l'environnement simulé. Sur cette base s'organisent les catégories responsables du déroulement de la simulation : le module **Run**, qui gère les collections d'événements partageant les mêmes conditions expérimentales (faisceau, géométrie du détecteur) ; **Event**, chargé de la gestion des événements et de leurs pistes associées ; **Tracking**, qui coordonne l'action des différents processus physiques, pilote l'évolution des particules et fournit les informations nécessaires aux volumes sensibles (hits, digitization) ; et enfin **Track**, relatif au suivi détaillé des trajectoires et interactions.

individuelles. GEANT4 intègre également des fonctionnalités transversales offrant la visualisation des géométries et des trajectoires, la persistance des données (sauvegarde, export) ainsi qu'une interface utilisateur flexible pour le pilotage et la personnalisation des simulations. Les détails complets des classes et de leurs interactions sont disponibles dans le manuel de référence de l'outil [5], [16].

2.2.2.2 Objectif de GEANT4 dans notre travail

Dans notre étude, nous avons simulé un détecteur Cherenkov, reposant sur l'utilisation de plusieurs modules du toolkit, notamment ceux liés à la géométrie, aux matériaux utilisés, aux processus optiques et à la détection. Ce type de détecteur permet d'identifier les particules en fonction de leur vitesse, grâce à l'émission et à la détection de photons Cherenkov (voir Chapitre 1).

Les classes les plus importante utilisées dans ce travail sont :

- G4OpticalPhoton qui pilote la détection des photons, les photons se propagent en tenant compte des réflexions
- G4OpBoundaryProcess qui tient compte des réflexions que les photons subissent.
- G4OpAbsorption pour les mécanismes d'absorption,
- G4OpRayleigh, tient compte de la diffusion Rayleigh.
- Le volume G4VSensitiveDetector pour collecter les informations

La mise en œuvre de cette simulation repose sur plusieurs étapes clés :

- Définition de la géométrie : une cible de $1 \times 1 \times 0.3 \text{ cm}^3$ de volume, composé de GaN avec un indice de réfraction $n = f(\lambda)$ [17] a été utilisé. Tout comme SRIM, GEANT4 considère une structure amorphe. Cependant, des améliorations récentes prenant en compte la structure cristalline ont été réalisées au FRIB (MSU) par Hank Thurston. Plusieurs configurations ont été utilisées : une cible monolithique d'une épaisseur de 300 μm , et une cible multicouche segmentée d'une épaisseur totale d'1 cm.
- Faisceau incident : Ici mono-énergétique et ponctuel. Plusieurs particules sont émises (^{53}Ca , ^{52}Ca , ...) avec des énergies de 180 MeV/n.
- Processus d'interaction : il englobe le nombre des photons émis par effet Cherenkov émis, par la scintillation, le nombre d'interactions due à l'absorption optique ainsi que le nombre des interactions des photons entre les interfaces. Ce processus utilise G4Cerenkov dans PhysicsList pour les ions, afin de simuler l'émission Cherenkov.
- Analyse de donnée : les informations récoltées correspondent au nombre de photons obtenus durant le processus d'interaction.

Ces étapes sont résumées dans l'organigramme présenté sur la Figure 2.2.

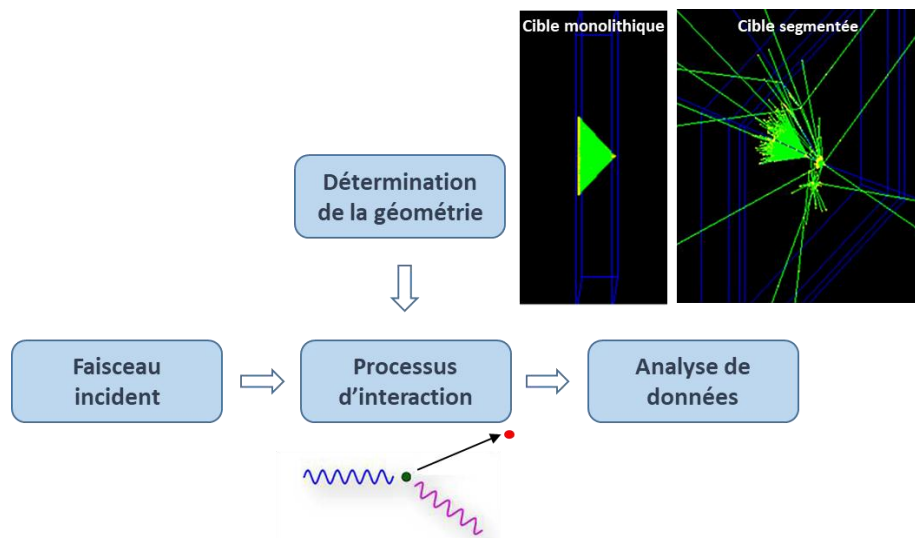


Figure 2.2 : Différentes classes qui interviennent dans la simulation GEANT4 (adaptée de [18]).

2.2.3 Rapid Object-Oriented Technology (ROOT)

Le logiciel ROOT est un logiciel en libre accès développé par le CERN, conçu pour l'analyse, la visualisation et le stockage de grandes quantités de données issues des expériences de physique des hautes énergies. Bien qu'il soit souvent utilisé en complément de GEANT4, ROOT peut également être exploité de manière autonome. Il offre une infrastructure complète pour le traitement mathématique avancé, la modélisation, l'analyse variée, ainsi que la gestion et la visualisation des données [19].

Cet outil a été utilisé pour l'analyse des données pour nos simulations (Chapitre 5).

2.3 Conditions d'irradiation

Dans le cadre de notre travail, plusieurs irradiations ont été effectuées sur les échantillons décrits dans la section 2.1, en utilisant différentes particules accélérées par divers accélérateurs et différentes cinétiques. Les objectifs de ces irradiations sont d'analyser les effets induits par les particules énergétiques sur les matériaux à large bande interdite. Cette section se focalise sur la description des lignes d'irradiation ainsi que sur les conditions utilisées pour chaque irradiation.

2.3.1 Le Pelletron au CEMHTI (CNRS, Orléans)

2.3.1.1 Le dispositif expérimental

Situé au laboratoire des Conditions Extrêmes et Matériaux : Haute Température et Irradiation (CEMHTI) du CNRS à Orléans, le Pelletron est un accélérateur électrostatique de type tandem,

permettant de produire et d'accélérer quatre types d'ions : les protons, les deutons, l'hélium 3 et l'hélium 4, avec des énergies allant de 300 keV à 3 MeV. Ce dispositif est particulièrement adapté aux études d'implantation ionique et de modification structurale des matériaux à l'échelle microscopique. Le Tableau 2.2 résume quelques-unes de ses caractéristiques principales.

Tableau 2.2 : Performances du Pelletron.

Ions	Energie	Résolution en énergie	Taille du faisceau	Courant minimum	Courant maximum	Flux
	(MeV)	(keV)	(mm)	(nA)	(μ A)	(at./cm ² /s)
H ⁺ , D ⁺ , ³ He ⁺ , ⁴ He ⁺	0,3–3	0,3	0,03–10	3	50	10 ⁹ – 2 × 10 ¹²

La Figure 2.3 montre les différentes parties qui composent le Pelletron à savoir : une source d'ions et son système d'extraction, un tube d'accélération, un analyseur de masse, un système de focalisation et de réglage du faisceau, un aimant d'aiguillage, ainsi que les quatre voies de transport du faisceau vers la chambre d'implantation.

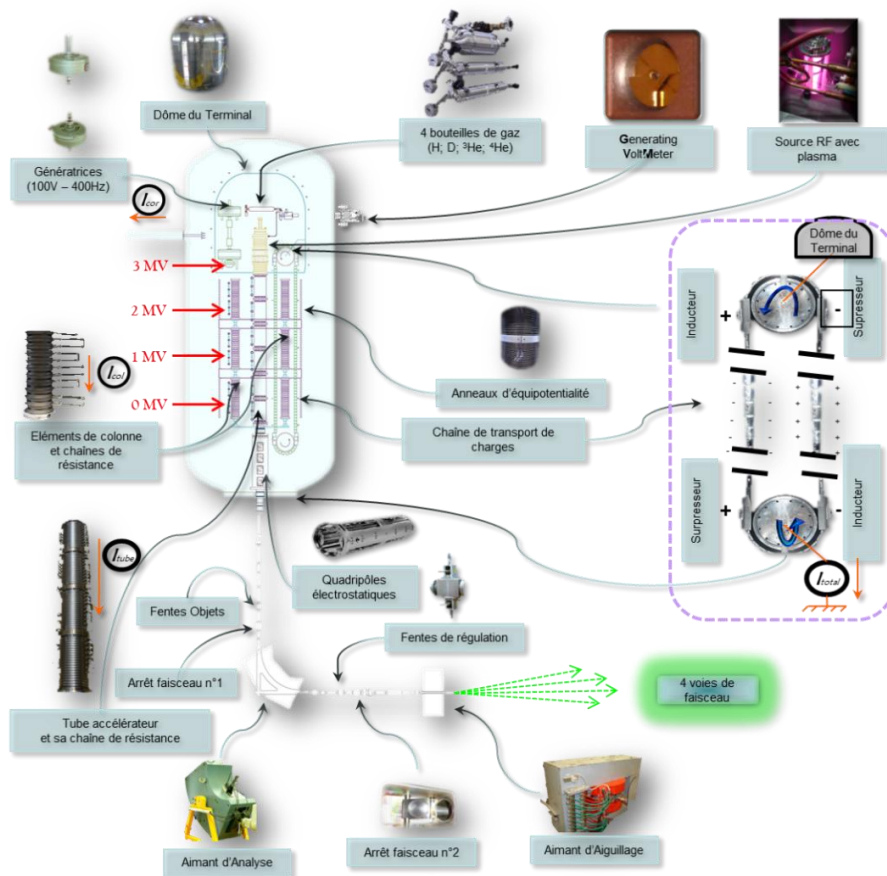


Figure 2.3 : Accélérateur Pelletron 3 MV du CEMHTI-Orléans [20].

- **La source d'ions**

Le Pelletron dispose d'une source de radiofréquence (RF) qui produit les ions à partir d'un gaz (hydrogène dans notre cas). Ce gaz est ionisé par la source RF afin de créer un plasma, à partir duquel les ions H^+ sont extraits de la chambre d'ionisation. Avant leur accélération, les ions traversent deux lentilles : la lentille de Wein qui va sélectionner les ions désirés en fonction de leur rapport masse/charge, et la lentille de Einzel qui sert à focaliser le faisceau avant son passage dans le tube accélérateur.

- **Accélération et tri des ions**

Après leur extraction, les ions sont accélérés par un champ électrique vertical qui leur permet d'atteindre l'aimant d'analyse. Celui-ci dévie les ions d'un angle de 90° , permettant ainsi leur tri en fonction de leur énergie. Seuls les ions ayant l'énergie souhaitée sont sélectionnés et guidés vers la zone d'aiguillage à travers une zone de régulation pour une implantation homogène.

- **Chambre d'implantation**

Avant d'atteindre la cible, les ions sont orientés vers la ligne d'implantation à l'aide d'un aimant d'aiguillage. Des réglages précis de la densité du faisceau et de l'intensité du courant sont effectués avant le début d'implantation. Un système de balayage du faisceau est utilisé pour optimiser l'uniformité de l'implantation, avec trois modes : le mode centre qui permet de centrer la totalité du faisceau sur l'échantillon, le mode Lissajous qui permet d'avoir une surface d'implantation homogène comme montré sur la Figure 2.4 et enfin le mode contour pour délimiter la zone à planter, garantissant une couverture complète de l'échantillon.

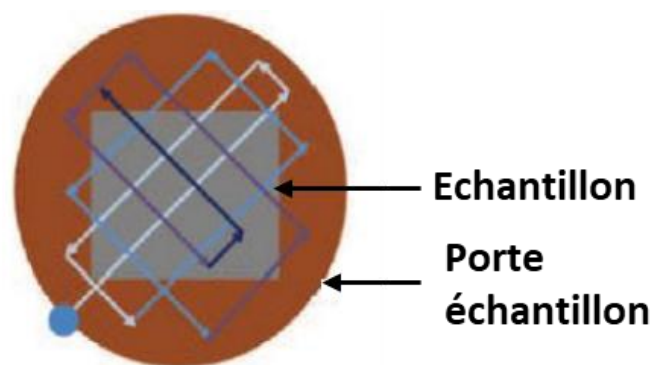


Figure 2.4 : Balayage Lissajous utilisé pour les implantations au Pelletron [21].

L'échantillon est placé sur un porte-échantillon qui lui-même est fixé sur un embout placé perpendiculairement au faisceau d'ions incident. L'embout d'irradiation contient une cage de Faraday qui est reliée à un intégrateur de charge permettant une mesure précise du courant

total sur le porte-échantillon. Ce courant est utilisé pour déterminer la fluence d'implantation, notée D selon la relation suivante :

$$D = \frac{1}{qS} \int_0^t I. dt$$

Où I , est le courant d'implantation, S la surface implantée et q la charge élémentaire.

2.3.1.2 Conditions d'implantation

Les échantillons sont placés sur un porte-échantillon de $4 \times 4 \text{ cm}^2$, sous vide à une pression de $4 \times 10^{-5} \text{ mbar}$. Dans le cadre de notre travail, l'hydrogène a été implanté avec une énergie de 2 MeV, selon deux fluences distinctes : $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$. Le courant d'implantation est d'environ $8 \mu\text{A}$, et le faisceau couvre une surface de $5 \times 5 \text{ mm}^2$. Le temps d'implantation a été calculé selon l'équation de la fluence et vaut 140 s (soit moins de 5 minutes) pour la fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$, et 1969 s (environ 32 minutes) pour la fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$. Les implantations ont été réalisées avec un système de refroidissement par eau, permettant de maintenir une température basse au niveau du porte-échantillon. Cette précaution vise à éviter les effets de recuit dynamique susceptibles d'altérer les propriétés des matériaux pendant l'implantation.

2.3.2 Le Grand Accélérateur National d'Ions Lourds (GANIL)

2.3.2.1 Dispositif expérimental

Situé à Caen, au nord de la France, le GANIL est un accélérateur de particules capable de produire des faisceaux d'ions allant du carbone à l'uranium. Ces faisceaux sont générés à partir de sources ECR (Electronic Cyclotronic Resonance)[22] [23], qui permettent l'ionisation des gaz pour produire des ions à quelques keV en sortie de source. Les ions sont ensuite pré-accélérés à l'aide de deux cyclotrons injecteurs (C01 ou C02) avant d'être injectés dans le premier cyclotron à secteurs séparés (CSS1). Pour augmenter leur état de charge, les ions traversent une feuille d'épluchage, qui permet d'arracher des électrons. Ils sont ensuite dirigés vers le second cyclotron (CSS2, identique au CSS1), permettant d'atteindre des énergies maximales de 95 MeV/n pour le carbone et de 24 MeV/n pour l'uranium. En sortie de CSS1 et CSS2, les faisceaux sont acheminés vers les différentes salles expérimentales, en fonction de l'énergie souhaitée.

Les Figure 2.5a et Figure 2.5b illustrent respectivement l'agencement des lignes du GANIL et la salle G4, dédiée initialement aux irradiations industrielles, où nos irradiations ont été réalisées.

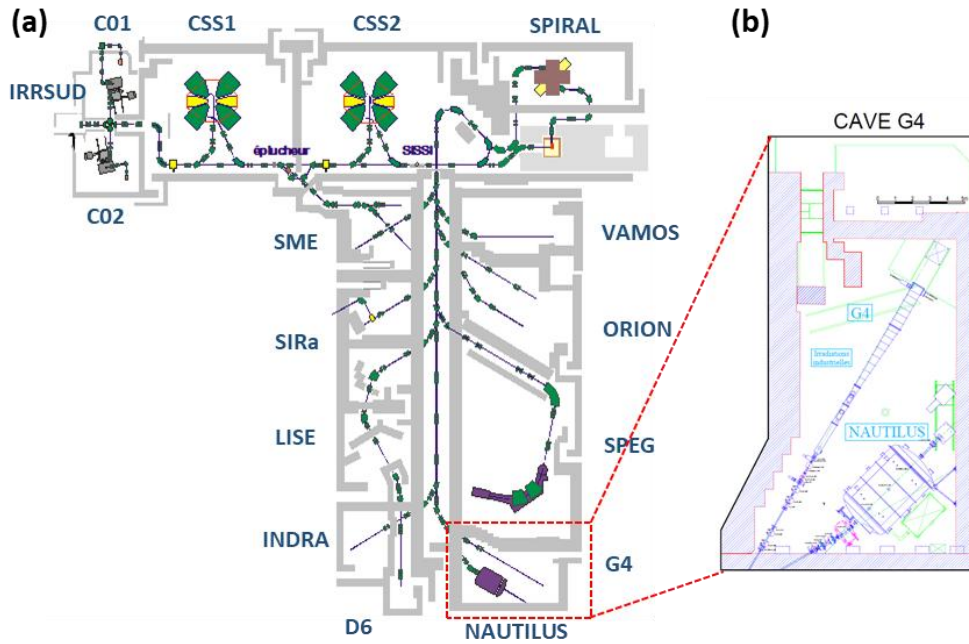


Figure 2.5 : (a) Schéma des lignes expérimentales du GANIL, (b) la salle G4 utilisée pour nos irradiations [23].

2.3.2.2 Conditions d'irradiation

Afin d'irradier des composants et systèmes électroniques, la salle G4 est équipée d'un porte-échantillon en plexiglass ou Lexan qui est installé sur un cadre amovible comme est représenté sur la Figure 2.6a. L'irradiation s'effectue dans l'air, séparé par une fenêtre en acier inoxydable de $10\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. Le faisceau possède une taille de $2 \times 2\ \text{cm}^2$, avec un flux maximal de $3,5 \times 10^7\ \text{pps}$ (Figure 2.6b).

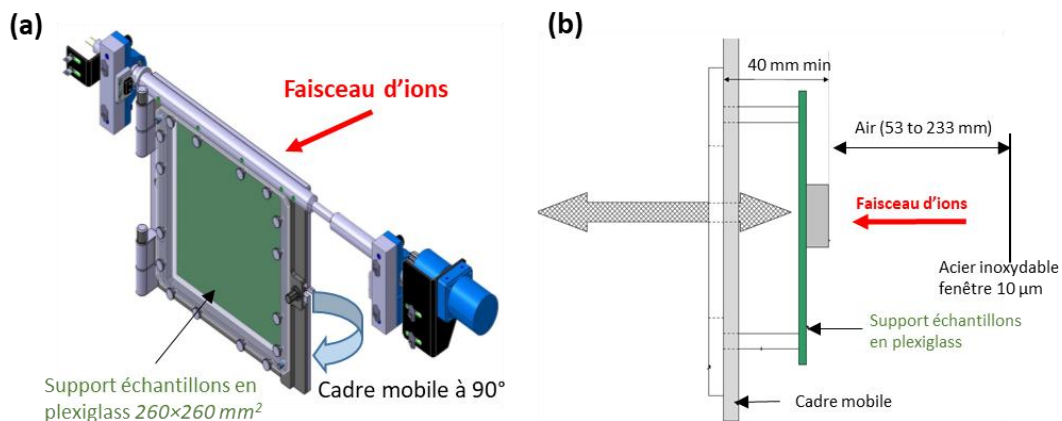


Figure 2.6 : (a) Vue du cadre mobile, (b) schéma du dispositif d'irradiation montrant la configuration de l'échantillon exposé au faisceau ionique.

Lors de notre expérience, les échantillons ont été fixés sur des supports en PEEK, eux-mêmes vissés sur la plaque de Lexan. Les Figure 2.7a et b montrent le montage expérimental avec la porte fermée et ouverte.

Des ions carbone (^{12}C) ont été utilisés pour irradier deux échantillons (SiC et GaN plan c). Deux irradiations ont été réalisées : la première avec une énergie de 95 MeV/n et une fluence de $1,4 \times 10^{11}$ p/cm², la seconde avec une énergie réduite à 85 MeV/n, obtenue grâce à un dégradeur constitué d'un film d'aluminium de 5 mm d'épaisseur, placé après la sortie du faisceau (voir Figure 2.6b).

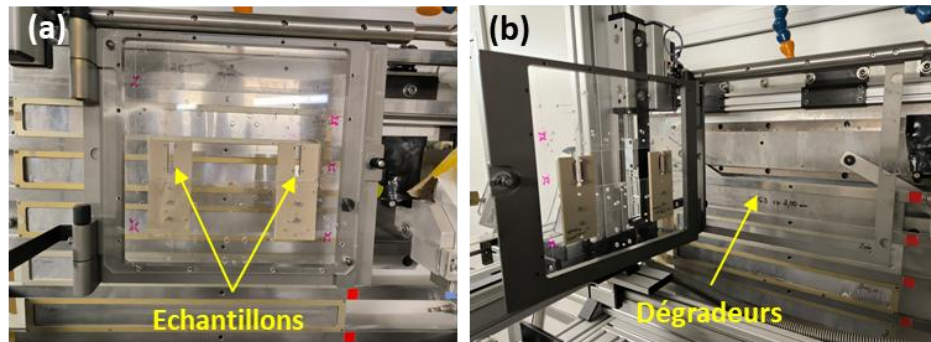


Figure 2.7 : (a) Port-échantillon placé sur le cadre mobile en plexiglass, (b) cadre mobile porte ouverte, montrant la feuille d'aluminium utilisée comme dégradeur.

La position du faisceau sur les échantillons a été réglée à l'aide de deux lasers, un pour la translation horizontale (position horizontale) et un autre pour la translation verticale. Ce système permet de passer d'un échantillon à l'autre lors du changement d'énergie, sans avoir à accéder physiquement à la salle expérimentale pendant l'irradiation. Une webcam a été placée en face du dispositif dans le but d'apercevoir l'effet Cherenkov.

2.3.3 La Facility for Rare Isotope Beam (FRIB)

Le FRIB (Facility for Rare Isotopes Beam) [24] est un laboratoire américain situé au sein de l'université de l'état du Michigan (Michigan State University). Il abrite un accélérateur linéaire d'ions lourds ou LINAC (LINear ACcelerator), l'un des plus puissants au monde, dont la structure évoque la forme d'un trombone (Figure 2.8) [25]. Depuis son entrée en service en mai 2022, le FRIB a pour mission principale d'explorer les propriétés des isotopes rares afin de mieux comprendre la physique nucléaire, l'astrophysique nucléaire, les interactions fondamentales, ainsi que de développer des applications pour la société (médecine, sécurité et industrie). Alors que 2000 isotopes ont été étudiés au cours du siècle dernier, le FRIB vise à porter ce nombre à 5000 isotopes. L'un des objectifs actuels du laboratoire est d'augmenter l'énergie des particules accélérées afin d'élargir le spectre des isotopes rares produits. Son précurseur, le NSCL (National Superconducting Cyclotron Laboratory) [26], permettait d'atteindre des énergies allant jusqu'à 100 MeV/n. Grâce au FRIB, ces énergies ont doublé à 200 MeV/n, avec une ambition d'atteindre une énergie de 400 MeV/n [27].

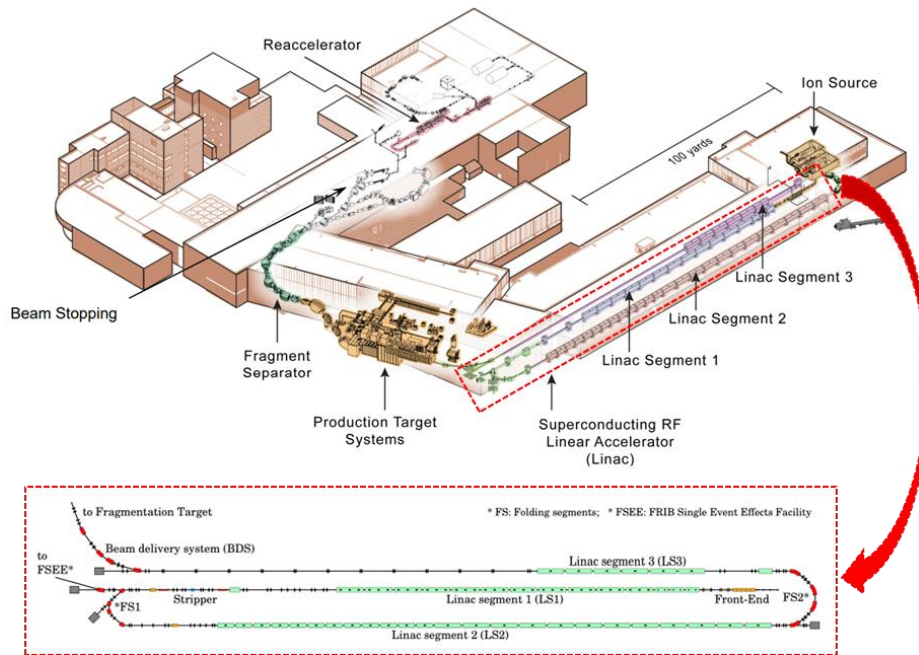


Figure 2.8 : Schéma du dispositif de FRIB avec le linac en bas de l'image [28].

Les faisceaux d'ions primaires sont produits dans une source d'ions à résonance cyclotronique électronique (ECR : Electron Cyclotron Resonance), où l'élément chimique désiré est injecté avant d'être accéléré par le LINAC (visible en bas dans la Figure 2.8). L'installation est conçue pour atteindre une puissance de faisceau maximale de 400 kW sur la cible, avec des faisceaux allant de l'hydrogène (^1H) à l'uranium 238 (^{238}U), à des énergies supérieures à 200 MeV/n, permettant ainsi la création de milliers de nouveaux isotopes [29].

Une fois accéléré, le faisceau est dirigé vers le système de production de cibles, représenté en jaune au centre de la Figure 2.8, qui est composé de disques de béryllium (^9Be), d'une épaisseur totale de 3,811 mm. Lors de la collision entre le faisceau et la cible, deux types de processus nucléaires sans suite génèrent une grande variété de noyaux : une fragmentation (avec l'élimination d'un ou plusieurs nucléons) et du « pick-up » (avec l'ajout d'un ou plusieurs nucléons). Ces derniers sont ensuite acheminés vers le séparateur avancé d'isotopes rares à plusieurs étages ARIS (Advanced Rare Isotope Separator). Le processus de séparation commence par un pré-séparateur, qui dévie verticalement le faisceau pour une première purification. Une compression en moment est appliquée afin de réduire la dispersion du faisceau pour sélectionner le faisceau d'isotopes rares d'intérêt [30]. Des fentes de sélection sont également disposées le long de la ligne pour affiner la purification.

Enfin, les noyaux sélectionnés sont dirigés vers les salles expérimentales ou vers le réaccélérateur (REA) pour des études plus poussées à basse énergie.

Le processus de décroissance des ions après leur interaction avec la cible implique la perte de protons ou de neutrons, selon la réaction suivante : $NX(-1p) \rightarrow (N-1)Y \rightarrow (N-2)Y + n$. Avec p et n , représentant un proton et un neutron respectivement.

2.3.3.1 Dispositif expérimental

Des irradiations ont été réalisées sur le GaN plan-c et le SiC non dopé dans la salle expérimentale S2, où est installé le dispositif de la Collaboration MoNA. Ce dernier est constitué de trois parties essentielles : un dipôle magnétique (Sweeper magnet), une suite de détecteurs de particules chargées appelée aussi Sweeper detectors, et un détecteur de neutrons appelé « MoNA-LISA ».

2.3.3.1.1 Le dipôle magnétique (Sweeper magnet)

Le Sweeper magnet est un aimant dipolaire supraconducteur à large ouverture, caractérisé par un rayon de courbure d'environ 1 mètre et un angle de déviation de $43,3^\circ$ [31]. À la sortie de cet aimant, les fragments issus des réactions nucléaires, peuvent subir une décroissance par émission d'un ou plusieurs neutrons, conduisant à la formation de nouveaux isotopes ainsi que d'autres noyaux issus de cette décroissance.

En général, les fragments et les neutrons produits lors de la désintégration des noyaux exotiques émergent de la cible dans un cône focalisé vers l'avant. L'aimant Sweeper dévie les particules chargées hors de la trajectoire des neutrons, les orientant vers un ensemble de détecteurs de particules chargées. Les neutrons, quant à eux, continuent leur trajectoire le long de l'axe du faisceau, traversant une ouverture verticale de 14 cm, et atteignent les détecteurs de neutrons MoNA-LISA (Figure 2.9).

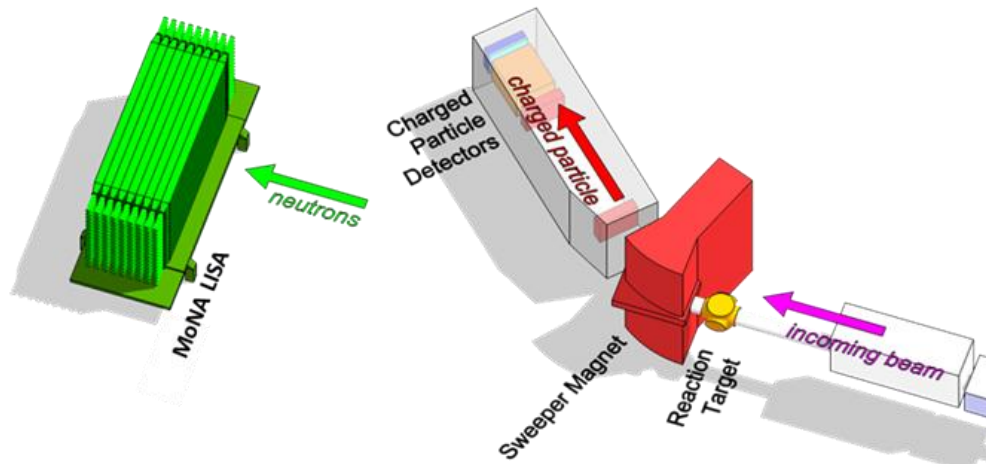


Figure 2.9 : La salle expérimentale S2 montrant : le dipôle magnétique (en rouge), le détecteur de neutrons MoNA LISA (en vert) et les détecteurs des particules chargées dans leur casemate (en gris). Crédit image : Thomas Baumann.

La rigidité du dipôle est décrite comme suit : $B\rho = \frac{mv}{q} = \frac{p}{q}$ avec m , v , p et q représentant la masse, la vitesse, l'impulsion ainsi que la charge de la particule. B représente l'intensité du champ magnétique (en Tesla, T), ρ le rayon de courbure de la trajectoire de la particule (en mètres, m).

2.3.3.1.2 Les détecteurs de particules chargées

Comme le montre la Figure 2.10, les détecteurs de particules chargées sont constitués de plusieurs éléments essentiels :

- **Deux Chambres à dérive (CRDC : cathode readout drift Chamber en rouge)**, espacées d'une distance $\Delta z_{CRDC2-CRDC1} = 1,54 \text{ m}$. Les CRDCs mesurent les positions x et y des particules traversant leur volume actif de $30 \times 30 \text{ cm}^2$. Les angles d'inclinaison de la trajectoire de la particule peuvent être déduit conséquemment :

$$\tan(\theta_x) = \frac{x_2 - x_1}{\Delta z_{CRDC2-CRDC1}} \text{ et } \tan(\theta_y) = \frac{y_2 - y_1}{\Delta z_{CRDC2-CRDC1}}$$

Ces informations (positions et angles) permettent de reconstruire la trajectoire de la particule au vertex de production.

- **La chambre à ionisation (en orange)** qui est un détecteur rempli de gaz P-10 (10% CH_4 and 90% Ar) comportant 16 plaques collectrices de charge segmentées selon la direction z . Elle permet de calculer l'énergie de dépôt de la particule selon la formule de Beth-Block [32]. Le volume actif du détecteur est de $40 \times 40 \times 65 \text{ cm}^3$.
- **Les scintillateurs (en bleu cyan)** qui sont utilisés pour le calcul du temps de vol des particules, l'un placé en amont de la cible et l'autre après la chambre à ionisation. Ils servent à mesurer le temps de vol (ToF) des particules sur une distance d'environ 5,5 m
- **Le détecteur Cherenkov (en bleu)** viendra se placer en aval du deuxième scintillateur. Il permettra d'identifier les particules en fonction de leur vitesse, grâce à l'émission des photons Cherenkov caractéristiques à chaque particule.

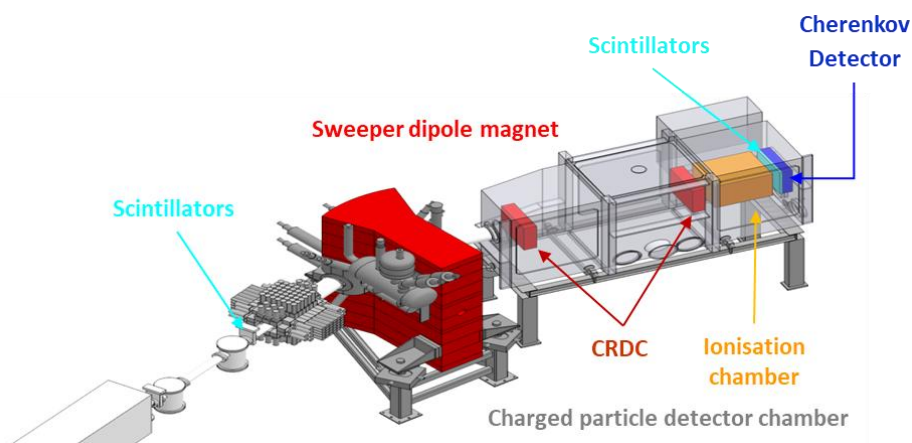


Figure 2.10 : Schéma montrant l'ensemble des détecteurs pour les particules chargées utilisés dans la salle expérimentale S2 à FRIB pour la séparation des isotopes rares : les scintillateurs (en cyan), le dipôle magnétique (en rouge vif), les chambres à dérives (en grenat), la chambre à ionisation (en orange) ainsi que la position probable du détecteur Cherenkov (en bleu). Crédit image : Thomas Baumann.

2.3.3.1.3 Détecteur de neutrons MoNA-LISA

Le Modular Neutron Array (MoNA) et Large-area multi-Institutional Scintillator Array (LISA) [33] [34] composent un système modulaire de détection de neutrons, conçu pour être installé et configuré selon les besoins expérimentaux. Il est constitué de 288 barres scintillatrices en plastique, soit 144 par module (MoNA et LISA), chacune mesurant 200 cm $\times$ 10 cm $\times$ 10 cm. Ces barres sont enveloppées d'un matériau réfléchissant pour limiter les pertes de photons, puis recouvertes d'une protection noire pour éviter toute interférence lumineuse externe. Les neutrons sont détectés lorsqu'ils interagissent avec les noyaux atomiques présents dans le matériau plastique. Cette interaction génère une scintillation qui est ensuite captée par des tubes photomultiplicateurs (PMTs) installés aux deux extrémités de chaque barre.

Chaque PMT fournit deux signaux [35]: un signal d'anode utilisé pour l'obtention des informations temporelles nécessaires à la reconstruction du quadri-moment du neutron, et un signal de dynode reflétant la charge collectée qui contribue à la sélection des événements neutroniques. La différence temporelle entre les signaux des PMTs permet de déterminer la position horizontale transverse (x) du point d'interaction du neutron dans la barre. La moyenne des deux temps est ainsi utilisée pour calculer le temps de vol (ToF) du neutron, depuis sa position dans la cible jusqu'au point d'interaction dans le détecteur.

2.3.3.2 Conditions d'irradiations

La Figure 2.11 montre le dispositif utilisé pour l'irradiation des échantillons dans la casemate des détecteurs pour les particules chargées de la salle expérimentale S2. Le porte-échantillons en FR4 sur son support en aluminium derrière le second scintillateur contient l'échantillon compressé entre 2 lamelles.

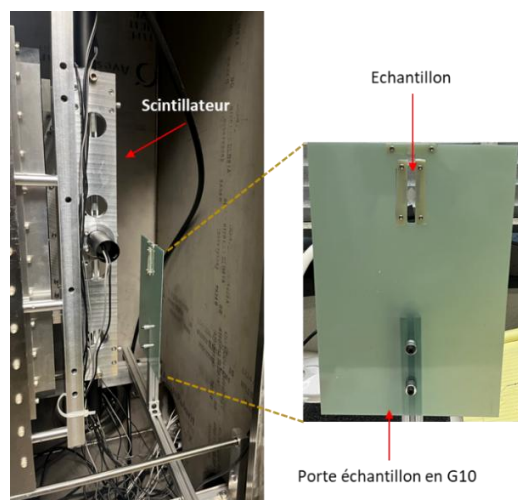


Figure 2.11 : Schéma du dispositif expérimental pour l'irradiation des échantillons de GaN plan c SPS derrière le second scintillateur dans la salle expérimentale à FRIB.

Durant ce travail de thèse, plusieurs irradiations ont été réalisées.

- Une première irradiation au ^{17}C avec une énergie de 100 MeV/nucléon. Ces ions proviennent d'un faisceau primaire de ^{18}O accéléré avec une même énergie de 100 MeV/n après son interaction dans une cible de béryllium
- Une deuxième série d'irradiations a été faite, reproduisant ainsi les conditions réelles d'exposition du détecteur. Cela a permis d'évaluer de manière comparative le comportement des matériaux soumis à différents régimes d'irradiation. Les ions correspondant utilisés proviennent de la fragmentation d'un faisceau primaire de ^{48}Ca ayant une énergie de 215 MeV/n suivie de réactions secondaires :
 - ^{36}Mg , ^{35}Mg , ^{34}Mg , ^{33}Na , ^{32}Na , ^{31}Na , ^{37}Al sur une cible en béryllium (Be). Ces réactions génèrent un ensemble d'ions secondaires, dont l'énergie est de 215 MeV/nucléon, avec un flux d'environ 100 particules par seconde (pps).
 - ^{40}Si , ^{41}Si , ^{37}Al , ^{38}Al , ^{39}Al , ^{36}Mg , ^{37}Mg sur du béryllium avec la même énergie incidente de 215 MeV/n. Le nombre total de particules envoyées dans ces conditions est de 719 pps.

Toutefois il est important de préciser que selon les simulations réalisées au FRIB pour la collaboration MoNA, le ^{37}Mg est considéré comme la particule d'intérêt dominante. Par conséquent, nous nous sommes basés sur ce principe dans ce travail de thèse.

2.4 Techniques de caractérisations

2.4.1 La spectroscopie UV-Visible

2.4.1.1 Principe

La spectroscopie UV-Visible est une technique optique qui permet d'analyser l'interaction entre la lumière et la matière dans le domaine spectral allant de l'ultraviolet à la lumière visible (200-900 nm). Lorsqu'un matériau absorbe des photons dans cette gamme de longueurs d'onde, les électrons peuvent être excités de leur état fondamental vers un état d'énergie supérieur.

Selon la configuration du spectromètre utilisé, il est possible de mesurer soit l'absorbance, soit la transmittance de l'échantillon.

La transmittance (T) est définie comme le rapport entre l'intensité de la lumière transmise (I) et l'intensité incidente (I_0)

$$T = \frac{I}{I_0}$$

L'absorbance (A) est liée à la transmittance par la loi :

$$A = -\log T$$

Par ailleurs, avec les résultats de la transmittance il est possible de calculer le coefficient d'absorbance dans chaque matériau et d'évaluer ainsi la profondeur de pénétration en fonction des longueurs d'onde.

2.4.1.2 Dispositif expérimental

Le spectromètre utilisé dans le cadre de ce travail est un spectrophotomètre Shimadzu UV-2600, couplé à une sphère intégrante permettant la mesure de la réflectance diffuse sur des matériaux solides, diffusants ou semi-transparents (Figure 2.12). Il fonctionne selon une configuration optique à double faisceau, dans laquelle le faisceau incident est divisé pour passer simultanément dans l'échantillon et dans une référence. Cela permet de compenser en temps réel les fluctuations de la source lumineuse, assurant ainsi une meilleure précision des mesures. Ce dispositif est composé de deux sources de lumière se relaient afin de couvrir l'ensemble du spectre UV-visible : une lampe halogène pour le domaine visible et une lampe au deutérium pour le domaine ultraviolet. La lumière est dirigée vers la sphère intégrante à l'aide de trois miroirs : les miroirs 1 et 2 acheminent la lumière du côté de l'échantillon, tandis que le miroir 3 dirige la lumière vers la référence.

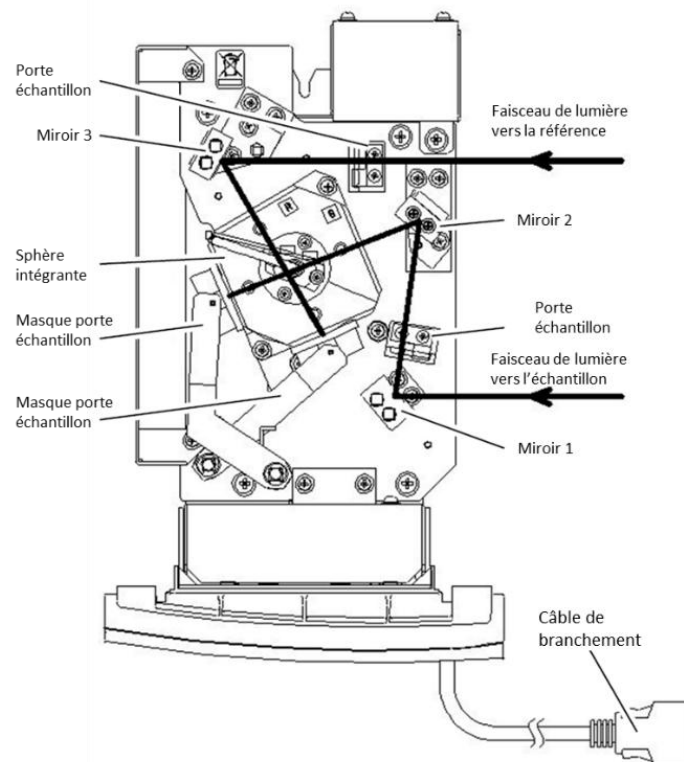


Figure 2.12 : Schéma du chemin optique interne du spectromètre UV-visible UV-2600 donné par le constructeur [36].

2.4.2 La photoluminescence

2.4.2.1 Principe

La photoluminescence (PL) est une technique d'analyse optique non destructive permettant d'étudier les propriétés intrinsèques des matériaux, notamment les défauts cristallins, les impuretés et les états électroniques présents dans les semi-conducteurs. Son principe repose sur l'excitation du matériau par un faisceau laser dont l'énergie est supérieure ou égale à celle de la bande interdite du semi-conducteur. Cette excitation génère des paires d'électrons-trous. Lors de la relaxation du semi-conducteur vers son état fondamental, le matériau peut émettre des photons (processus radiatif) ou des phonons (processus non radiatif).

Le processus de relaxation radiative, permet d'obtenir des informations précieuses sur les défauts cristallins, la structure de bande et les états électroniques. La Figure 2.13 résume les différents mécanismes de recombinaison qu'il peut y avoir dans un semi-conducteur.

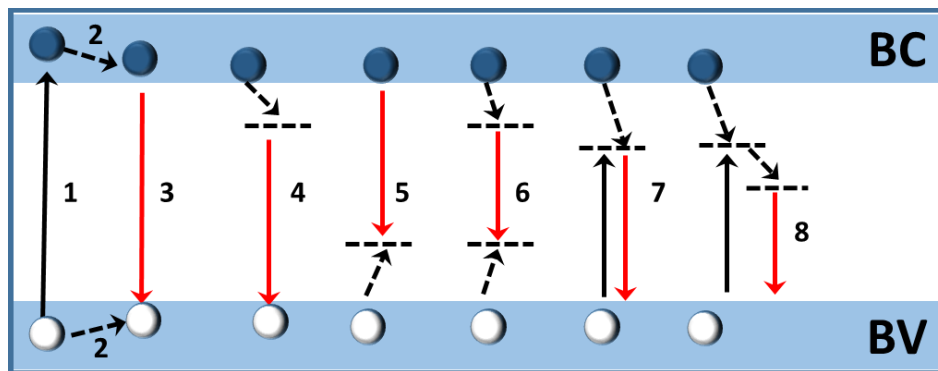


Figure 2.13 : Schéma représentant les différents mécanismes de recombinaison radiatifs possibles dans un semiconducteur où BV est la bande de valence et BC la bande de conduction. Figure adaptée de [37].

Les mécanismes suivants sont ainsi répertoriés :

- **La recombinaison bande à bande (3)** : elle se produit entre les porteurs libres situés dans les états extrêmes de la bande de conduction et de la bande de valence. Dans les semi-conducteurs à gap direct, cette transition est optiquement permise. Par contre, pour les SC à gap indirect comme le SiC, la conservation du vecteur d'onde impose l'intervention de phonons pour permettre la recombinaison.
- **La recombinaison impureté-bande (4 et 5)** : il s'agit d'une relaxation d'un électron ou d'un trou depuis une extrémité de bande vers un niveau de défaut localisé.
- **La recombinaison donneur-accepteur (DAP) (6)** : elle résulte de la recombinaison entre un trou piégé sur un site accepteur et un électron piégé sur un atome donneur. L'énergie du photon émis est donnée par :

$$h\nu = E_g - (E_D - E_A) + \frac{e^2}{4\pi\epsilon R}$$

Où, E_g est l'énergie du gap, E_D et E_A sont les énergies d'ionisation de donneur et d'accepteur respectivement, R est la distance entre les deux atomes ionisés et ϵ est la constante diélectrique.

- **La recombinaison par exciton libre (7)** : l'électron et le trou peuvent se lier par attraction Coulombienne pour former un exciton libre. L'énergie du photon émis est alors $E = E_g - E_{x,n}$ où $E_{x,n}$ est l'énergie de liaison de l'exciton.
- **La recombinaison par exciton lié (8)** : avant de se recombiner, les excitons libres peuvent être piégés dans des impuretés accepteurs ou donneurs ou isoélectriques formant ainsi des excitons liés « Bound Excitant » en anglais.

2.4.2.2 Dispositif expérimental

Les mesures de PL ont été réalisées à température ambiante à l'aide d'un microscope Raman Renishaw InVia Qontor. L'excitation du matériau a été assurée par un laser de 355 nm. La lumière diffusée a été collectée à l'aide d'un objectif UV 20× avec une ouverture numérique de 0,38. Elle a ensuite été dispersée à l'aide d'un réseau de diffraction de 2400 traits/mm, optimisé pour les mesures de photoluminescence. Les résolutions sont de 70 μm en profondeur (résolution axiale) et de 1,3 μm en surface (résolution latérale), déterminées à partir de mesures effectuées sur un échantillon de HOPG (Highly Oriented Pyrolytic Graphite).

2.4.3 La spectroscopie Raman

2.4.3.1 Principe

La spectroscopie Raman est une technique d'analyse optique non destructive permettant d'explorer les propriétés vibratoires des matériaux. Lorsqu'un matériau est irradié par une source monochromatique de fréquence ν_0 , la lumière peut être diffusée de deux manières comme illustré sur la Figure 2.14:

- Diffusion Rayleigh : la lumière diffusée conserve la même fréquence que celle du faisceau incident ($\nu = \nu_0$). Il s'agit d'une diffusion élastique, sans transfert d'énergie entre le photon et le matériau.
- Diffusion Raman : la lumière diffusée présente une fréquence différente, traduisant une diffusion inélastique. Cette différence de fréquence ($\nu_0 - \nu$) résulte de l'interaction des photons avec le réseau cristallin, impliquant la création ou l'absorption d'un phonon.

Deux types de décalages peuvent être observés :

- Décalage Stokes : lorsque le photon incident perd de l'énergie au profit du réseau cristallin (création d'un phonon), la fréquence du photon diffusé diminue de $h(\nu_0 - \nu)$.
- Décalage anti-Stokes : Lorsque le photon incident gagne de l'énergie en absorbant un phonon, sa fréquence augmente de $h(\nu_0 + \nu)$.

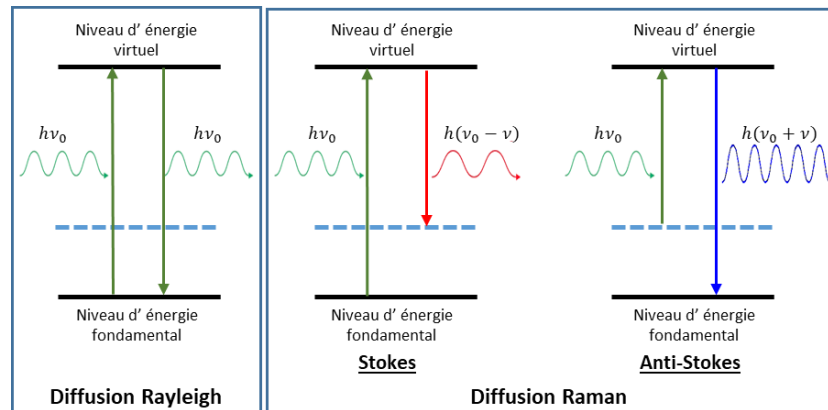


Figure 2.14 : Schématisation de la diffusion d'un photon dans la matière montrant la diffusion Rayleigh (élastique) et la diffusion Raman (inélastique). Figure adaptée de [36], [38].

L'analyse Raman consiste à étudier le mode vibrationnel en déterminant, son intensité, sa position spectrale (nombre d'onde), et sa largeur à mi-hauteur (Full width at half maximum : FWHM). L'intensité est généralement corrélée à la concentration d'une espèce, en particulier dans les matériaux opaques. La position spectrale peut être influencée par des contraintes mécaniques internes au matériau, et permet ainsi d'identifier des déformations ou des tensions via des calculs théoriques. La largeur des pics renseigne sur l'ordre cristallin : un monocristal non endommagé présente des modes de vibration fins, tandis qu'un élargissement de la FWHM indique une augmentation du désordre, pouvant aller jusqu'à la disparition des modes dans le cas d'une amorphisation.

Chaque matériau a une signature Raman bien spécifique, déterminée notamment par la symétrie de sa zone de Brillouin, ce qui se traduit par un nombre et une position bien définis de pics dans le spectre.

Dans les semi-conducteurs polaires, les porteurs de charge peuvent interagir avec le mode longitudinal optique (LO), donnant lieu à un mode couplé aux plasmons (LOPC : longitudinal optique plasmon coupling). Certaines études ont montré qu'il était possible d'évaluer la concentration des porteurs libres avec un dopage à $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ [39]. Ce mode est très sensible à la densité des porteurs [40]. Une augmentation de cette densité se traduit par l'élargissement de la largeur à mi-hauteur (FWHM) et par un shift vers les hauts nombres d'onde. Ceci est dû au fait que les fréquences des phonons ω_{LO} deviennent comparables à

celles des plasmons. La concentration des porteurs libres peut ainsi être déterminée à partir du mode LOPC en utilisant les modèles proposés par Nakashima *et al.* [41] et Chafai *et al.* [42].

2.4.3.2 Dispositif expérimental

Un spectromètre Raman Renishaw InVia Qontor, utilisant une source d'excitation de longueur d'onde $\lambda = 514,5 \text{ nm}$ en mode confocal, a été employé pour nos mesures. La lumière diffusée a été collectée à l'aide d'un objectif 100× avec une ouverture numérique (ON) de 0,85, qui correspond à un diamètre du spot laser d d'environ $0,7 \mu\text{m}$ ($d = 1,22\lambda/\text{ON}$). La puissance du laser a été évaluée à 9,4 mW, soit une densité de puissance de $2,13 \text{ kW/cm}^2$. Concernant la résolution axiale, elle a été évaluée à $3,6 \mu\text{m}$ grâce à une calibration sur un HOPG (Highly Oriented Pyrolytic Graphite). La lumière collectée a ensuite été dispersée à l'aide d'un réseau de diffraction de 1800 traits/mm.

Deux types d'analyses ont été réalisées à température ambiante :

- Une analyse sur la tranche (Figure 2.15a), effectuée depuis le bord des échantillons selon l'axe X, sur des matériaux pouvant être naturellement clivés, tels que le SiC et le GaN. Cette approche permet d'éviter les effets mécaniques ou thermiques induits par les techniques de découpage conventionnelles (telles que le laser, la scie à fil, etc.), susceptibles d'altérer l'analyse Raman. Il est à noter que l'obtention d'un clivage naturel peut parfois s'avérer extrêmement difficile, voire impossible comme pour le diamant monocristallin.
- Une analyse en profondeur (Figure 2.15b), réalisée à l'aide de la technique confocale en profondeur, qui consiste à déplacer la platine du spectromètre Raman selon l'axe Z. Cette méthode permet au faisceau laser de sonder progressivement les régions plus profondes de l'échantillon jusqu'à atteindre la zone Rp (Projected Range). Cette technique est couramment utilisée dans les structures multicouches pour obtenir des informations provenant des différentes couches [25] [43].

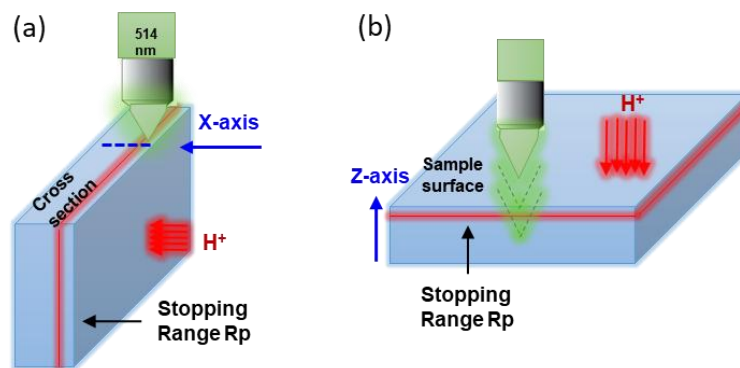


Figure 2.15 : Représentation schématique du faisceau laser micro-Raman en : **(a)** coupe transversale utilisée pour certains échantillons, **(b)** analyse de profil en profondeur réalisée sur des échantillons à différents plans focaux.

Enfin, des cartographies Raman ont aussi été obtenues en surface ou sur la tranche dans le but de détecter d'éventuelles traces d'irradiation à haute énergie, et d'évaluer leur impact sur la structure du matériau.

2.4.4 Spectroscopie d'annihilation des positons

Le positon e^+ , antiparticule de l'électron e^- , possède une charge et un moment opposés à ceux de l'électron. Théoriquement prédit par Dirac en 1930 [44] et physiquement détecté en 1932 [45]. L'annihilation des positons avec les électrons dans la matière a été étudiée en 1940. Il a été démontré que la conservation de l'énergie et du moment pendant cette annihilation pouvait être utilisée pour étudier les propriétés des solides.

La spectroscopie d'annihilation des positons (PAS pour positron annihilation spectroscopy en anglais) est une technique non destructive utilisée pour sonder les défauts lacunaires dans les matériaux. Cette technique repose sur deux propriétés des positons. : leur annihilation avec les électrons présents dans le matériau, et leur capacité à être piégés dans ces volumes libres comme des lacunes ou des dislocations.

Dans certains cas, un positon peut se lier à un électron pour former un positronium, un état quasi-atomique instable pouvant conduire à l'émission de deux ou trois photons. Plusieurs techniques d'analyse basées sur l'interaction des positons avec la matière ont été développées :

- Les techniques sensibles à la densité électronique, telles que la spectroscopie du temps de vie des positons (Positron Lifetime Spectroscopy). Elles renseignent sur la taille et la concentration des défauts dans les matériaux.
- Les techniques sensibles à la distribution du moment des électrons, comme la spectrométrie d'élargissement Doppler (DBS – Doppler Broadening Spectroscopy) et la corrélation angulaire de l'annihilation (ACAR – Angular Correlation of Annihilation Radiation). Elles permettent d'étudier la structure électronique fine et les défauts cristallins.

Dans notre cas nous nous utiliserons la spectroscopie d'élargissement Doppler pour déterminer la concentration des défauts créés par les différentes irradiations.

2.4.4.1 Dispositif expérimental

- Source des positons lents

Les positons lents utilisés en spectroscopie d'annihilation proviennent de la désintégration radioactive de certains isotopes, tels que le ^{22}Na , le ^{64}Cu , ou encore le ^{58}Co , etc. Dans notre cas, la source utilisée est le ^{22}Na qui est suivi d'une émission de photons γ d'une énergie de

540 keV. Le positon est dans ce cas obtenu suivant la réaction de décroissance suivante : $^{22}\text{Na} \rightarrow ^{22}\text{Ne} + \beta^+ + \nu_e + \gamma$, avec ν_e étant un neutrino.

Pour la caractérisation des échantillons, un accélérateur de positons lents du laboratoire CEMHTI a été utilisé. Cet accélérateur est capable de produire un faisceau de positons monoénergétiques allant de 0,5 à 25 keV. Le dispositif expérimental utilisé est présenté sur la Figure 2.16. Ce système comprend une source de ^{22}Na , dont les positons énergétiques sont obtenus suivant la réaction de décroissance suivante : $^{22}\text{Na} \rightarrow ^{22}\text{Ne} + \beta^+ + \nu_e + \gamma$ (avec ν_e étant un neutrino). Ces positons sont ensuite ralentis et thermalisés à une énergie de quelques eV par un modérateur en tungstène de 5 μm d'épaisseur. Une partie des positons émerge du modérateur avec une distribution énergétique centrée autour de 3 eV [46]. Un filtre énergétique est utilisé pour sélectionner les positons ayant la bonne énergie. Le faisceau ainsi filtré est ensuite guidé et accéléré vers l'échantillon à l'aide de champs magnétiques et électriques, permettant ainsi une analyse précise des défauts dans la matière.

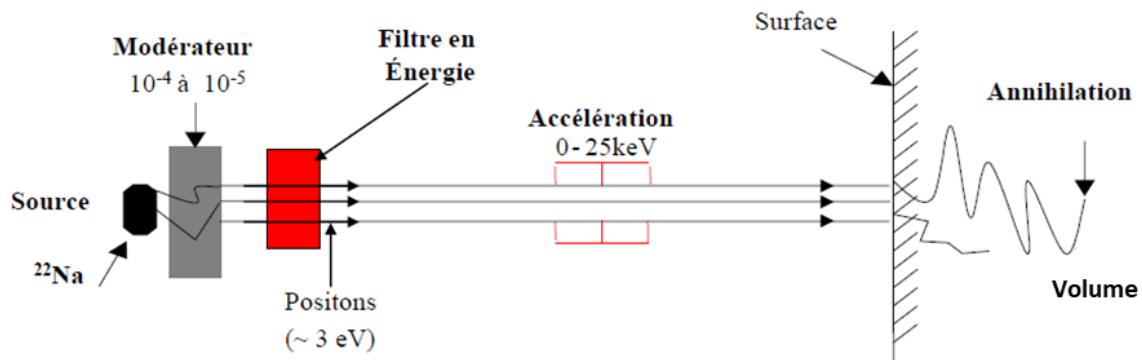


Figure 2.16 : Dispositif expérimental de l'accélérateur des positons lents du CEMHTI [47].

- **Implantation et diffusion des positons lents**

Le parcours des positons dans un matériau dépend à la fois de leur énergie initiale et des propriétés physiques du matériau cible (densité, potentiels coulombiens associés aux atomes, ...etc.). Ils subissent généralement deux phases successives : la thermalisation au cours de laquelle le positon perd progressivement son énergie cinétique jusqu'à son implantation, et la diffusion durant laquelle le positon se déplace dans le matériau jusqu'à son annihilation avec un électron ou un défaut. Dans le cas d'un positon mono-énergétique lent, le profil d'implantation suit une distribution de type Makhovienne décrite comme suit :

$$P(Z) = -\frac{d}{dz} \left(e^{-\left(\frac{Z}{Z_0}\right)^2} \right)$$

Z , étant la profondeur de pénétration des positons dans le matériau.

La profondeur moyenne d'arrêt des positons dépend du matériau. Elle est donnée par la relation : $\bar{Z} = 0,88Z_0 = AE^n$

A et n représentent une constante empirique et l'indice de réfraction qui dépendent du matériau cible respectivement.

Après implantation, les positons diffusent dans le matériau, guidés par les potentiels coulombiens en raison de leur charge positive. D'après la relation de Nernst-Einstein et l'approximation du temps de relaxation, le coefficient de diffusion du positon D_+ dans le réseau cristallin est donnée par :

$$D_+ = \frac{\mu_+}{e} k_B T = \frac{k_B}{m^*} \tau_{relaxation}$$

Avec μ_+ la mobilité du positon, k_B la constante de Boltzmann, T la température en kelvin, e la charge élémentaire de l'électron, m^* la masse effective du positon (avec la masse de l'électron au repos $m_0 = 1,3 \text{ à } 1,7 \times m^*$) et τ , le temps de relaxation après sa diffusion.

La longueur de diffusion dans le réseau (lattice) sans défauts est dite intrinsèque et est donnée par : $L_{eff}^+ = \sqrt{\tau_L D_+}$, τ_L correspond à la durée de vie du positon dans le réseau (bulk ou lattice) dans lequel il est soumis à un potentiel coulombien périodique. En présence de défauts, le potentiel coulombien périodique est modifié dans les zones de défauts dû à la création de puits de potentiel, ce qui peut réduire la longueur de diffusion du positon ainsi que son temps de vie [48]. Dans ce cas on parle de la longueur de diffusion effective qui s'exprime :

$$L_{eff}^+ = \sqrt{\frac{D_+}{K_d + \lambda_L}}$$

avec K_d le taux de piégeage des positons dans un type de défaut donné et λ_L ($\lambda_L = 1/\tau_L$) le taux d'annihilation dans le réseau (lattice)

Il est à noter que deux types de piégeage des positons peuvent se produire :

Le piégeage sur des défauts profonds, tels que les lacunes ou les bilacunes. Dans ce cas, le dépiégeage des positons est hautement improbable en raison de la forte liaison entre le positon et le défaut.

Le piégeage sur des défauts peu profonds, appelés *shallow traps*, comme les ions négatifs ou les dislocations. Ici, le dépiégeage reste possible, car l'énergie de liaison avec le défaut est plus faible.

2.4.4.2 Mesure de l'élargissement Doppler

La spectrométrie d'élargissement Doppler consiste à mesurer l'élargissement en énergie de la raie d'annihilation à 511 keV dû à l'effet Doppler. Cette technique fournit des informations sur la distribution des moments cinétiques des électrons impliqués dans l'annihilation, et donc

sur la microstructure électronique du matériau. Afin de quantifier les évolutions des spectres en fonction de la microstructure du matériau, deux paramètres sont extraits (Figure 2.17) :

- S (Shape en anglais) représente la fraction d'annihilation des positons avec les électrons de faible moment cinétique, ce qui correspond essentiellement à des électrons de valence. Ce paramètre est obtenu en intégrant l'aire du spectre située autour du pic Doppler central.
- W (Wing en anglais) représente la fraction d'annihilation des positons avec les électrons de fort moment cinétique, qui sont essentiellement des électrons de cœur. Le paramètre W correspond à la fraction des aires situées dans des domaines d'énergie γ à gauche et à droite du Doppler.

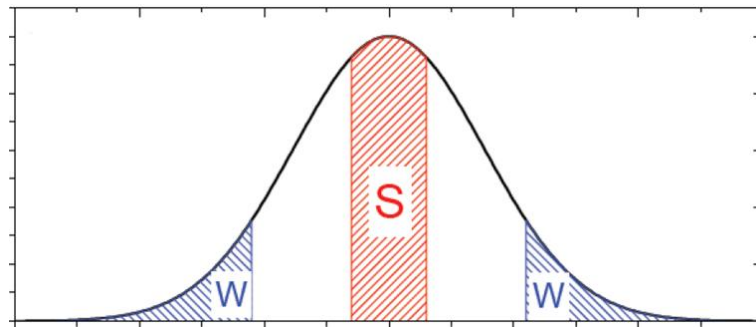


Figure 2.17 : Spectre d'élargissement Doppler et positionnement des paramètres S et W [49].

Lorsque les positons s'annihilent dans une distribution de pièges i , les valeurs mesurées de S et W sont les sommes des contributions de chaque type de piège notées S_i et W_i pondérées par la fraction d'annihilation f_i dans chaque type de piège.

$$S = \sum_i f_i S_i \text{ et } W = \sum_i f_i W_i \text{ avec } \sum_i f_i = 1$$

Les variations de S et W en fonction de l'énergie des positons permettent de sonder différentes profondeurs d'implantation dans le matériau, révélant ainsi des changements dans les caractéristiques d'annihilation. La représentation de la fraction d'annihilation des positons avec les électrons de faible moment en fonction de la fraction d'annihilation avec les électrons de forts moments $S(W)$ nous donne des informations relatives aux états d'annihilation dans le matériau. La présence de défauts lacunaires dans le solide va induire une augmentation du paramètre $S(E)$ et une diminution du paramètre $W(E)$.

- **Piégeage des positons**

Il est probable que le matériau soumis au faisceau de positons présente non pas un seul type de défaut, mais toute une variété. Les valeurs de S et W mesurées correspondent alors à:

$$S = f_L S_L + \sum_i^n f_i S_i$$

$$W = f_L W_L + \sum_i^n f_i W_i$$

S_i , W_i et F_i sont les caractéristiques d'annihilation et la fraction d'annihilation correspondantes à un défaut D_i , respectivement. S_L , W_L et f_L sont les caractéristiques et la fraction d'annihilation dans le réseau (lattice).

- **Modèle de piégeage avec un piège profond**

Ce modèle est considéré comme le plus simple des modèles de piégeage [50]. Après thermalisation, le positon peut s'annihiler directement dans le réseau avec un taux d'annihilation λ_L , ou alors avec un défaut profond (généralement des lacunes) avec un taux de piégeage k_V comme illustré sur la Figure 2.18.

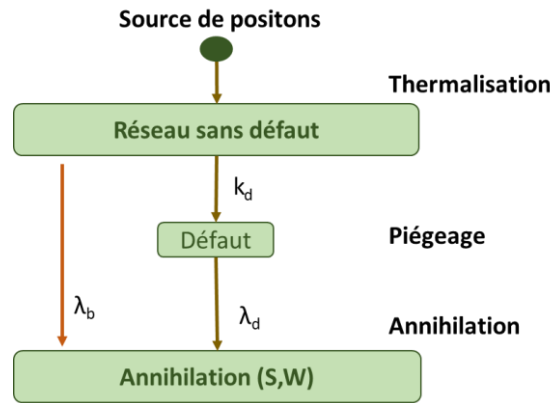


Figure 2.18 : Schéma d'un modèle de piégeage à un défaut. Adaptée de [38].

Dans ce cas, un seul piège profond est présent. Les caractéristique S et W ainsi que les fractions d'annihilation des positons s'écrivent :

$$S = f_L S_L + f_V S_V \text{ et } W = f_L W_L + f_V W_V$$

$$f_L = \frac{\lambda_L}{\lambda_L + K_V} \text{ et } f_V = \frac{K_V}{\lambda_L + K_V}, \text{ avec } k_V = \mu C_V \text{ et } \mu \text{ est le coefficient de piégeage spécifique.}$$

A partir des équations de S et W la concentration des défauts « C_V » est obtenu par :

$$C_V = \frac{\lambda_L}{\mu} \times \frac{S - S_L}{S_V - S} = \frac{\lambda_b}{\mu} \times \frac{W - W_L}{W_V - W}$$

- **Modèle de piégeage avec un piège profond et un autre peu profond**

Ce modèle inclut deux types de pièges : un à volume ouvert (généralement des lacunes), et un piège peu profond *st* (shallow trap). La Figure 2.19 montre ce type de configuration dont nous nous sommes inspirés dans notre étude pour calculer la concentration des défauts.

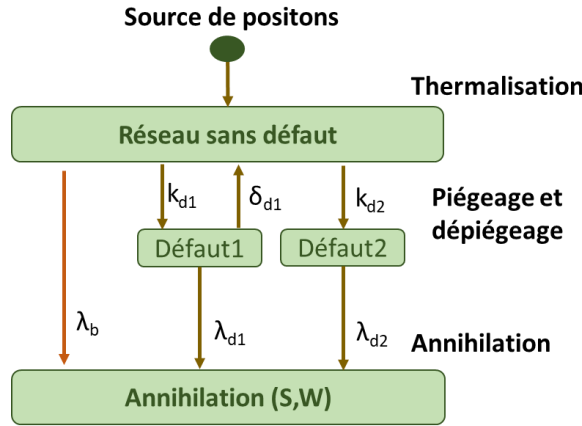


Figure 2.19 : Schéma du model étendue des piègeages incluant deux défauts : un piège peu profond d1 (shallow trap) et un piège à volume ouvert d2 (open volume trap). Adaptée de [38].

Les caractéristique S et W ainsi que les fractions d'annihilation des positons s'écrivent :

$$S = f_L S_L + f_V S_V + f_{st} S_{st} \text{ et } W = f_L W_L + f_V W_V + f_{st} W_{st}$$

$$f_V = \frac{\lambda_L}{\lambda_L + K_V^* + K_{st}} , f_V = \frac{K_V^*}{\lambda_L + K_V^* + K_{st}} \text{ et } f_{st} = \frac{K_{st}}{\lambda_L + K_V^* + K_{st}} \text{ avec } K_V^* = \frac{K_V}{1 + \frac{\delta_V}{\lambda_V}}$$

$$\text{Généralement on considère que : } S_L = S_V \rightarrow f_{st} = \frac{S - S_L}{S_{st} - S_L}$$

La longueur de diffusion effective du positon est dans ce cas donnée par la relation :

$$L_{eff}^{+2} = \frac{D^+}{\lambda_L + K_V^* + K_{st}}$$

Des relation précédentes on peut déduire que $\frac{D^+}{L_{eff}^{+2}} = \frac{K_{st}}{f_{st}}$ ceci conduit à :

$$K_{d2} = \left(\frac{S - S_L}{S_{st} - S_L} \right) \times \frac{D^+}{L_{eff}^{+2}}$$

On obtient donc l'équation de la concentration des défauts à volume ouvert considéré comme étant des lacunes, qui s'écrit :

$$C = \frac{1}{\mu} \left(\frac{S - S_L}{S_{st} - S_L} \right) \times \frac{D^+}{L_{eff}^{+2}}$$

Les mesures d'élargissement Doppler sont analysées à l'aide d'un programme d'ajustement et de modélisation des courbes expérimentales, le programme Vepfit. Ce programme repose sur un modèle multicouche, dans lequel le matériau est représenté comme une succession de couches homogènes, chacune caractérisée par des paramètres d'annihilation spécifiques. Afin de simuler les courbes $S(E)$ et $W(E)$, certains paramètres peuvent être fixes ou laissés libres. Afin d'optimiser l'ajustement aux données expérimentales, il est courant de laisser ces paramètres libres, ce qui permet une meilleure représentation des variations spectrales en fonction de la profondeur d'implantation des positons.

Certaines valeurs extraites de Vepfit sont ensuite utilisées pour le calcul des concentrations de défauts, en particulier celles liées aux taux de piégeage et aux longueurs de diffusion des positons dans les différentes couches du matériau.

2.5 Bilan du chapitre

Les différentes approches numériques et expérimentales présentées dans ce chapitre forment une base méthodologique cohérente pour l'étude des effets d'irradiation sur les matériaux semiconducteurs.

Les simulations ont permis d'anticiper les phénomènes d'implantation ionique, la distribution des défauts ainsi que les mécanismes d'interaction, jouant ainsi un rôle crucial dans la préparation et l'interprétation des expérimentations. Les irradiations, quant à elles, ont été réalisées dans des conditions variées, afin de reproduire des environnements radiatifs réalistes et de tester la robustesse des matériaux dans des scénarios extrêmes.

Les caractérisations optiques et structurales ont ensuite permis d'étudier les modifications induites par les irradiations sur le SiC, le diamant et le GaN.

Ainsi, tous ces dispositifs seront exploités dans les chapitres suivants pour établir des liens entre les types de défauts générés, leur signature spectroscopique et leur impact sur les propriétés des matériaux. Ce n'est qu'à l'issue de cette étude approfondie qu'un choix éclairé pourra être fait quant au matériau le plus adapté pour servir de radiateur de l'effet Cherenkov.

Références

- [1] CEMHTI – CNRS Orléans, « Accelerators / Accélérateurs du CEMHTI - Site Cyclotron », CEMHTI (Centre d'Études sur les Matériaux à Haute Température et Irradiation). [En ligne]. Disponible sur: <https://www.cemhti.cnrs-orleans.fr/instruments/accelerateurs>
- [2] H. Franberg Delahaye, « The New GANIL Beams: Commissioning of SPIRAL 2 Accelerator and Recent Developments », *Proceedings of the 15th International Conference on Heavy Ion Accelerator Technology*, vol. HIAT2022, p. 6 pages, 1.736 MB, 2022, doi: 10.18429/JACOW-HIAT2022-WE211.
- [3] A. Gonzalez, *Investigations Toward Power Ramp-Up of FRIB and Increasing Scientific Reach*, Ph.D. dissertation, Michigan State University, East Lansing, MI, USA, 2025.
- [4] FRIB Science Community, *FRIB400: The Scientific Case for the 400 MeV/u Energy Upgrade of FRIB*, Tech. Rep., Facility for Rare Isotope Beams, Michigan State University, East Lansing, MI, USA, 2019. [En ligne]. Disponible sur: [FRIB400 Final Report \(PDF\)](#).
- [5] Geant4 Collaboration, *Book for Application Developers*, Release 11.2, Rev. 8.0, Dec. 2023. [En ligne]. Disponible sur: Geant4 Documentation – Book for Application Developers.
- [6] Wolfspeed, « Cree compagy », Cree, Inc. Officially Changes Company Name to Wolfspeed, Inc., Marking Successful Transition to Global Semiconductor Powerhouse. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.wolfspeed.com/>
- [7] MSE Supplies LLC, « MSE Supplies ». [En ligne]. Disponible sur: <https://www.msесupplies.com>
- [8] H. Zhong *et al.*, « Surface morphology of polar, semipolar and nonpolar freestanding GaN after chemical etching », *Applied Surface Science*, vol. 511, p. 145524, mai 2020, doi: 10.1016/j.apsusc.2020.145524.
- [9] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, et J. P. Biersack, « SRIM – The stopping and range of ions in matter (2010) », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 268, n° 11-12, p. 1818-1823, juin 2010, doi: 10.1016/j.nimb.2010.02.091.
- [10] J.-P. Crocombette et C. Van Wambeke, « Quick calculation of damage for ion irradiation: implementation in Iradina and comparisons to SRIM », *EPJ Nuclear Sci. Technol.*, vol. 5, p. 7, 2019, doi: 10.1051/epjn/2019003.
- [11] J. Allison *et al.*, « Recent developments in Geant4 », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 835, p. 186-225, nov. 2016, doi: 10.1016/j.nima.2016.06.125.
- [12] B. Oryema, I. G. Madiba, et C. B. Mtshali, « Atomistic Simulation of Primary Radiation Damage Profiles in Fluorine-Doped Tin Oxide Thin Film Target Using SRIM Code », *NH*, vol. 3, nov. 2024, doi: 10.25159/3005-2602/15610.
- [13] S. Chen et D. Bernard, « On the calculation of atomic displacements using damage energy », *Results in Physics*, vol. 16, p. 102835, mars 2020, doi: 10.1016/j.rinp.2019.102835.
- [14] J. C. Bourgoin et B. Massarani, « Threshold energy for atomic displacement in diamond », *Phys. Rev. B*, vol. 14, n° 8, p. 3690-3694, oct. 1976, doi: 10.1103/PhysRevB.14.3690.
- [15] J. Koike, D. M. Parkin, et T. E. Mitchell, « Displacement threshold energy for type IIa diamond », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 60, n° 12, p. 1450-1452, mars 1992, doi: 10.1063/1.107267.
- [16] R. Brun *et al.*, « GEANT: Detector Description and Simulation Tool », 2008, CERN. doi: 10.17181/CERN.MUHF.DMJ1.

- [17] M. N. Polyanskiy, « RefractiveIndex.INFO – Database of optical constants », RefractiveIndex.INFO. [En ligne]. Disponible sur: <https://refractiveindex.info>
- [18] E. Garrido, « Production de radioisotopes: de la mesure de la section efficace à la production », Thèse de doctorat, discipline Matière et Matériaux, spécialité Physique nucléaire, 2011.
- [19] R. Brun et F. Rademakers, « ROOT — An object oriented data analysis framework », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 389, n° 1-2, p. 81-86, avr. 1997, doi: 10.1016/S0168-9002(97)00048-X.
- [20] M. F. Barthe, “Les accélérateurs de particules du CEMHTI pour la recherche dans les matériaux,” presented at the SFP Journée des accélérateurs, Roscoff, France, Nov. 2021. [En ligne]. Disponible sur : <https://indico.ijclab.in2p3.fr/event/attachments/>.
- [21] P. S. P. Kuisseau, « Détachement des substrats ultra-minces des matériaux semi-conducteurs par implantation d’hydrogène à hautes énergies pour les applications photovoltaïques et électroniques ».
- [22] R. Leroy *et al.*, “Ion Sources at GANIL,” submitted Dec. 17, 2013. [Online]. Available: [HAL IN2P3](#).
- [23] F. Maimone, R. Müller, V. R. Schaa, et JACoW, Éd., *26th International Workshop on Electron Cyclotron Resonance Ion Sources: 15.-19. September 2024, Welcome Hotel, city center, Darmstadt, Germany: proceedings*. Geneva: JACoW Publishing, 2025. doi: 10.18429/JACoW-ECRIS2024.
- [24] Ostroumov, Peter et Wei, Jie, « First two years of FRIB operation », p. 278-283 pages, 1.4 MB, oct. 2024, doi: 10.18429/JACOW-LINAC2024-TUXA004.
- [25] I. C. Cox, “Complete decay spectroscopy of neutron-rich chlorine isotopes with the FRIB Decay Station Initiator,” Ph.D. dissertation, University of Tennessee, Knoxville, Knoxville, TN, USA, Dec. 2024. [Online]. Available: <https://indico.phys.utk.edu> – Thesis.
- [26] W. F. Mueller *et al.*, « In-beam γ -ray spectroscopy of fast beams at the NSCL », *Nuclear Physics A*, vol. 734, p. 418-424, avr. 2004, doi: 10.1016/j.nuclphysa.2004.01.077.
- [27] C. Wrede, « The Facility for Rare Isotope Beams », *EPJ Web of Conferences*, vol. 93, p. 07001, 2015, doi: 10.1051/epjconf/20159307001.
- [28] M. Hausmann *et al.*, “Design of the Advanced Rare Isotope Separator (ARIS) at FRIB,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 317, pp. 204–209, 2013, doi: 10.1016/j.nimb.2013.06.042.
- [29] J. Wei *et al.*, « Advances of the FRIB project », *Int. J. Mod. Phys. E*, vol. 28, n° 03, p. 1930003, mars 2019, doi: 10.1142/S0218301319300030.
- [30] M. Portillo, M. Hausmann, et S. Chouhan, « Developments in magnet modeling and beam optics for the ARIS separator at FRIB », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 376, p. 150-155, juin 2016, doi: 10.1016/j.nimb.2016.01.029.
- [31] M. D. Bird *et al.*, « System Testing and Installation of the NHMFL/NSCL Sweeper Magnet », *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. 15, n° 2, p. 1252-1254, juin 2005, doi: 10.1109/TASC.2005.849553.
- [32] W. R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments: A How-to Approach*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 1994. doi: 10.1007/978-3-642-57920-2.
- [33] T. Baumann *et al.*, « Construction of a modular large-area neutron detector for the NSCL », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators,*

- Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 543, n° 2-3, p. 517-527, mai 2005, doi: 10.1016/j.nima.2004.12.020.
- [34] B. Luther *et al.*, « MoNA—The Modular Neutron Array », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 505, n° 1-2, p. 33-35, juin 2003, doi: 10.1016/S0168-9002(03)01014-3.
- [35] D. N. Chrisman, « NEUTRON-UNBOUND STATES IN THE NUCLEUS 31NE ».
- [36] « Integrating Sphere UV-vis-2600-isr-2600_instruction-manual.pdf ».
- [37] A. A. A. Salam, « Ingénierie des centres colorés dans SiC pour la photonique et la solotronique ».
- [38] F. Linez, « Propriété des défauts lacunaires dans le carbure de silicium: évolution de leur nature en fonction des conditions d'irradiation et interaction avec l'hélium », Thèse de doctorat, Université d'Orléans, Orléans, France, 2012.
- [39] S. Nakashima *et al.*, « Determination of free carrier density in the low doping regime of 4H-SiC by Raman scattering », *Applied Physics Letters*, vol. 93, n° 12, p. 121913, sept. 2008, doi: 10.1063/1.2992063.
- [40] Z. Mao *et al.*, « Raman-based measurement of carrier concentration in n-type ZnO thin films under resonant conditions », *Physics Letters A*, vol. 384, n° 7, p. 126148, mars 2020, doi: 10.1016/j.physleta.2019.126148.
- [41] S. Nakashima et H. Harima, « Raman Investigation of SiC Polytypes », *phys. stat. sol. (a)*, vol. 162, n° 1, p. 39-64, juill. 1997, doi: 10.1002/1521-396X(199707)162:1%3C39::AID-PSSA39%3E3.0.CO;2-L.
- [42] M. Chafai *et al.*, « Raman scattering from LO phonon-plasmon coupled modes and Hall-effect in *n* -type silicon carbide 4H-SiC », *Journal of Applied Physics*, vol. 90, n° 10, p. 5211-5215, nov. 2001, doi: 10.1063/1.1410884.
- [43] Y. Song *et al.*, « Depth Profiling of Ion-Implanted 4H-SiC Using Confocal Raman Spectroscopy », *Crystals*, vol. 10, n° 2, p. 131, févr. 2020, doi: 10.3390/cryst10020131.
- [44] P. A. M. Dirac, « On the Annihilation of Electrons and Protons », *Math. Proc. Camb. Phil. Soc.*, vol. 26, n° 3, p. 361-375, juill. 1930, doi: 10.1017/S0305004100016091.
- [45] C. D. Anderson, « The Apparent Existence of Easily Deflectable Positives », *Science*, vol. 76, n° 1967, p. 238-239, sept. 1932, doi: 10.1126/science.76.1967.238.
- [46] C. CORBEL, G. BLONDIAUX, M.F. BARTHE, Caractérisation de défauts lacunaires par annihilation de positons, Ed. Techniques Ingénieur, 2003.
- [47] T. Belhabib, « Comportement thermique des défauts lacunaires induits par l'hélium et les gaz de fission dans le dioxyde d'uranium ».
- [48] T. Troev, E. Popov, P. Staikov, N. Nankov, et T. Yoshiie, « Positron simulations of defects in tungsten containing hydrogen and helium », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 267, n° 3, p. 535-541, févr. 2009, doi: 10.1016/j.nimb.2008.11.045.
- [49] E. A. Kouadri Boudjelthia, *Piégeage des impuretés métalliques présentes dans le silicium destiné au photovoltaïque par plasma immersion ion implantation (PIII)*, Ph.D. dissertation, Université d'Orléans, Orléans, France, Dec. 2012.
- [50] I. Makkonen et F. Tuomisto, « Perspective on defect characterization in semiconductors by positron annihilation spectroscopy », *Journal of Applied Physics*, vol. 135, n° 4, p. 040901, janv. 2024, doi: 10.1063/5.0180024.

Chapitre 3. Étude des défauts créés dans le SiC, le diamant et le GaN lors des irradiations aux protons à basse énergie

Table des matières

3 Étude des défauts créés dans le SiC, le diamant et le GaN lors des irradiations aux protons à basse énergie	83
3.1 Estimation des conditions d'irradiation et justification de l'approche 'irradiation à dpa comparable'	83
3.1.1 Évaluation de la fluence pour le détecteur Cherenkov au FRIB.....	83
3.1.2 Estimation du nombre de dpa par simulation SRIM	84
3.2 Études des propriétés optiques du SiC, du diamant et du GaN après implantation avec l'hydrogène.....	87
3.2.1 Étude par spectroscopie UV-visible	87
3.2.2 Étude par photoluminescence	89
3.3 Détermination des propriétés structurales du SiC, du diamant et du GaN après implantation d'hydrogène par spectroscopie Raman	92
3.4 Étude de l'endommagement par spectroscopie d'annihilation des positons	100
3.4.1 Résultats sur le SiC	101
3.4.2 Résultats sur le diamant	105
3.4.3 Résultats sur le GaN	109
3.4.4 Bilan de la PAS	114
3.5 Bilan du chapitre	115
Références.....	118

3 Étude des défauts créés dans le SiC, le diamant et le GaN lors des irradiations aux protons à basse énergie

Après avoir identifié les différents matériaux à grand gap ainsi que les techniques de simulation et de caractérisation employées dans ce travail de thèse, il convient à présent d'évaluer les défauts créés par l'implantation d'hydrogène à basse énergie (2 MeV/n) dans le **SiC**, le **diamant** et le **GaN**. Le point fondamental de cette étude est globalement l'évaluation de l'effet de l'irradiation sur ces trois semi-conducteurs. Dans ce chapitre, l'irradiation à l'hydrogène entraînera son implantation pour des Rp allant jusqu'à 30 μm et impliquera à la fois des processus d'ionisation et d'interactions nucléaires. Ces conditions permettent d'étudier l'ensemble des effets fondamentaux de l'irradiation dans ces matériaux.

Dans un premier temps, le nombre de particules que le détecteur Cherenkov serait susceptible de recevoir au cours de son fonctionnement au FRIB a été estimé. Afin d'établir une base de comparaison cohérente avec les autres irradiations étudiées dans cette thèse, notamment celles réalisées avec des ions lourds à haute énergie présentées au chapitre suivant, l'analyse a été conduite en utilisant la notion de dpa (*Displacements Per Atom*). Ces valeurs de dpa ont été déterminées à partir de simulations SRIM (Présentée au Chapitre 2). La détermination de dpa sert de référence quantitative pour le choix des fluences d'implantation d'hydrogène utilisées.

Dans un second temps, nous avons analysé les matériaux implantés en utilisant différentes techniques de caractérisation. Ce chapitre a donc pour objectif de présenter et de discuter ces résultats, en évaluant d'abord les défauts créés par l'hydrogène dans les trois matériaux, puis leur résistance à l'irradiation, afin de déterminer celui qui est le plus adapté pour une application Cherenkov.

3.1 Estimation des conditions d'irradiation et justification de l'approche 'irradiation à dpa comparable'

L'objectif de notre travail consiste à comparer différents régimes d'irradiation en maintenant un niveau d'endommagement identique, indépendamment de l'ion, de la fluence ou de l'énergie incidente. L'approche garantit ainsi une évaluation quantitative et reproductible des performances des matériaux, en s'appuyant sur un critère physique universel et pertinent pour la description des défauts structuraux : le dpa. Car l'utilisation du dpa, permet de travailler à taux d'endommagement comparable et de s'affranchir de la nature, de l'énergie et de la fluence de l'ion.

3.1.1 Évaluation de la fluence pour le détecteur Cherenkov au FRIB

D'après les spécifications de la salle expérimentale du FRIB, le détecteur est exposé à un flux d'environ 10^4 pps. En considérant une surface active de $30 \times 30 \text{ cm}^2$, la fluence annuelle

correspondante est estimée à $2,7 \times 10^7$ particules/cm². Bien que cette valeur soit calculée sur la base d'une année de fonctionnement, il est essentiel de prendre en compte la durée de vie opérationnelle attendue d'un détecteur dans un environnement soumis à l'irradiation, généralement de plusieurs années. Afin de disposer d'une estimation représentative de l'endommagement cumulé, une fluence équivalente à dix ans d'exposition, soit $2,7 \times 10^8$ p/cm², a été choisie. Cette valeur a été adoptée comme paramètre clé pour les simulations SRIM, permettant d'estimer le nombre de déplacements par atomes (dpa) dans les échantillons pour comparer les différentes conditions d'irradiation.

3.1.2 Estimation du nombre de dpa par simulation SRIM

Un modèle de calcul détaillé des défauts créés par irradiation avec des cascades complètes (Detailed calculation with full damage cascades) a été utilisé avec SRIM permettant une évaluation précise des défauts induits par ces irradiations.

La détermination des dpa induits par les isotopes de calcium (⁵³Ca) accélérés à une énergie de 180 MeV/n, a été étudiée dans différents matériaux : le SiC, le diamant et le GaN. Les résultats, présentés à la Figure 3.1, indiquent que la profondeur maximale d'endommagement (Rp) varie selon le matériau (~7 mm pour le GaN, 9,4 mm pour le diamant et jusqu'à 11 mm pour le SiC). Ces variations reflètent l'influence de la densité atomique et des propriétés cristallines, notamment les énergies de déplacement, sur la perte d'énergie nucléaire.

L'insert représente les mêmes dpa calculés par SRIM en échelle logarithmique par rapport à une profondeur de pénétration de 5 mm de la surface, représentant la zone de trace (Ion Track).

À une énergie par nucléon constante, l'isotope ⁵³Ca, plus lourd, engendre systématiquement un nombre de dpa supérieur à celui du ⁵²Ca.

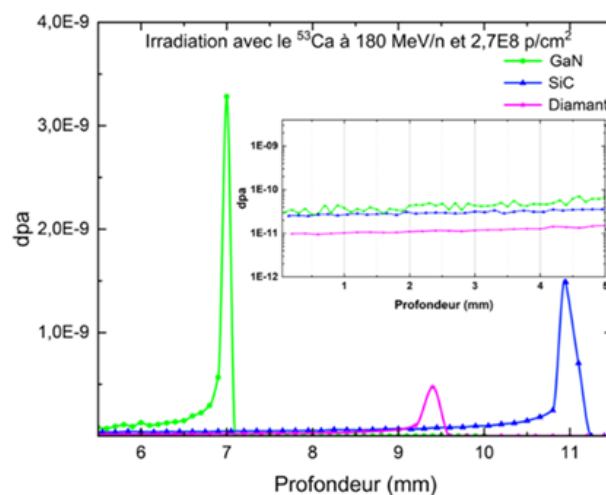


Figure 3.1 : Profils en profondeur du nombre de déplacements par atome (dpa) induits par l'irradiation avec les isotopes ⁵³Ca à 180 MeV/n et une dose de $2,7 \times 10^8$ p/cm², simulés par SRIM dans différents matériaux semi-conducteurs : SiC, le diamant ainsi que le GaN.

Dans le cadre de cette étude, des implantations d'hydrogène ont été réalisées à une énergie de 2 MeV dans divers échantillons, afin d'évaluer leur résistance aux irradiations en maintenant un dpa comparable. Pour cela, nous avons d'abord déterminé, pour chaque matériau, le nombre de dpa induits par une particule incidente (isotopes de calcium essentiellement), sur la base de simulations effectuées avec SRIM. À partir de ces valeurs, la fluence d'hydrogène nécessaire pour atteindre un même niveau d'endommagement a été calculée individuellement pour chaque échantillon. Les résultats obtenus sont résumés dans le Tableau 3.1.

Tableau 3.1 : Résultat des simulations SRIM avec des particules de ^{52}Ca et ^{53}Ca accélérées avec une énergie de 180 MeV/n et une fluence de $2,7 \times 10^8 \text{ p/cm}^2$ dans les différents matériaux. Les dpa au Rp ainsi que la fluence d'hydrogène (2 MeV) équivalente ont été calculés.

Échantillons	Énergie de déplacement (Ed)	Ion accéléré à 180 MeV/n et $2,7 \times 10^8 \text{ p/cm}^2$			
		^{52}Ca		^{53}Ca	
		dpa	Φ^* équivalente (H^+/cm^2)	dpa	Φ^* équivalente (H^+/cm^2)
SiC	Si = 35 eV C = 21 eV	$2,031 \times 10^{-9}$	$3,330 \times 10^9$	$1,487 \times 10^{-9}$	$2,44 \times 10^9$
Diamant	C = 35 eV	$4,78 \times 10^{-10}$	$1,50 \times 10^9$	$4,71 \times 10^{-10}$	$1,48 \times 10^9$
GaN	Ga = 73,2 eV N = 32,4 eV	$1,82 \times 10^{-9}$	$4,64 \times 10^9$	$3,28 \times 10^{-9}$	$8,35 \times 10^9$

Φ^* correspond à la fluence de 2 MeV d'hydrogène équivalente à chaque dpa induit par le ^{52}Ca et le ^{53}Ca .

Les résultats de ces calculs montrent que, pour reproduire ces dpa avec de l'hydrogène à basse énergie, les fluences requises varient entre $\sim 1,5 \times 10^9 \text{ p/cm}^2$ et $\sim 8 \times 10^9 \text{ p/cm}^2$, ce qui reste relativement modéré. Cependant, dans le cadre de notre étude, l'objectif dépasse la simple évaluation du comportement des matériaux en conditions nominales. Nous cherchons en effet à examiner leur potentiel en tant que radiateurs Cherenkov qui seront utilisés dans des environnements nettement plus extrêmes, tels que ceux associés à la détection de particules cosmiques ou présents dans des installations à flux de particules particulièrement élevés. Dans cette optique, nous avons retenu des fluences de 5×10^{12} et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$. La première fluence permet d'évaluer les effets d'une irradiation intermédiaire, tandis que la seconde vise à sonder les limites extrêmes de la résistance des matériaux étudiés. Ces niveaux, significativement supérieurs aux fluences théoriquement nécessaires pour atteindre les dpa équivalents aux irradiations par calcium, permettent ainsi d'étudier la réponse des matériaux à des conditions sévères, bien au-delà de l'endommagement attendu dans un environnement comme celui du FRIB.

L'évolution du nombre de déplacements par atome (dpa) pour une fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (courbes rouges) ainsi qu'une fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (courbes bleues) ont été obtenus à l'aide de simulations SRIM. Les résultats sont présentés pour différents matériaux : le SiC (Figure 3.2a), le diamant (Figure 3.2b) et le GaN (Figure 3.2c). Les ions sont implantés à une profondeur caractéristique dans les échantillons, estimée à environ 32 μm pour le SiC et 25 μm

pour le diamant et le GaN. Le Rp dans le diamant et le GaN est identique, même si cela peut paraître contre intuitif étant donné la densité élevée du GaN ($6,15 \text{ g/cm}^3$), mais ceci peut être expliqué par une contribution de plusieurs paramètres tels que la densité électronique plus élevée du GaN (qui freine plus les protons) et son potentiel d'excitation plus grand (qui réduit les interactions électroniques efficaces). Ces deux paramètres interviennent dans la formule de Beth Block pour le calcul du pouvoir d'arrêt électronique dominant à cette énergie d'implantation.

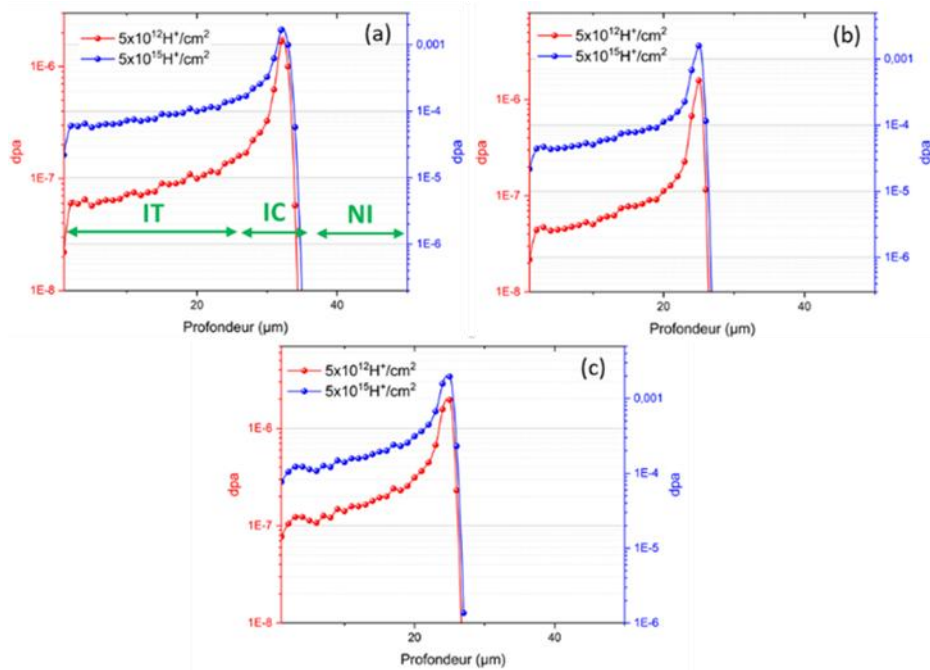


Figure 3.2 : Simulation SRIM donnant le nombre de dpa pour une implantation à 2 MeV à une fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (courbes rouges) et une fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (courbes bleues) dans le : **(a)** SiC, **(b)** diamant et **(c)** GaN.

Sur cette base, trois régions distinctes peuvent être définies comme représenté sur la Figure 3.2 :

- La région des traces (IT : ion track) : Elle correspond aux premiers microns sous la surface, où les ions commencent à interagir avec la matière. Dans cette zone, la concentration de défauts reste relativement faible (dpa varient entre 10^{-8} à 10^{-7} pour une fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et entre 10^{-5} à 10^{-4} pour une fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$), les collisions nucléaires étant rares. Les pertes d'énergie sont principalement de nature électronique.
- La région des cascades de collision (IC : ion cascade) : Cette zone coïncide avec la zone où les ions déposent la majeure partie de leur énergie via des interactions nucléaires. Elle se caractérise ainsi par une forte densité de défauts ponctuels (principalement des lacunes et des interstitiels), correspondant au maximum de la distribution de défauts (dpa varient entre 10^{-7} à 10^{-6} pour une fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et entre 10^{-4} à 10^{-3} pour une fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$).

- La région non implantée (NI : non implanted) : Elle est située au-delà du parcours des ions. Cette zone est peu affectée par l'irradiation et est donc supposée être quasi exempte de défauts créés par l'implantation.

Les dpa calculés dans les échantillons SiC, diamant et GaN après implantation d'hydrogène avec une énergie de 2 MeV et deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$, $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$) dans la région Rp ainsi que la région IT sont résumés dans le Tableau 3.2.

Tableau 3.2 : Calcul de dpa créés dans les régions Rp et IT dans le SiC, le diamant et le GaN après implantation d'hydrogène avec une énergie de 2 MeV et deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$, $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$).

Matériaux	Rp (μm)	Fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$		Fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$	
		dpa au Rp	dpa au IT	dpa au Rp	dpa au IT
SiC	32	$1,7 \times 10^{-6}$	7×10^{-8}	$1,7 \times 10^{-3}$	7×10^{-5}
Diamant	25	$1,6 \times 10^{-6}$	6×10^{-8}	$1,6 \times 10^{-3}$	6×10^{-5}
GaN	25	2×10^{-6}	1×10^{-7}	2×10^{-3}	1×10^{-4}

Les profils de défauts obtenus par simulation SRIM, en particulier le Rp et les dpa, fournissent une première évaluation de l'intensité et de la localisation des effets d'irradiation dans les différents matériaux. Afin de caractériser les effets de l'irradiation à différentes échelles, plusieurs techniques expérimentales ont été mises en œuvre. Celles-ci permettent d'étudier, de manière complémentaire, les changements optiques et structurels, induits par les défauts.

3.2 Études des propriétés optiques du SiC, du diamant et du GaN après implantation avec l'hydrogène

3.2.1 Étude par spectroscopie UV-visible

Les résultats des différents échantillons à savoir le SiC, le diamant CVD polycristallin, le diamant CVD monocristallin ainsi que le GaN plan a et c sont présentés sur la figure 5. Les mesures ont été réalisées avant et après implantation d'hydrogène à 2 MeV, en considérant les deux fluences $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$.

Dans le cas du SiC (Figure 3.3a), l'échantillon de référence (vierge) présente une bande d'absorption à 460 nm. Après implantation, celle-ci demeure inchangée, aucune autre bande d'absorption n'est observée. Cette bande d'absorption correspond à la présence d'azote due au dopage (de type n) [1], [2]. Ce résultat attendu est cohérent avec des études antérieures sur le SiC de type n [3].

Pour les diamants CVD polycristallin et monocristallin, aucune bande d'absorption dans la gamme UV-visible avant implantation n'est présente, ce qui indique qu'ils n'absorbent pas la lumière bleue dans ces conditions (Figure 3.3b et Figure 3.3c). Après implantation à 2 MeV à

faible fluence ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$), le comportement optique des deux types de diamants reste identique à celui des échantillons non implantés. Toutefois, une bande d'absorption à 270 nm apparaît dans les deux matériaux après implantation à forte fluence ($5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$). Cette bande est attribuée à la présence du centre GR1 qui est assigné à monolacune de carbone neutre V_C^0 créée après irradiation [4] [5] et non à la présence de l'azote en substitution au carbone considéré comme défaut natif et provenant de la concentration résiduelle en azote lors du processus de croissance du diamant [6]. Des bandes similaires, liées à des défauts associés à l'azote, ont été rapportées dans du diamant CVD synthétisé à basse pression et haute température (LPHT) [7]. Nous avons examiné plus en détail les différences d'absorption entre le diamant polycristallin et le diamant monocristallin avant et après implantation à faible fluence ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$). Les inserts des Figures 3.3b et 3.3c montrent que, dans la gamme 200–400 nm, le diamant polycristallin présente une absorption plus élevée que le monocristallin [8].

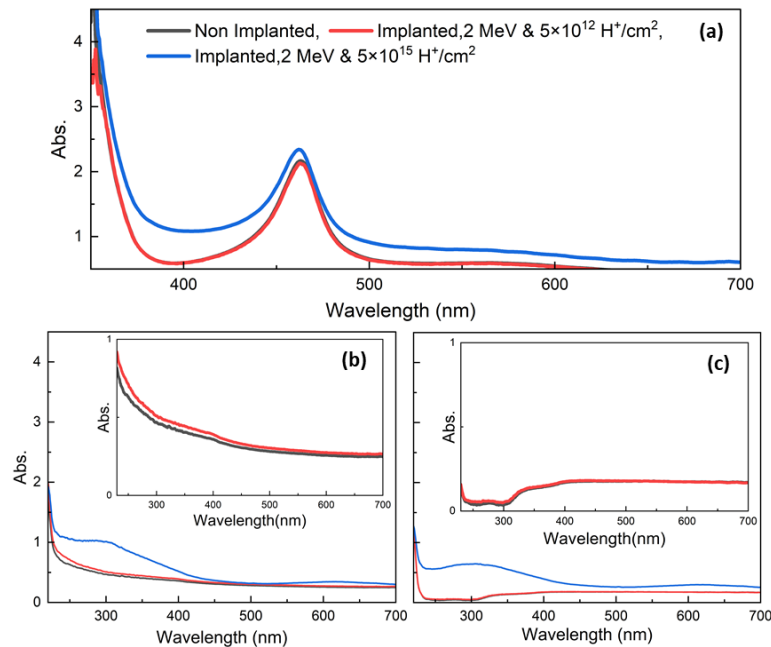


Figure 3.3 : Spectroscopie UV-visible avant et après implantation à 2 MeV avec différentes fluences : **(a)** SiC, **(b)** CVD diamant polycristallin, **(c)** CVD diamant monocristallin.

Les échantillons plan c (DPS et SPS) et GaN plan a, représentés sur la Figure 3.4, ne présentent aucune bande d'absorption avant implantation dans la gamme UV-visible (Figure 3.4a, Figure 3.4b et Figure 3.4c). Après implantation à faible fluence ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$), le comportement optique des deux types reste identique à celui des échantillons non implantés. Cela implique que l'irradiation n'a induit aucun défaut détectable. En revanche, pour l'implantation à plus forte fluence ($5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$), une bande d'absorption centrée à 450 nm apparaît. Une telle bande a fait l'objet d'une étude approfondie par Mamour Sall [9] qui en a étudié l'origine, et l'a attribuée à la lacune de Ga éventuellement complexée à une impureté. Ces impuretés pourraient être associés à la présence d'oxygène ou d'hydrogène avec des concentrations

$> 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ formant ainsi des complexes $V_{\text{Ga}}\text{-O}_N$ ou $V_{\text{Ga}}\text{-H}_x$ (avec $x= 1, 2$ ou 3) [10]. Il convient également de souligner qu'une différence notable entre les échantillons de c-GaN SPS et c-GaN DPS peut être observée en ce qui concerne la quantité de lumière absorbée. Cette différence s'explique par le fait que le c-GaN SPS possède une face non polie, qui réfléchit partiellement la lumière émise.

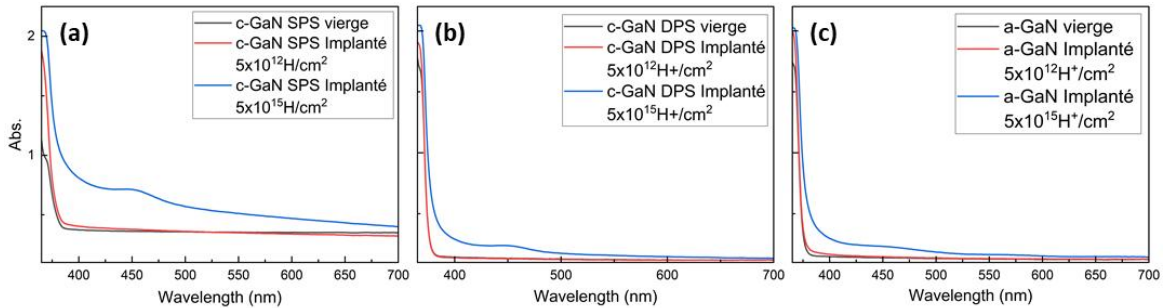


Figure 3.4 : Spectroscopie UV-visible avant et après implantation à 2 MeV avec différentes fluences : **(a)** c-GaN SPS, **(b)** c-GaN DPS et **(c)** a-GaN.

L'analyse par l'UV-visible peut être synthétisée comme suit :

Le diamant et le GaN ne présentent aucune signature optique notable aux faibles fluences. Toutefois, les fortes fluences révèlent l'apparition de bandes d'absorption spécifiques : une bande centrée autour de 270 nm dans le diamant, attribuée à des défauts liés à la monolacune de carbone, et une bande proche de 450 nm dans le GaN, indiquant la présence de lacunes de gallium. À l'inverse, le SiC conserve de manière constante sa bande à 460 nm, caractéristique de son dopage de type n, indépendamment de l'irradiation.

Par ailleurs, nous constatons une augmentation de l'absorption dans les trois types d'échantillons à forte fluence. Pour le diamant et le GaN ceci est due à la formation d'une large bande attribuée aux lacunes V_C et V_{Ga} dans les matériaux, respectivement, qui diffuse sur le large spectre du visible. Dans le SiC ceci est probablement dû à des défauts ponctuels, qui seraient responsables de cette absorption [11].

3.2.2 Étude par photoluminescence

Dans cette étude, l'excitation dans le domaine Ultra-violet (UV) utilisée, combinée à l'ouverture numérique de l'objectif, permet une résolution latérale d'environ $1,3 \mu\text{m}$. La Figure 3.5a présente les spectres de PL du SiC avant (courbe noire) et après implantation à des fluences de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$, représentées respectivement en rouge et en bleu. Une émission a été observée dans la région UV, cohérente avec la recombinaison bande-à-bande à travers le gap du SiC (3,26 eV) [12]. L'intensité PL représentée ici est normalisée par rapport à cette bande d'émission.

Une large bande d'émission dans la gamme du visible centrée à 550 nm est visible et attribuée à des transitions de type donneur-accepteur (DAP), impliquant d'après les références [13] [14] des donneurs de type azote et des niveaux accepteurs profonds. Une

seconde bande d'émission a été observée à 650 nm (1,9 eV). Bien que cette émission se situe dans la plage rapportée pour les centres CAV (antisite carbone – lacune) dans le SiC [15], [16] [17], ces défauts non natifs sont généralement créés par des irradiations électroniques ou ioniques. Il est à noter que cette bande ne correspond pas aux signatures PL typiquement associées à des défauts bien caractérisés (Chapitre 1). En particulier, les lacunes de silicium présentent généralement une émission dans le proche infrarouge, typiquement entre 850 et 950 nm à température ambiante, tandis que les défauts d'empilement (stacking faults) sont liés à des émissions situées dans la plage 420–500 nm, selon leur configuration structurale [18] [19] [20]. Une origine possible de cette émission pourrait être la présence de fines couches natives de SiO₂ à la surface de l'échantillon. Les défauts générés à l'interface SiO₂/SiC sont en effet connus pour émettre dans cette région spectrale [21] [22] [23]. Le seul défaut natif donc détecté par cette méthode est le DAP.

Après implantation, la signature des bandes de luminescence identifiées dans l'échantillon vierge ne change pas. Toutefois, l'augmentation de la fluence d'implantation entraîne, une augmentation progressive et significative de l'intensité globale de la PL, traduisant une augmentation due à l'accumulation de défauts dans le réseau cristallin. En particulier, après une implantation à haute fluence en hydrogène, on observe non seulement une augmentation de l'intensité, mais également un décalage vers le bleu de la bande d'émission de type donneur-accepteur (DAP), centrée autour de 500 nm. Ceci est probablement dû à l'évolution des défauts qui participent au mécanisme de recombinaison. En revanche, aucune variation significative n'a été observée pour la bande à 650 nm, ce qui indique qu'elle provient probablement de défauts plus stables ou moins sensibles aux perturbations comme ce serait le cas d'une couche de SiO₂ en surface.

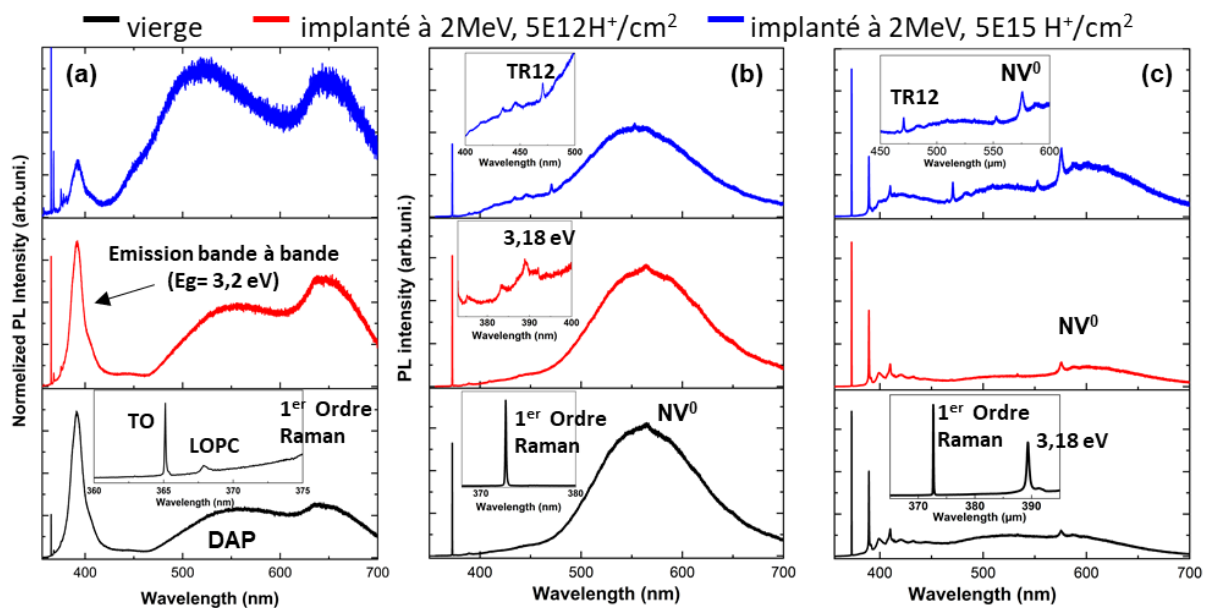


Figure 3.5 : Spectroscopie de PL avant et après implantation à 2 MeV avec différentes fluences : (a) SiC (normalisé par rapport à l'émission bande à bande), (b) CVD diamant polycristallin, (c) CVD diamant monocristallin.

Les spectres de photoluminescence enregistrés sur les diamants polycristallins et monocristallins sont montrés respectivement aux Figure 3.5b et Figure 3.5c. Un pic net à 372,6 nm est observé dans les deux échantillons, correspondant au mode Raman du premier ordre du diamant (1332 cm^{-1}), avant et après implantation.

Les spectres PL présentent des bandes d'émission larges similaires avant irradiation (courbes noires), et même après une implantation à faible fluence (courbes rouges). Ces bandes sont généralement attribuées à des défauts natifs ou impuretés résiduelles, tels que les centres liés à l'azote NV^0 [24], couramment présents dans le diamant non dopé [25] [7].

Après implantation à fluence élevée ($5 \times 10^{15}\text{ H}^+/\text{cm}^2$), le centre NV^0 , caractérisé par une ligne à zéro phonon (ZPL) à 575 nm, est toujours présent dans le diamant polycristallin. Par ailleurs, un nouveau pic d'émission apparaît à 470 nm (2,64 eV) dans les deux types de diamant (polycristallin et monocristallin, courbes bleues). Cette émission, communément appelée TR12, est attribuée à des centres de défauts induits par l'irradiation ionique, impliquant deux lacunes et deux atomes de carbone interstitiels [26] [27]. Ces centres sont connus pour être optiquement actifs dans le visible après irradiation par des particules énergétiques, et leur apparition dans les deux types de diamant suggère qu'ils sont relativement indépendants de l'ordre cristallin. Enfin, un second pic, centré à 553 nm ($\sim 2,24\text{ eV}$), est détectable uniquement dans le diamant monocristallin après implantation à haute fluence. Il pourrait être associé à des centres complexes induits par irradiation.

Les mesures PL ont permis de révéler des centres optiquement actifs liés aux défauts dans le diamant. Ces défauts n'ont pas été détectés par l'UV-Visible, sans doute à cause de leur présence en faible concentration, n'induisant pas d'absorption détectable par UV-Visible. Ce qui souligne la sensibilité de la PL est supérieur à celle de l'UV-Visible pour certains types de défauts.

Les Figure 3.6a, Figure 3.6b et Figure 3.6c montrent le spectre de photoluminescence obtenu sur les c-GaN SPS et DPS ainsi que sur le a-GaN respectivement. Les mesures ont été réalisées dans les trois conditions expérimentales : avant implantation (correspondant aux courbes noires), après implantation à 2 MeV et $5 \times 10^{12}\text{ H}^+/\text{cm}^2$ (correspondant aux courbes rouges) et après implantation à 2 MeV et $5 \times 10^{15}\text{ H}^+/\text{cm}^2$ (correspondant aux courbes bleues). Dans l'ensemble des échantillons, le GaN est caractérisé par une forte émission bande à bande à 365 nm (3,41 eV). Par ailleurs, l'apparition de certains pics de PL (3,3 eV et 3,39 eV) a été observée après implantation avec les deux fluences ($5 \times 10^{12}\text{ H}^+/\text{cm}^2$ et $5 \times 10^{15}\text{ H}^+/\text{cm}^2$), notamment dans le cas du c-GaN DPS et du a-GaN. Cette luminescence peut être attribuée à des modes TO (Transverse Optique) ou LO (Longitudinale Optique) qu'on observe en spectroscopie Raman (qui apparaissent selon la polarité des échantillons comme observé dans la section 3.3), car à notre connaissance, aucun défaut n'a pu être lié à ces longueurs d'onde.

Dans les longueurs d'onde du visible allant de 400 nm à 700 nm, aucune bande d'émission n'est observée avant ou après implantation.

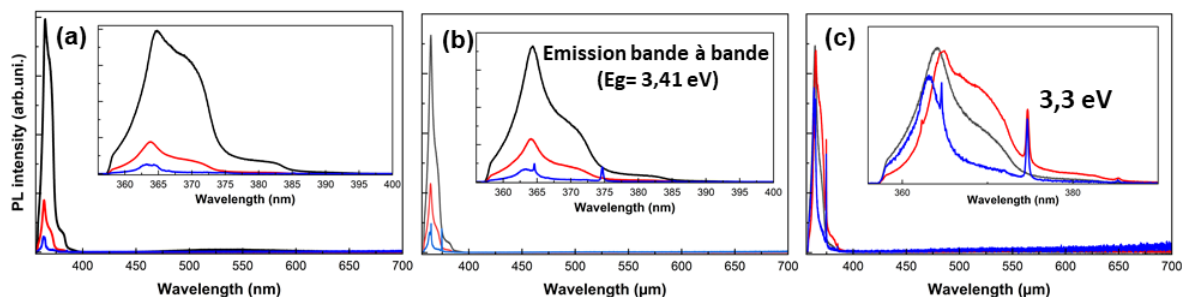


Figure 3.6 : Spectroscopie de PL avant (en noir) et après implantation à 2 MeV avec une fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (en rouge) et une fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (en bleu) : **(a)** c- GaN SPS, **(b)** c-GaN DPS, et **(c)** a-GaN.

Les résultats obtenus par photoluminescence (PL) sur les différents échantillons sont synthétisés dans le Tableau 3.3.

Bien que le SiC soit caractérisé par deux bandes de luminescence à 550 nm et 650 nm, respectivement attribuées aux défauts DAP et à un défaut X encore peu documenté, il ne montre aucun défaut supplémentaire après implantation. Le diamant, quant à lui, présente un défaut natif associé au centre NV ainsi qu'un défaut induit par implantation à forte fluence, identifié comme le centre TR12. Enfin, le GaN reste le matériau le plus dépourvu de défauts, aussi bien avant qu'après implantation.

Tableau 3.3 : Résultats obtenus par PL des défauts natifs ainsi que ceux introduits par implantation d'hydrogène à 2 MeV et deux fluences pour chaque matériau (SiC, diamant et GaN).

Echantillons	Défauts		
	SiC	Diamant	GaN
Vierge	DAP (2,25 eV) ; X (1,9 eV)	NV (2,15 eV)	Pas de défauts
Implanté à 2 MeV et $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$	DAP (2,25 eV) ; X (1,9 eV)	NV (2,15 eV)	Pas de défauts
Implanté à 2 MeV et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$	DAP (2,25 eV) ; X (1,9 eV)	NV (2,15 eV) ; TR12 (2,64 eV)	Pas de défauts

3.3 Détermination des propriétés structurales du SiC, du diamant et du GaN après implantation d'hydrogène par spectroscopie Raman

Le spectre Raman du SiC vierge révèle différents modes vibrationnels [28] [29] dans la plage de nombres d'onde allant de 700 cm⁻¹ à 1100 cm⁻¹. Notamment, deux modes optiques transverses (TO) sont observés autour de 776 cm⁻¹ et 797 cm⁻¹, ainsi qu'un mode longitudinal optique (LO) comme le montre la Figure 3.7. Comparé aux modes TO, le mode LO présente un profil large et asymétrique, attribué à son couplage avec les oscillations collectives des porteurs libres (plasmons), formant ce que l'on appelle le mode longitudinal optique couplé

au plasmons (LOPC) [30] [31], centré approximativement à 984 cm^{-1} . Ce mode est lié aux électrons générés par le dopage du SiC avec l'azote.

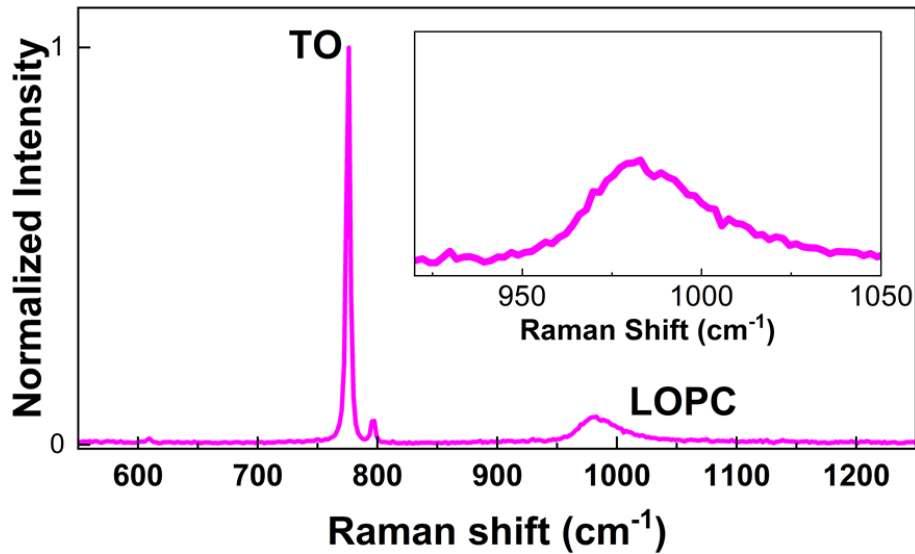


Figure 3.7 : Modes vibrationnels du SiC non implanté obtenue par spectroscopie Raman.

Afin d'étudier le comportement du SiC face aux implantations, depuis la surface jusqu'à une profondeur dépassant le R_p , un balayage longitudinal a été réalisé à partir du bord des SiC clivés naturellement. Cette approche permet d'éviter les artefacts induits par le sciage mécanique ou laser, susceptibles de perturber l'analyse Raman.

La Figure 3.8a présente l'évolution du mode optique transverse (TO) à droite ainsi que celle du mode longitudinal optique couplé aux plasmons (LOPC) à gauche (Fig. 3.8d) sous forme de carte en échelle de couleurs (les nombres d'onde en abscisse, la profondeur en ordonnée et l'intensité Raman en couleur). La comparaison est effectuée pour trois échantillons de SiC : un échantillon non implanté (Figure 3.8a, et Figure 3.8d pour les modes TO et LO respectivement), un échantillon implanté avec des protons à 2 MeV à une fluence de $5 \times 10^{12}\text{ H}^+/\text{cm}^2$ (Figure 3.8b, Figure 3.8e pour les modes TO et LO) et un autre implanté avec des protons à 2 MeV à une fluence de $5 \times 10^{15}\text{ H}^+/\text{cm}^2$ (Figure 3.8c, Figure 3.8f) pour les modes TO et LO).

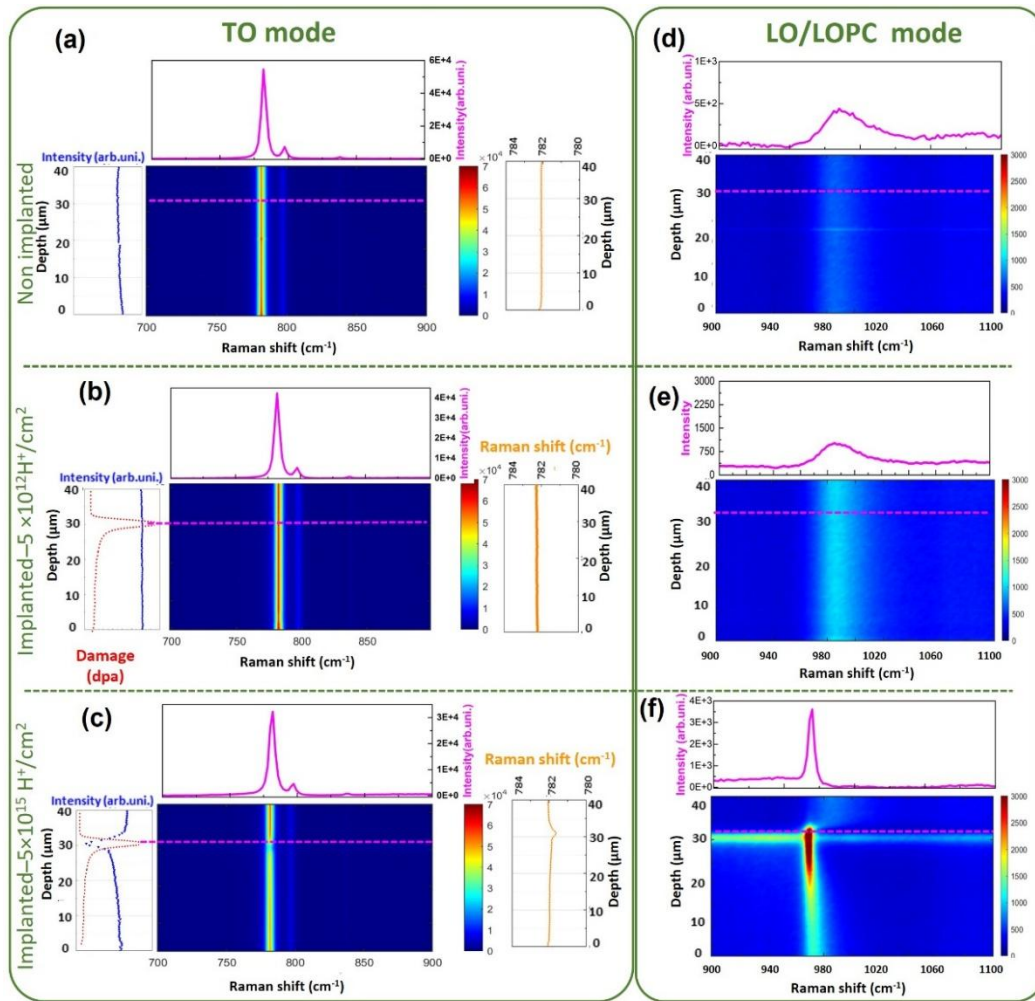


Figure 3.8 : Evolution des mode TO et LOPC dans la profondeur du SiC en fonction du nombre d'onde : **(a)** avant implantation, **(b)** après implantation à 2 MeV et une fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et **(c)** après implantation à 2 MeV et une fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$.

Dans l'échantillon non implanté ainsi que dans celui irradié à faible fluence ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$), l'intensité du mode TO reste constante sur une profondeur d'environ 40 μm . Le même résultat a été observé pour le mode LOPC.

En revanche, après implantation à la fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$, on observe une diminution progressive de l'intensité du mode TO, atteignant un minimum dans la région correspondant au R_p estimé à 32 μm selon la simulation SRIM (Figure 3.8c et Figure 3.8f). De plus, aucun décalage de la position du pic du mode TO n'est observé, ce qui indique l'absence de contraintes locales et confirme que la qualité structurale du matériau est préservée. A l'inverse, l'intensité du pic LOPC augmente, atteignant un maximum au R_p , et sa position se décale vers les basses fréquences jusqu'à 970 cm^{-1} , ce qui témoigne de la restauration du mode LO découplé des porteurs libres. Ceci traduit la compensation des porteurs libres dus au dopage par les défauts induits par l'implantation d'hydrogène à cette fluence.

Les Figure 3.9a et Figure 3.9b présentent les spectres Raman du diamant CVD polycristallin et monocristallin, respectivement, enregistrés avant et après implantation à 2 MeV pour des

fluences de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$. Ces spectres sont dominés par le pic du premier ordre à 1332 cm^{-1} , correspondant au mode T_{2g} triplement dégénéré, associé aux vibrations des deux sous-réseaux cubiques interpénétrés [32]. Il est à noter qu'aucune modification significative de ce mode vibratoire n'est observée dans les diamants polycristallin et monocristallin, avant et après implantation, quelle que soit la fluence appliquée.

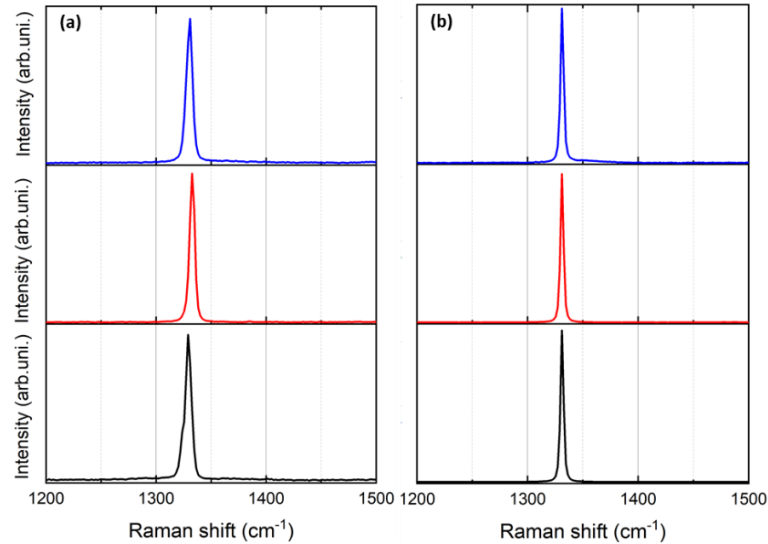


Figure 3.9 : Évolution du pic des diamants polycristallins **(a)** et monocristallins **(b)** : avant implantation en noir, après implantation à 2 MeV avec une fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en bleu et après implantation à 2 MeV avec une fluence de 5×10^{15} en rouge.

En raison de l'extrême dureté des échantillons de diamant et de leurs petites dimensions ($5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 300 \text{ }\mu\text{m}$ pour le monocristallin et $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm} \times 300 \text{ }\mu\text{m}$ pour le polycristallin), l'obtention d'un clivage naturel est très difficile, voire impossible. Afin d'étudier les effets de l'implantation en profondeur (jusqu'à R_p) de ces diamants, une analyse Raman confocale en profondeur a été réalisée.

Cette méthode consiste à déplacer l'échantillon selon l'axe Z, (voir le Chapitre 2 section 2.4.3.2) permettant ainsi au faisceau laser focalisé de sonder successivement des zones plus profondes dans les échantillons : en scannant de cette manière (scan transversal), on peut atteindre et analyser la zone correspondant à R_p de $25 \text{ }\mu\text{m}$, telle que rapportée par SRIM (Figure 3.2c).

Cette analyse, largement utilisée pour les matériaux multicouches ou structurés en profondeur, permet de sonder de manière non destructive l'évolution des propriétés structurales et vibratoires du matériau en fonction de la profondeur, offrant ainsi un accès direct aux régions traversées par l'ion incident [32] [33].

L'intensité et la largeur à mi-hauteur (FWHM) du pic Raman du premier ordre du diamant ont été analysées afin d'évaluer les défauts induits par l'irradiation dans chaque échantillon, comme présenté en Figure 3.10. Les mesures Raman en profondeur ont été effectuées en un point unique, à l'aide d'un faisceau laser focalisé latéralement à $0,7\text{--}0,8 \text{ }\mu\text{m}$, comme illustré

par la tache verte dans les images optiques des Figure 3.10a et Figure 3.10b. Ces images révèlent également que le diamant polycristallin présente des joints de grains, avec des tailles de grains moyennes estimées à quelques micromètres, absentes dans le diamant monocristallin [34].

Une étude en profondeur a été réalisée depuis la surface (0 μm) jusqu'à une profondeur de 80 μm . Afin de permettre une comparaison directe entre les différents échantillons, les intensités Raman ont été normalisées pour les échantillons de diamant monocristallin et polycristallin. Cette approche garantit une évaluation cohérente des modifications structurales induites par l'irradiation, en minimisant les biais liés aux différences intrinsèques de réponse spectrale entre les deux types de matériaux.

Dans ce type d'analyse résolue en profondeur, la détermination précise de la profondeur absolue d'implantation reste intrinsèquement difficile en raison de la faible résolution axiale, estimée à environ 3,6 μm , comparée à la résolution latérale (<1 μm). Cette limitation est accentuée par le fort indice de réfraction du diamant, qui perturbe la trajectoire optique et affecte significativement la précision des mesures en profondeur.

Par ailleurs, comme mentionné dans des travaux antérieurs [35], les modifications de l'indice de réfraction du diamant irradié sont fortement corrélées à la puissance d'arrêt nucléaire (S_n), avec des effets particulièrement marqués à proximité de la fin de la trajectoire des ions. En particulier, il a été montré [36] que des protons d'énergie comprise entre 3 et 5 MeV entraînent des variations mesurables de l'indice de réfraction, généralement inférieures à 2%, pour des fluences allant de 10^{15} à 10^{17} cm^{-2} . Compte tenu de l'énergie et de la nature des ions utilisés dans notre étude, des effets optiques similaires sont attendus. Il est donc essentiel de reconnaître et de prendre en compte ces limitations pour une interprétation rigoureuse des données Raman en profondeur, notamment lors de l'estimation de la distribution spatiale des défauts induits par l'irradiation et de la localisation précise de la zone implantée [37].

L'évolution de l'intensité du pic Raman du diamant varie nettement entre les échantillons monocristallins et polycristallins. Comme le montre la Figure 3.10c, le diamant polycristallin présente des fluctuations importantes d'intensité Raman en fonction de la profondeur, quelle que soit la condition d'implantation. En revanche, le diamant monocristallin (Figure 3.10) présente un profil d'intensité relativement stable sur toute la profondeur analysée, et ce pour les trois cas étudiés : non implanté, implanté avec des protons de 2 MeV à une fluence de 5×10^{12} H^+/cm^2 , et à 5×10^{15} H^+/cm^2 .

Il est à noter qu'une diminution générale de l'intensité est observée dans les deux types de diamants avec l'augmentation de la profondeur, principalement en raison de l'atténuation des photons rétrodiffusés. Cependant, dans le monocristallin on observe une diminution de l'intensité plus importante dans l'échantillon implanté à 5×10^{15} H^+/cm^2 , comparativement à l'échantillon vierge ou implanté à basse fluence. Ceci est probablement dû à la présence de défauts lié à l'implantation (TR12). Toutefois, dans le diamant polycristallin, cet effet est modulé par l'hétérogénéité microstructurale, incluant les joints de grains et les variations

d'orientation cristalline. Ces caractéristiques augmentent la diffusion et l'absorption de la lumière, réduisant ainsi le signal Raman effectif dans certaines zones.

Ces résultats sont en bon accord avec l'évolution de la largeur à mi-hauteur (FWHM) du pic Raman du diamant (Figure 3.10e). L'échantillon monocristallin conserve une FWHM étroite et constante ($\sim 3 \text{ cm}^{-1}$), tandis que le diamant polycristallin présente une forte corrélation inverse entre l'intensité Raman et la FWHM (Figure 3.10f). En effet, les zones présentant une intensité plus élevée affichent des pics plus étroits, indiquant un ordre cristallin supérieur. Cette tendance alternée, mise en évidence par les lignes roses dans le profil en profondeur, reflète probablement la distribution spatiale et la taille des grains individuels le long de l'axe Z. Ce comportement est caractéristique des matériaux polycristallins à grains orientés aléatoirement, et met en évidence la sensibilité de la spectroscopie Raman aux variations microstructurales locales.

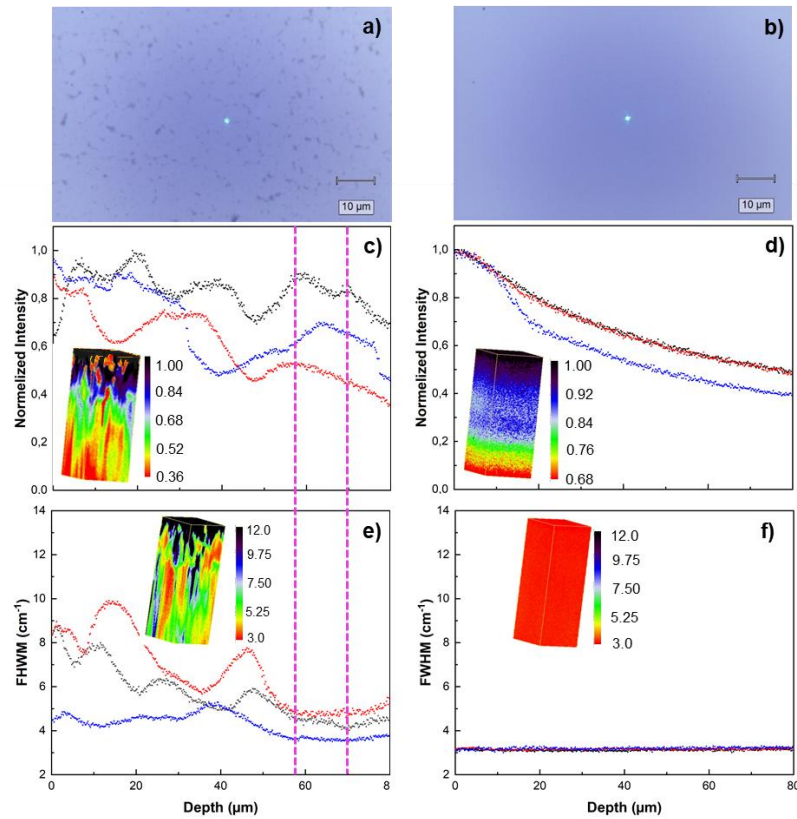


Figure 3.10 : Images optiques de **(a)** diamant CVD polycristallin et **(b)** diamant CVD monocristallin. Évolution des spectres Raman en fonction de la profondeur avant (courbes noires) et après implantation de protons de 2 MeV avec des fluences de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (courbes rouges) et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (courbes bleues). Sont également présentés : **(c)** l'intensité du pic Raman pour le diamant polycristallin, **(d)** l'intensité du pic Raman pour le diamant monocristallin, ainsi que la largeur à mi-hauteur (FWHM) du pic Raman pour **(e)** le diamant polycristallin et **(f)** le diamant monocristallin.

Pour une comparaison plus détaillée des propriétés structurales entre les diamants polycristallin et monocristallin, une cartographie Raman en volume a été effectuée sur une

zone de $30 \times 30 \times 80 \mu\text{m}^3$. La Figure 3.10 présente les distributions spatiales de l'intensité et de la FWHM de la bande Raman caractéristique T_{2g} dans les volumes analysés pour chaque échantillon. Les inserts mettent clairement en évidence les contrastes structuraux entre les deux matériaux. Dans le diamant polycristallin (Figure 3.10c), l'intensité Raman présente des fluctuations spatiales marquées, attribuées à la présence de grains aléatoirement orientés et contenant des défauts. À l'inverse, le diamant monocristallin (Figure 3.10d) révèle une distribution d'intensité hautement uniforme.

Cette distinction est également observée au niveau de la FWHM du mode T_{2g} : dans le diamant polycristallin, la FWHM varie entre 3 cm^{-1} et 12 cm^{-1} (avant et après implantation ionique), ce qui reflète des variations locales significatives du désordre cristallin (Figure 3.10e). À l'inverse, le diamant monocristallin ne présente aucune variation mesurable de la FWHM sur l'ensemble du volume analysé, confirmant ainsi sa grande uniformité structurale (Figure 3.10f).

Ces résultats mettent en évidence l'hétérogénéité intrinsèque des échantillons polycristallins. Les cartographies Raman en volume offrent une vision globale de l'intégrité microstructurale des matériaux, révélant des informations inaccessibles par des mesures ponctuelles classiques ou des profils en profondeur linéaires.

En revanche, il convient de souligner qu'il est impossible de constater le changement des spectres au niveau du R_p ($25 \mu\text{m}$) dans le diamant monocristallin à cause de la résolution axiale, qui reste relativement élevée.

La Figure 3.11 montre des spectres Raman du c-GaN SPS (Figure 3.11a), du c-GaN DPS (Figure 3.11b) et du a-GaN (Figure 3.11c), avant implantation. Comme le SiC, le GaN caractérisé par plusieurs modes vibrationnels. L'analyse spectrale réalisée en surface montre que le plan c est caractérisé principalement par un mode TO et un mode LO alors que le plan-a présente deux modes TO et un mode LO.

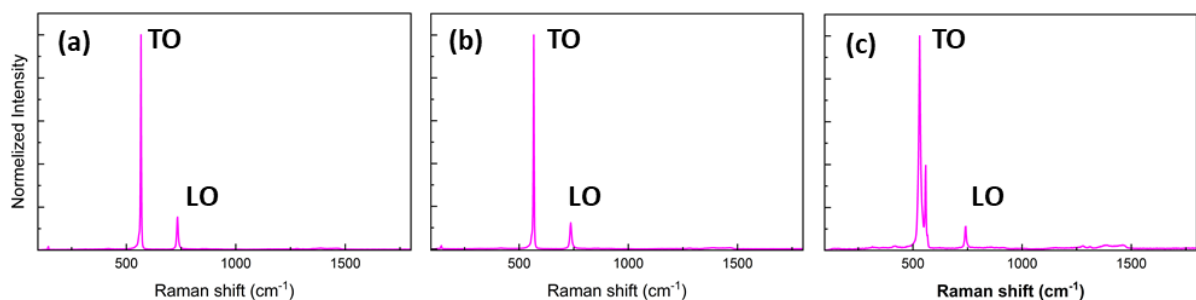


Figure 3.11 : Spectres Raman réalisés sur la surface du **(a)** c-GaN SPS, **(b)** c-GaN DPS et **(c)** a-GaN.

Il est important de rappeler que ce type de spectroscopie est fortement influencé par l'orientation cristallographique et à la polarisation du matériau. Certains modes vibrationnels peuvent apparaître plus intenses selon l'angle entre la polarisation de l'excitation et les axes cristallographiques. Par exemple, les spectres observés sur la Figure 3.11 des échantillons vierges semblent différents soit en intensité, soit en visibilité par rapport aux spectres obtenus

sur la tranche. Ce qui s'explique par l'anisotropie du GaN. En effet, lorsque la polarisation du laser est alignée parallèlement ou perpendiculairement à l'axe cristallographique préférentiel (comme l'axe c), certains modes sont renforcés, atténués, voire non visibles [38] [39]. La Figure 3.12 montre des spectres Raman obtenus sur la tranche du c-GaN SPS (Figure 3.12a), du c-GaN DPS (Figure 3.12b) ainsi que du a-GaN (Figure 3.12c). Les résultats pour le plan a sont cohérents avec ceux obtenus par Haiyong Gao *et al.* [40].

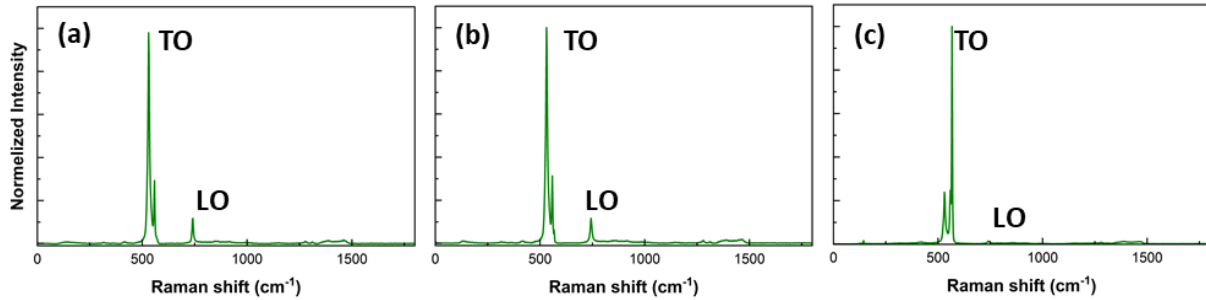


Figure 3.12 : spectres Raman obtenus sur la tranche du **(a)** c-GaN SPS, **(b)** c-GaN DPS et **(c)** a- GaN.

Dans le but de mieux caractériser l'effet des implantations d'hydrogène sur le GaN le long du parcours des protons, une analyse sur la tranche (cross-section) a été menée. Les spectres obtenus sur les échantillons c-GaN DPS et c-GaN SPS étant similaires, seule l'une des deux séries de résultats est présentée ici. Les prédictions de SRIM semblent toutefois cohérentes avec les résultats obtenus par la spectroscopie Raman. Pour le plan c et a, sachant que la valeur de R_p pour le GaN est $\sim 25 \mu\text{m}$.

La Figure 3.13 présente l'évolution des spectres Raman dans le c-GaN (à gauche) ainsi que dans le a-GaN (à droite), sous forme de cartographie en échelle de couleurs représentant les modes TO et LO (nombre d'onde en abscisse, profondeur en ordonnée et intensité Raman en couleur). La comparaison est effectuée pour trois échantillons dans chaque cas :

- Des échantillons non implantés (Figure 3.13a et Figure 3.13d pour les modes TO et LO),
- Des échantillons implantés avec des protons à 2 MeV à une fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (Figure 3.13b et Figure 3.13e pour le c-GaN et a-) et,
- Des échantillons implantés avec des protons à 2 MeV à une fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (Figure 3.13c, Figure 3.13f pour les c-GaN et a- respectivement).

Pour l'échantillon non implanté et celui implanté à faible fluence ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$), l'intensité des modes TO et LO reste constante sur une profondeur d'environ $40 \mu\text{m}$ dans les deux types de GaN. Après implantation à la fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$, on observe une légère diminution de l'intensité dans le c-GaN à une profondeur de $25 \mu\text{m}$, ce qui correspond à la région R_p estimée par la simulation SRIM. De plus, aucun décalage de la position des modes TO et LO n'est observé, ce qui indique l'absence de contraintes locales et confirme que la qualité

structurale du matériau est préservée. Une tendance similaire est observée pour le a-GaN, une diminution très légère de l'intensité des modes est observée à une profondeur de $\sim 25 \mu\text{m}$, sans modification de la position des modes, ce qui confirme l'absence de contraintes locale après une telle implantation.

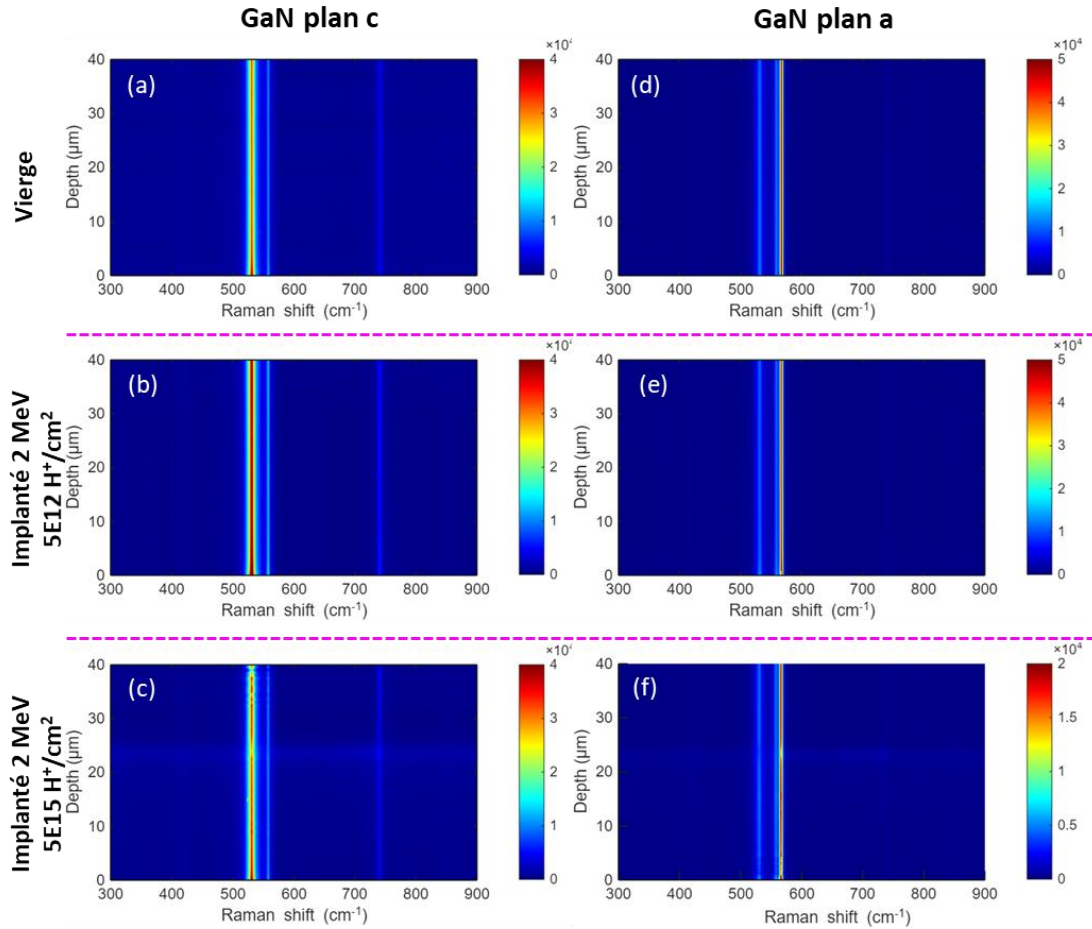


Figure 3.13 : Évolution des spectres Raman dans la profondeur du SiC en fonction du nombre d'onde obtenus sur la tranche du c-GaN : **(a)** avant implantation, et après implantation à 2 MeV et une fluence de : **(b)** $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et **(c)** de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ ainsi que dans le a-GaN : **(d)** avant implantation, et après implantation à 2 MeV et une fluence de : **(f)** $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ **(g)** $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$.

Il apparaît clairement que l'effet de l'implantation n'est détecté par cette technique qu'à partir d'une fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$, essentiellement à travers le découplage du mode LOPC dans le SiC dopé n. En outre, l'analyse sur la tranche demeure l'approche la plus pertinente pour minimiser les limitations imposées par la résolution spectrale ainsi que par l'absorption interne du matériau.

3.4 Étude de l'endommagement par spectroscopie d'annihilation des positons

La spectroscopie d'annihilation de positons permet de sonder des défauts lacunaires dans les solides à des concentrations aussi faibles que 0,01 ppm ($\sim 10^{15} \text{ cm}^{-3}$). Pour cette étude la technique de mesure de l'élargissement Doppler de la raie d'annihilation de positons à

511 keV a été utilisée pour l'évaluation des défauts lacunaires les échantillons de SiC, de diamant et de GaN avant et après implantation à différentes fluences.

3.4.1 Résultats sur le SiC

3.4.1.1 Profil d'implantation des positons

Il est essentiel de connaître le profil d'implantation du positon dans le SiC pour pouvoir évaluer la profondeur sondée par cette méthode. Ce profil peut être décrit par un profil Makhovien (présenté à la section 2.4.4.1 du Chapitre 2).

La Figure 3.14 présente les profils calculés pour différentes énergies incidentes des positons dans le SiC. Ils sont étroits aux faibles énergies et s'élargissent progressivement lorsque l'énergie des positons augmente, ce qui dégrade la résolution en profondeur. Dans le SiC, à l'énergie maximale de 25 keV, les positons sont implantés à une profondeur moyenne d'environ 2,2 μm , avec une profondeur maximale d'implantation d'environ 5 μm .

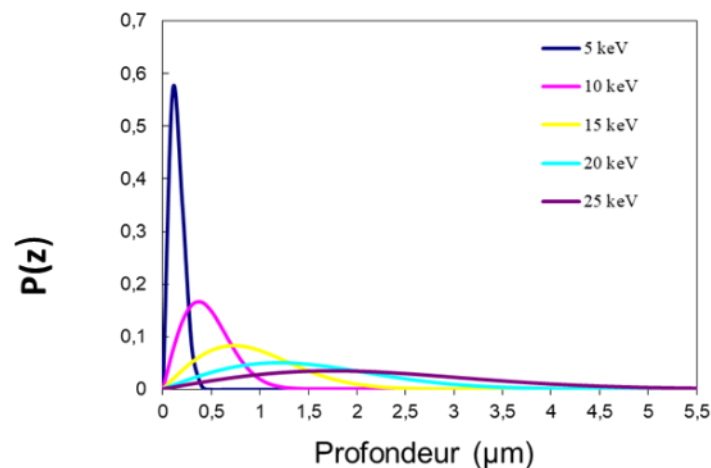


Figure 3.14 : Profil d'implantation des positons dans le SiC pour une énergie incidente variant de 5 keV à 25 keV.

3.4.1.2 Étude de l'échantillon vierge

La Figure 3.15 illustre l'évolution des paramètres S et W en fonction de l'énergie des positons (0–25 keV) mesurés sur l'échantillon vierge. Les paramètres S et W mesurés peuvent être interprétés comme des moyennes pondérées des caractéristiques d'annihilation à la surface et dans le volume de l'échantillon. Le poids des caractéristiques de surface, prépondérant à faible énergie d'incidence des positons, diminue au point de devenir négligeable lorsque l'énergie incidente des positons augmente. Ainsi, on constate l'obtention d'un plateau pour S(E) et W(E) dans la gamme de 13 keV à 25 keV. On peut donc conclure que dans cette dernière, les caractéristiques S et W mesurées sont celles du volume et que notre échantillon est homogène dans la zone sondée.

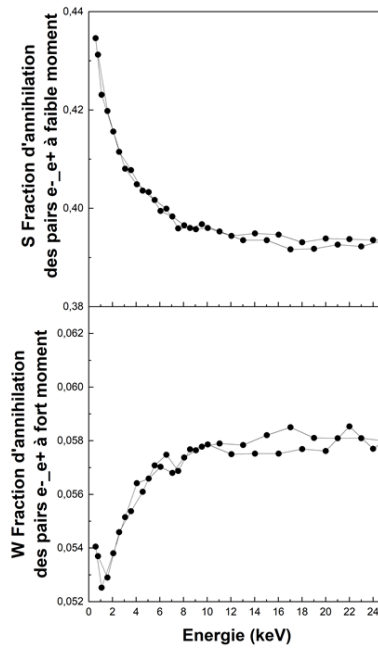


Figure 3.15 : Résultats des mesures de la spectroscopie d'élargissement Doppler sur le n-SiC vierge. La fraction d'annihilation des positons de faible moment S ainsi que la fraction d'annihilation de fort moment W en fonction de l'énergie des positons a été représentée.

Une simulation VEPFIT de ces profils a été effectuée en utilisant un modèle à une seule couche. Les paramètres extraits de cette simulation sont présentés dans le Tableau 3.4. On reporte dans le même tableau les résultats obtenus pour un échantillon vierge de SiC appelé « Ilref2 ». Cet échantillon composé d'une couche épitaxiale de 4 μm déposée sur un substrat de 300 μm a été étudié dans la thèse de L. Henry [41] ainsi que celle X. Kerbirou [42] qui ont notamment que la couche épitaxiée présente les caractéristiques de l'échantillon de SiC sans défauts indiqué dans le Tableau 3.4. On constate que le paramètre S obtenu pour l'échantillon n-SiC vierge est comparable à celui obtenu pour l'échantillon Ilref2. On en conclut que l'échantillon vierge ne présente pas de défauts lacunaires. En revanche, la longueur de diffusion des positons, L_{eff}^+ y est plus courte. La longueur de diffusion des positons joue un rôle clé dans la détection de défauts car elle reflète la capacité des positons à se déplacer librement dans le matériau avant annihilation. En effet, une longueur de diffusion élevée indique généralement un cristal de haute qualité, avec peu ou pas de défauts lacunaires capables de piéger les positons. À l'inverse, une longueur plus courte révèle la présence de défauts qui limitent leur parcours. Dans notre cas, la longueur de diffusion plus courte trouvée dans l'échantillon vierge associée à des caractéristiques S et W du réseau parfait, peut s'expliquer par la présence d'ions négatifs qui peuvent piéger les positons. Ces ions négatifs sont le fait d'impuretés acceptrices dans l'échantillon vierge. Un possible candidat pour ces impuretés est le bore dont la présence a été détectée en PL via la bande donneur-accepteur azote-bore aux alentours de 550 nm [43]. Par ailleurs, on constate que le paramètre W de notre échantillon vierge est légèrement supérieur à celui de Ilref2. Le paramètre W étant un paramètre plus sensible à l'environnement chimique, nous pensons que ce léger décalage est aussi dû à la présence des impuretés.

Tableau 3.4 : Paramètres extraits de VEPFIT pour l'échantillon de SiC vierge et de Ilref 2.

Échantillons	W_{vepfit}	S_{vepfit}	$L_{\text{eff}}^+(\text{nm})$
n-SiC vierge	$0,0568 \pm 0,0018$	$0,3928 \pm 0,0009$	111 ± 16
Ilref2	$0,0571 \pm 0,0001$	$0,3915 \pm 0,0001$	200 ± 5

3.4.1.3 Étude des échantillons implantés

- Profil S(E) et W(E)

Les courbes S(E) et W(E) mesurées dans les échantillons implantés avec une fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ sont présentées dans la Figure 3.16 et comparées à celles de l'échantillon vierge. Ces courbes illustrent clairement l'impact de l'implantation ionique sur la structure cristalline du matériau.

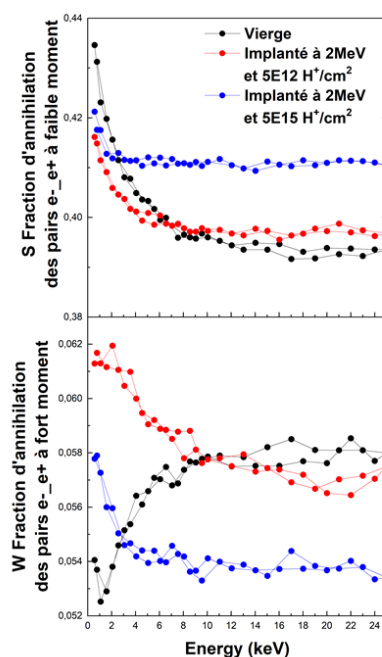


Figure 3.16 : Résultats des mesures de la spectroscopie d'élargissement Doppler sur le n-SiC. La fraction d'annihilation des positons de faible moment S ainsi que la fraction d'annihilation de fort moment W ont été représentées pour des échantillons avant implantation (courbes noires) et après implantation à 2 MeV d'hydrogène avec deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en rouge et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en bleu) en fonction de l'énergie des positons.

On constate l'obtention de plateaux à fortes énergies de positons incidents pour toutes les courbes tracées. Ce plateau est plus rapidement atteint lorsque la fluence d'implantation augmente traduisant le fait que la longueur de diffusion des positons diminue quand la fluence augmente. L'obtention de plateaux met en évidence l'homogénéité dans la zone sondée. Les paramètres S et W mesurés dans ces plateaux peuvent être considérés comme étant caractéristiques de l'annihilation dans le volume des échantillons. Si l'on se focalise sur ces

valeurs, on constate que le paramètre S augmente et le paramètre W diminue avec la fluence d'irradiation, traduisant le fait qu'on génère dans le SiC des défauts lacunaires dont la concentration et/ou la nature change avec la fluence. Dans la partie suivante, on s'intéresse à la nature de ces défauts lacunaires.

- **Nature du défaut lacunaire observé**

La Figure 3.17a est une représentation de S en fonction de W pour les différents échantillons de SiC. Pour cette représentation, nous nous sommes limités aux valeurs de S et W situées sur les plateaux car elles représentent les états d'annihilation dans la zone endommagée volume des échantillons. Ces nuages de points semblent s'aligner sur une droite, ce qui indique à première vue la détection d'un seul type de défauts lacunaires générés dans nos conditions d'irradiation. Afin de vérifier cela, nous avons utilisé le programme VEPFIT afin d'ajuster les courbes expérimentales obtenues par PAS aux courbes théoriques en utilisant un modèle à une couche. Les paramètres extraits de VEPFIT nous ont permis de tracer la représentation donnée dans la Figure 3.17b. Pour celle-ci, les paramètres S et W sont normalisés par rapport à ceux de l'échantillon Ilref2 désignés par l'indice « ref ». Le point caractéristique de la monolacune de silicium chargée négativement (V_{Si}^-), identifié expérimentalement à l'aide de mesures PAS (Doppler et temps de vie) et des études théoriques ([44] [45] [46] [47]) y est aussi reporté. On vérifie ainsi que les points expérimentaux sont alignés sur la droite partant des caractéristiques du réseau de SiC vers celles de la monolacune de Si. Ceci indique que nous observons bien ici la présence de V_{Si}^- dans nos échantillons implantés.

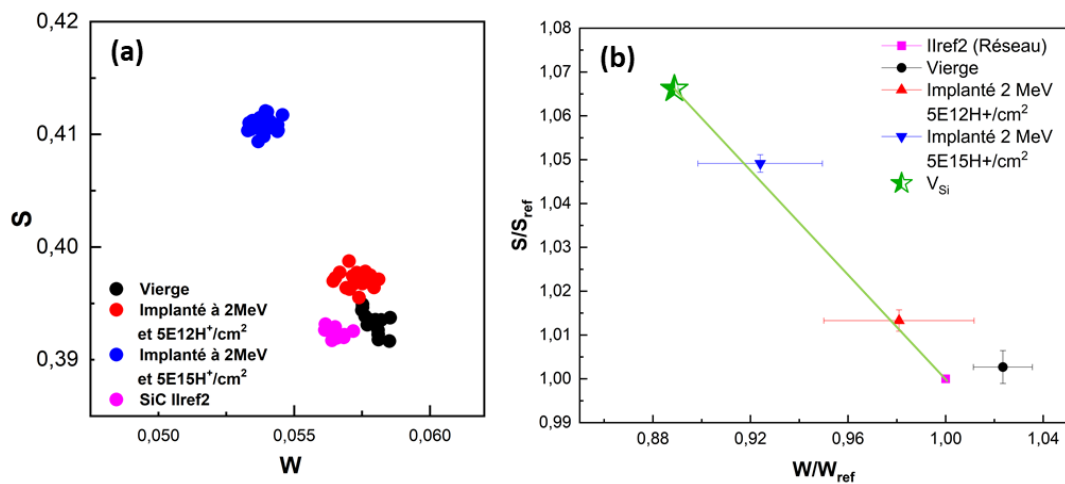


Figure 3.17 : Comparaison des caractéristiques d'annihilation des positons S en fonction de W pour le n-SiC avant et après implantation ainsi que l'échantillon de référence Ilref2. **(a)** représente les valeurs plateau de chaque échantillon. **(b)** Comparaison des caractéristiques d'annihilation des positons S/S_{ref} en fonction de W/W_{ref} pour les échantillons Il ref2 ainsi que l'échantillon 4H-SiC de type n, avant et après implantation d'hydrogène à 2 MeV et deux fluences. Une représentation des défauts connus (V_{Si}) a été ajoutée.

- **Concentration des défauts lacunaires après implantation**

Pour évaluer la concentration de V_{Si}^- dans nos échantillons de SiC implantés à 2 MeV, nous avons utilisé le modèle à deux pièges présenté dans le Chapitre 2. Plusieurs paramètres ont été nécessaires pour cette analyse : les longueurs de diffusion des positons dans les échantillons implantés à $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et à $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ ont été déterminées avec le logiciel VEPFIT à $87 \pm 26 \text{ nm}$ et $9 \pm 3 \text{ nm}$ respectivement, le coefficient de piégeage des positons dans la monolacune de Si ($\mu_{V_{Si}^-}$) a été pris comme étant égal à $6 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$ [44] et le coefficient de diffusion du positon D^+ dans le réseau cristallin a été calculé à $2,8 \text{ cm}^2/\text{s}$ en prenant en compte le temps de diffusion du positon dans le réseau du SiC ($\sim 140 \text{ ps}$) et la longueur de diffusion des positons dans l'échantillon Ilref2 (200 nm). Les résultats obtenus expérimentalement sont comparés à ceux estimés par SRIM ainsi que le nombre de dpa sur une profondeur de 5 μm qui correspond à la région IT (section 3.1.2) dans le Tableau 3.5.

Tableau 3.5 : Concentration des lacunes créées après implantation avec deux fluences. Les résultats expérimentaux ont été comparés à ceux obtenus par SRIM/dpa.

Fluences	$[V_{Si}^-]$ calculée par PAS (cm^{-3})	$[V_{Si}^-]$ calculée par SRIM (cm^{-3})	dpa correspondant
$5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$	$(1,09 \pm 1,04) \times 10^{16}$	$4,68 \times 10^{15}$	$9,65 \times 10^{-8}$
$5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$	$(4,67 \pm 4,15) \times 10^{18}$	$4,68 \times 10^{18}$	$9,65 \times 10^{-5}$

D'après les résultats obtenus, les concentrations des monolacunes V_{Si}^- déterminées par les mesures PAS sont en accord avec les concentrations prédites par SRIM.

3.4.2 Résultats sur le diamant

Pour le diamant, nous avons restreint notre étude au diamant monocristallin car la présence de joints de grain complique l'analyse dans le cas du diamant polycristallin.

3.4.2.1 Profil d'implantation des positons

Les profils d'implantation des positons dans le diamant pour des énergies allant de 5 keV à 25 keV sont montrés dans la Figure 3.18. À l'énergie maximale de 25 keV, les positons s'implantent à une profondeur moyenne d'environ 2 μm et la profondeur maximale d'implantation est vers 4,5 μm .

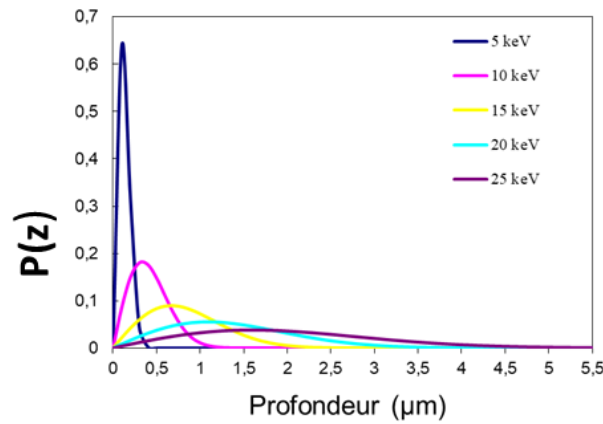


Figure 3.18 : Profil d'implantation des positons dans le diamant pour une énergie incidente variant de 5 keV à 25 keV.

3.4.2.2 Étude des échantillons vierges

La Figure 3.19 illustre l'évolution des paramètres S et W en fonction de l'énergie des positons (0–25 keV) mesurés sur l'échantillon vierge de diamant monocristallin. Lorsque l'énergie incidente des positons augmente, les valeurs de S décroissent et celles de W croissent jusqu'à atteindre des plateaux dans la gamme d'énergie de 17 à 25 keV. Ces plateaux indiquent l'homogénéité de l'échantillon dans la zone sondée.

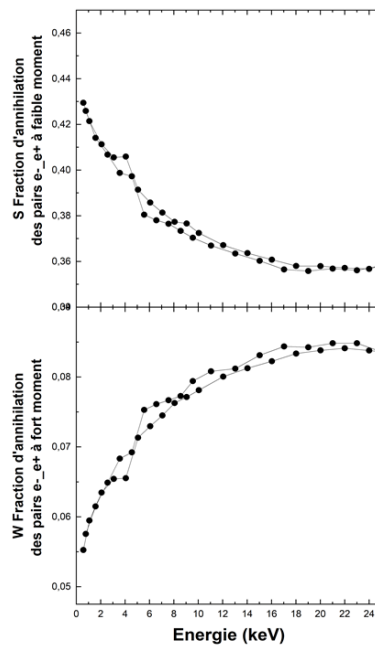


Figure 3.19 : La fraction d'annihilation des positons de faible moment S ainsi que la fraction d'annihilation de fort moment W en fonction de l'énergie des positons a été représenté pour le diamant vierge monocristallin.

Nous avons effectué une simulation VEPFIT de ces données en utilisant le modèle à une couche et les caractéristiques suivantes pour la couche en ont été extraites : $S=0,3542 \pm 0,0011$ et $W=0,0838 \pm 0,0019$ et $L_{eff}^+ = 216 \pm 11$ nm. La longueur de diffusion importante

trouvée est indicatrice d'un semiconducteur sans défauts. Par conséquent, les caractéristiques d'annihilation extraites de VEPFIT pour la couche peuvent être considérées comme étant celles du réseau de diamant (cristal de diamant sans défauts).

3.4.2.3 Étude des échantillons irradiés

- **Profils S(E) et W(E)**

Les courbes de S(E) et W(E) mesurés sur le diamant monocristallin, avant et après implantation avec des protons de 2 MeV aux fluences de $5 \times 10^{12} \text{H}^+/\text{cm}^{-2}$ et $5 \times 10^{15} \text{H}^+/\text{cm}^{-2}$, sont représentés dans la Figure 3.20. Dans tous les cas, le paramètre S diminue et le paramètre W augmente avec l'énergie incidente des positons pour atteindre des plateaux aux plus fortes énergies. Ces plateaux reflètent l'homogénéité des échantillons dans la zone sondée. Si on s'intéresse aux valeurs de S et W sur les plateaux, on constate qu'il n'y a pas d'évolution sensible de ces valeurs par rapport à celles de l'échantillon vierge à la plus faible fluence. En revanche à la plus forte fluence le paramètre S augmente et le paramètre W diminue ce qui atteste de la création de défauts lacunaires dans ces conditions d'irradiation.

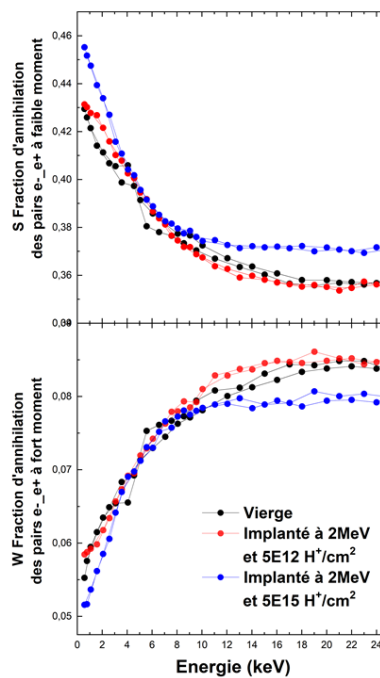


Figure 3.20 : Caractéristiques d'annihilation de positon à faible moment en fonction de l'énergie des positons et de la fraction d'annihilation à fort moment W dans le diamant monocristallin. L'analyse a été conduite sur des échantillons vierges (en noire) et après implantation à 2 MeV et deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{H}^+/\text{cm}^{-2}$ en rouge et $5 \times 10^{15} \text{H}^+/\text{cm}^{-2}$ en bleu).

- **Nature des défauts lacunaires**

La Figure 3.21a présente le tracé de S en fonction de W pour l'échantillon vierge et les échantillons implantés de diamant monocristallin. Les valeurs (S, W) représentées ici sont celles situées sur les plateaux des courbes S(E) et W(E).

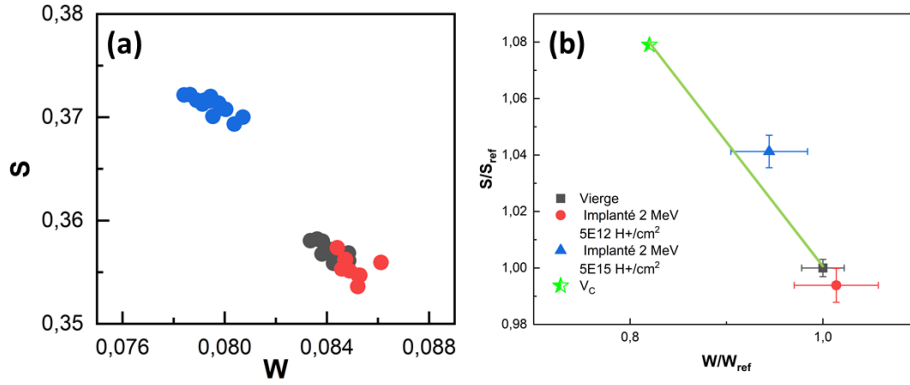


Figure 3.21 : (a) Caractéristiques d'annihilation de positon à faible moment en fonction de la fraction d'annihilation à fort moment W dans le diamant monocristallin, et (b) La fraction d'annihilation normalisée à faible moment S/S_{ref} en fonction de la fractions d'annihilation a fort moment W/W_{ref} des positons pour les échantillons diamant monocristallin. L'analyse a été conduite sur des échantillons vierges (en noire) et après implantation à 2 MeV et deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en rouge et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en bleu).

Les ajustements des données des différents échantillons présentés ont été réalisés à l'aide du logiciel VEPFIT en se basant sur un modèle à une couche, ce qui nous a permis de tracer la représentation de la Figure 3.21b. Pour cette dernière, les valeurs de S et W extraites de VEPFIT ont été normalisées par rapport à celles de l'échantillon vierge (S_{ref} , W_{ref}). On constate ainsi que les points tracés s'alignent sur une droite partant du point de l'échantillon vierge jusqu'au point identifié dans la littérature comme caractéristique de la monolacune dans le diamant (V_C) [48]. Ces mesures PAS mettent donc en évidence la création de V_C par l'irradiation. L'état de charge neutre et négatif sont deux états possibles pour la monolacune détectée. Cependant, nos échantillons de diamant monocristallin étant non dopés, nous concluons que la monolacune est ici de charge neutre (V_C^0). Ceci est conforme avec l'absence en PL de l'émission ND1 (située vers 393,5 nm) caractéristique de la monolacune de charge négative et l'observation de la bande associée à V_C^0 dans le spectre d'absorbance du diamant irradié à la plus haute fluence. Par ailleurs, nous ne pouvons exclure la présence de la bilacune (observée en PL) en plus de la monolacune dans l'échantillon irradié à la plus haute fluence comme cela a été observé dans la référence [48] pour des diamants irradiés aux protons à 2,4 MeV dans cette gamme de fluences. Cependant comme la fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ est proche de la fluence seuil ($\sim 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$) où ces bilacunes ont été observés, nous concluons que la contribution éventuelle des bilacunes dans les caractéristiques d'annihilation mesurées est marginale.

- **Concentration des défauts lacunaires après implantation**

Pour évaluer la concentration de la monolacune neutre dans notre échantillon de diamant irradié à la plus haute fluence, nous avons utilisé un modèle à un piège. Pour cette estimation, le coefficient de piégeage des positons par la monolacune μ_V a été pris à 10^{15} s^{-1} [49] et le taux d'annihilation des positons dans le réseau λ_L est pris comme égal à 10 ns^{-1} [50]. Ainsi une

concentration de V_C^0 de $(1,87 \pm 0,79) \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ dans l'échantillon, ce qui est cohérent avec la concentration de $7,07 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ de V_C^0 ($= 4,4 \times 10^{-5} \text{ dpa}$) donnée par SRIM dans la zone sondée comme on peut le constater sur le Tableau 3.6.

Tableau 3.6 : concentration des lacunes créées dans le diamant après implantation avec deux fluences. Les résultats expérimentaux ont été comparés à ceux obtenus par SRIM/dpa.

Fluences	$[V_c]$ calculée par PAS (cm^{-3})	$[V_c]$ calculée par SRIM (cm^{-3})	dpa correspondants
$5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^{-2}$	—	$7,07 \times 10^{15}$	$4,01 \times 10^{-8}$
$5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^{-2}$	$(1,87 \pm 0,79) \times 10^{18}$	$7,07 \times 10^{18}$	$4,01 \times 10^{-5}$

3.4.3 Résultats sur le GaN

Dans ce qui suit, les mesures PAS se sont portées sur trois types de GaN (le c-GaN SPS, le c-GaN DPS et le a-GaN).

3.4.3.1 Profil d'implantation des positons

Les profils d'implantation des positons dans le GaN sont représentés dans la Figure 3.22 pour des énergies allant de 5 keV à 25 keV. À l'énergie maximale de 25 keV, les positons s'arrêtent à une profondeur moyenne d'environ 1 μm , la profondeur maximale d'implantation étant vers 2,5 μm .

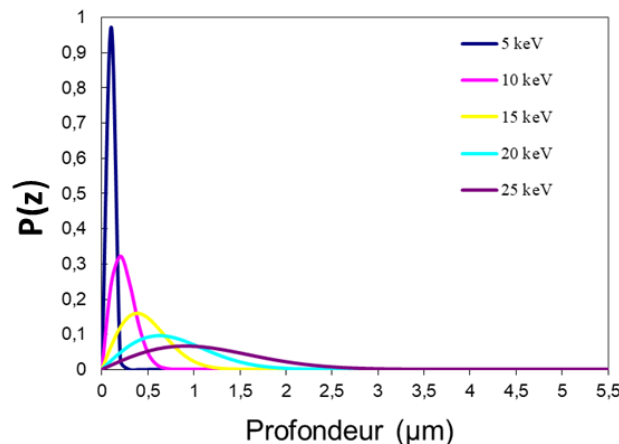


Figure 3.22 : Profil d'implantation des positons dans le GaN pour une énergie incidente variant de 5 keV à 25 keV.

3.4.3.2 Étude des échantillons vierges

Les profils $S(E)$ et $W(E)$ des différents échantillons vierges de GaN sont donnés dans la Figure 3.23. On constate que, selon l'orientation cristallographique, des similitudes et des différences notables existent. Pour les échantillons orientés selon le plan c (c-GaN), la variation de S et de W est similaire. Une diminution rapide du paramètre S parallèlement à une augmentation de W est observée dans la plage d'énergies de 0 à environ 16 keV et 0 à environ 20 keV pour le c-GaN DPS et SPS, respectivement, suivie ensuite d'un régime de plateau caractéristique de

l'annihilation des positons dans le volume. Toutefois, pour l'échantillon de a-GaN, on constate la décroissance de S (augmentation de W) et le plateau est atteint à partir de 13 keV, ce qui peut être attribué une longueur de diffusion des positons légèrement plus courte dans cet échantillon.

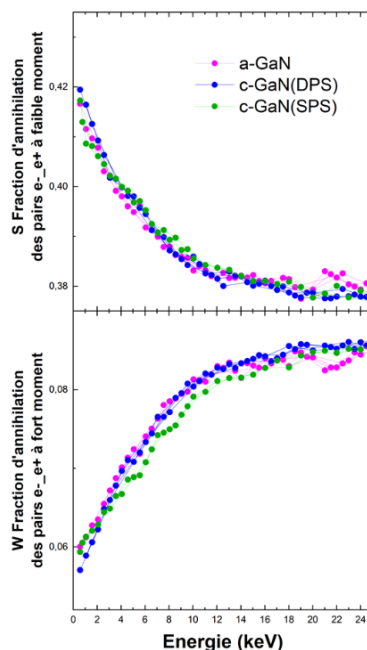


Figure 3.23 : La fraction de faible moment S ainsi que la fraction d'annihilation de fort moment W en fonction de l'énergie des positons a été représentée pour le GaN vierge : plan c SPS (courbe verte), plan c DPS (courbe bleue) et plan a (courbe rose).

Le Tableau 3.7 résume les caractéristiques d'annihilation dans le volume de ces échantillons vierges extraites des simulations VEPFIT en utilisant un modèle à une couche.

Tableau 3.7 : Caractéristiques d'annihilation des positons obtenus par VEPFIT dans les échantillons de GaN vierges.

Echantillons	W_{veffit}	S_{veffit}	$L_{\text{eff}}^+(\text{nm})$
c-GaN SPS	$0,0858 \pm 0,0020$	$0,3772 \pm 0,0012$	159 ± 15
c-GaN DPS	$0,0859 \pm 0,0013$	$0,3776 \pm 0,0008$	103 ± 8
a-GaN	$0,0844 \pm 0,0013$	$0,3796 \pm 0,0007$	90 ± 9

La longueur de diffusion importante ($= 159 \text{ nm}$) obtenue pour le c-GaN SPS nous fait conclure qu'il peut être considéré comme sans défauts. Par conséquent, les paramètres S et W correspondants extraits de VEPFIT peuvent être considérés comme étant ceux du réseau (cristal sans défaut). Les longueurs de diffusion plus courtes dans le a-GaN et le c-GaN DPS montrent qu'il existe dans ces échantillons des défauts capables de piéger les positons. Or, le paramètre S et W mesurés dans ces échantillons étant les mêmes que ceux trouvés dans l'échantillon de c-GaN, nous concluons que les pièges présents ne sont pas des défauts

lacunaires mais plutôt des ions négatifs dû à la présence d'impuretés de type accepteur dans les échantillons de GaN. Bien que le silicium soit l'impureté dominante responsable de la conductivité type n dans nos échantillons, des impuretés telles que le carbone, l'oxygène ainsi que l'hydrogène peuvent également être présentes [51]. Toutefois, généralement le carbone substituant l'azote (C_N) est celui qui agit comme un accepteur profond dans le GaN [52].

3.4.3.3 Étude des échantillons implantés

- **Profil $S(E)$ et $W(E)$**

Les profils $S(E)$ et $W(E)$ des échantillons de GaN implantés sont présentés dans la Figure 3.24. Pour l'échantillon de c-GaN SPS (Figure 3.24a), après implantation à basse fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ (courbe rouge), on obtient un plateau à partir de 12 keV pour S et W . Pour la même fluence échantillons de GaN plan c DPS et plan a (Figure 3.24b et Figure 3.24c) présentent des profils qui tendent vers un plateau sans l'atteindre dans la gamme des énergies incidentes utilisées. Par ailleurs, le a-GaN présente un profil $S(E)$ et $W(E)$ qui suggère une couche proche de la surface qui possède des caractéristiques d'annihilation différentes de celles du volume de l'échantillon. Nous attribuons cette hétérogénéité à un défaut inhérent à l'échantillon de GaN utilisé. A haute fluence ($5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$, représenté par les courbes bleues), tous les échantillons présentent des profils qui atteignent un plateau dès environ 3 keV attestant de l'homogénéité de la zone sondée. Si on s'intéresse globalement aux valeurs de S et W aux fortes énergies incidentes de positons, on constate que le paramètre S augmente et le paramètre W diminue mettant ainsi en évidence la création de défauts lacunaires dans ces échantillons implantés.

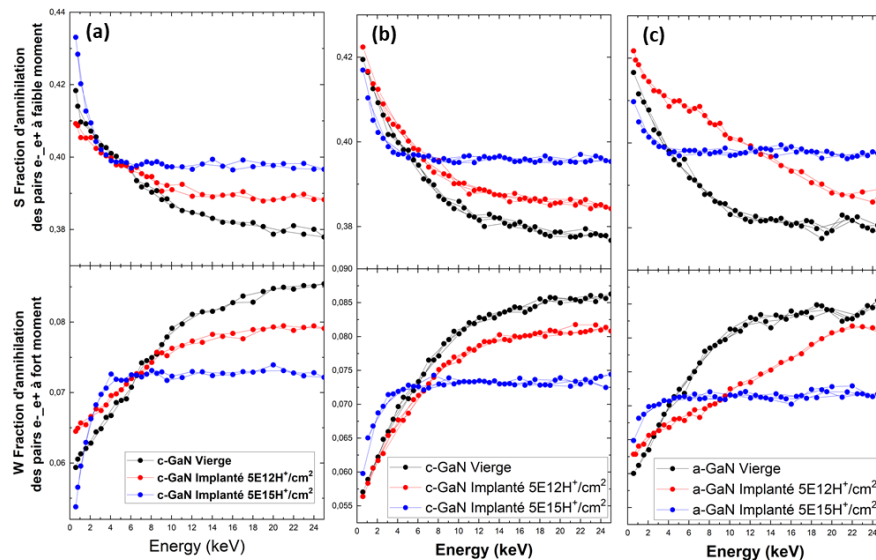


Figure 3.24 : caractéristiques d'annihilation de positons à faible moment S et à fort moment W polycristallin en fonction de l'énergie des positons dans : **(a)** le c-GaN SPS et **(b)** le c-GaN DPS et **(c)** le a-GaN. L'analyse a été conduite sur des échantillons vierges (en noire) et après implantation à 2 MeV et deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en rouge et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ en bleu).

• Nature des défauts lacunaires

Comme pour le SiC et le diamant, VEPFIT a été utilisé pour déterminer les caractéristiques d'annihilation dans le volume (zone endommagée) pour les différents échantillons de GaN. Pour cela, nous avons utilisé un modèle à une couche sauf dans le cas de l'échantillon de a- GaN irradié à $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ pour lequel nous avons utilisé un modèle à deux couches pour pouvoir mieux ajuster nos données expérimentales avec une première couche de 70 nm d'épaisseur et une couche sous-jacente dont les caractéristiques d'annihilation sont celles que nous retenons. La Figure 3.25 montre les représentations de S/S_{ref} en fonction de W/W_{ref} pour les différents échantillons de GaN. Les valeurs de S_{ref} et W_{ref} sont celles extraites de VEPFIT pour les échantillons vierges correspondants. Le point identifié comme caractéristique de l'annihilation dans la monolacune de Gallium V_{Ga} [53] est aussi reporté dans les différents graphiques. Pour chaque matériau, une droite peut être tracée entre le point correspondant à l'échantillon vierge (servant de référence) et le point caractéristique de V_{Ga} . On observe que les points correspondant aux échantillons implantés à faible fluence (en rouge), ainsi qu'à forte fluence, s'alignent globalement sur cette droite. L'alignement sur la direction de V_{Ga} constitue donc un indicateur clair que c'est le défaut lacunaire qui est majoritairement détecté dans ces conditions. Ceci est en accord avec d'autres études qui montrent la prédominance de ce type de défauts détectés par la même méthode sur des échantillons obtenus par HVPE [54] ainsi que sur des échantillons implantés au fluor à une énergie de 180 keV et une fluence de $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ [55]. Par ailleurs, en se basant sur les calculs théoriques de la référence [56] et les résultats expérimentaux de la référence [54], le dopage de type n des échantillons de GaN nous fait conclure que l'état de charge des monolacunes de Gallium détectés est négatif (V_{Ga}^{3-}).

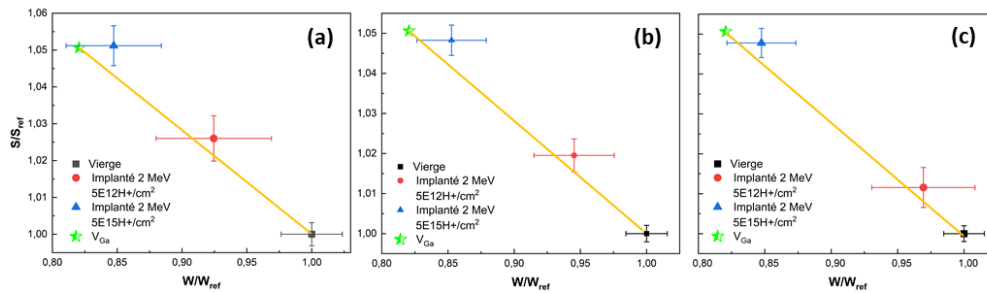


Figure 3.25 : Fraction d'annihilation normalisée à faible moment S/S_{ref} en fonction de la fraction d'annihilation à fort moment W/W_{ref} des positons pour les échantillons GaN **(a)** plan c SPS, **(b)** plan c DPS et **(c)** plan a, avant et après implantation d'hydrogène à 2 MeV et deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$, $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$). Une représentation de V_{Ga} connue a été ajoutée pour chaque échantillon.

• Concentration des défauts lacunaires

Pour évaluer la concentration de V_{Ga} dans nos échantillons de GaN irradiés, nous avons utilisé un modèle à un piège pour les échantillons c-GaN SPS et DPS et un modèle à deux pièges pour l'échantillons de a-GaN. Les caractéristiques d'annihilation mesurées dans les échantillons

irradiés à la plus forte fluence sont très proches de celles déterminées pour la lacune V_{Ga} . Cela nous indique qu'on y est à saturation de piégeage des positions dans la monolacune de Ga, il nous est donc pas possible d'en extraire les concentrations de ces pièges. Nos estimations se limitent donc aux échantillons irradiés à la fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$. Pour cette estimation, le coefficient de piégeage des positons par la monolacune de Gallium a été pris à $3 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$ [57], le taux d'annihilation des positons dans le réseau λ_L est pris comme égal à $6,25 \text{ ns}^{-1}$ [57]. Le coefficient de diffusion des positons dans le GaN, calculé à partir de λ_L et la longueur de diffusion des positons c-GaN SPS, a été trouvé à $1,6 \text{ cm}^2/\text{s}$. Cette valeur est comparable à celle déterminée par Sukit Limpijumnong et al. [11] qui indiquent une valeur de $\sim 1 \text{ cm}^2/\text{s}$ pour le GaN. En 2017 [58], des chercheurs ont réalisé des mesures PAS pour détecter les défauts dans le GaN, avec des estimations indirectes de $D \approx 1 \text{ cm}^2/\text{s}$ sans distinction claire entre les plans a et le plan c. D'autres analyses réalisées sur le AlN et le GaN en 2021 [59] suggèrent les mêmes valeurs pour les deux plans a et c, avec peu de différence en raison de la structure wurtzite similaire. Les concentrations calculées sont résumées dans le Tableau 3.8 et comparées aux résultats SRIM (avec les dpa).

Tableau 3.8 : Concentration des lacunes estimées dans le c-GaN SPS, le c-GaN SPS et le a-GaN après implantation d'hydrogène à différentes fluences expérimentalement et par SRIM. Les dpa créés dans la zone sondée a été calculé.

Échantillons	Fluences (H^+/cm^2)	$[V_{Ga}]$ calculée par PAS (cm^{-3})	$[V_{Ga}]$ calculée par SRIM (cm^{-3})	Dpa
c-GaN SPS	5×10^{12}	$(1,74 \pm 1,17) \times 10^{17}$	$4,12 \times 10^{15}$	$1,14 \times 10^{-7}$
	5×10^{15}	Saturation	$4,12 \times 10^{18}$	$1,14 \times 10^{-4}$
c-GaN DPS	5×10^{12}	$(1,15 \pm 0,74) \times 10^{17}$	$4,12 \times 10^{15}$	$1,14 \times 10^{-7}$
	5×10^{15}	Saturation	$4,12 \times 10^{18}$	$1,14 \times 10^{-4}$
a-GaN	5×10^{12}	$(2,10 \pm 1,31) \times 10^{17}$	$4,12 \times 10^{15}$	$1,14 \times 10^{-7}$
	5×10^{15}	Saturation	$4,12 \times 10^{18}$	$1,14 \times 10^{-4}$

Les concentrations de V_{Ga} estimées à partir des données PAS dans les trois types de GaN irradiés à $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ sont comparables et sont de l'ordre de $\sim 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Cependant, ces concentrations sont bien supérieures aux concentrations prédites par SRIM à cette fluence. Ceci est probablement lié au coefficient de piégeage utilisé dans cette étude. En effet, les rares travaux réalisés pour la détermination de ce coefficient montrent des valeurs variant de $1 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$ à $3 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$ [60] [57]. Dans notre cas, nous avons utilisé un coefficient de $3 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$. Cette valeur reste proche de celle généralement utilisée pour les lacunes neutres dans les semiconducteurs. Étant donné la charge triple négative de la monolacune de gallium (V_{Ga}^{3-}) et sachant que pour des défauts négatifs le coefficient de piégeage est généralement plus élevé, il est probable qu'une valeur différente de celle que nous avons utilisé serait plus appropriée. Par exemple, nous avons également observé que lorsque le coefficient de piégeage est pris égal à celui du SiC, la concentration des lacunes atteint $(1,05 \pm 0,65) \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, ce qui serait cohérent avec les résultats SRIM. Ainsi, nous émettons des réserves par rapport aux estimations par PAS des concentrations de monolacunes de

gallium dans les échantillons de GaN en raison du faible nombre d'études dans la littérature qui permettent d'affirmer de façon solide le coefficient de piégeage des positons par ces défauts.

3.4.4 Bilan de la PAS

La spectroscopie d'annihilation des positons nous a permis de mettre en évidence la création de la monolacune V_{Si} (de charge négative) dans le SiC, la monolacune V_C (neutre dans ce cas) dans le diamant et la monolacune de gallium V_{Ga} (de charge négative) dans le GaN dans nos conditions d'irradiation.

Les concentrations calculées dans les différents matériaux pour une irradiation aux protons à 2 MeV aux fluences de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ sont résumées dans le Tableau 3.9.

Les résultats montrent que le diamant est celui qui a le moins de lacunes par rapport au GaN et au SiC à même fluence d'implantation.

Tableau 3.9 : Concentration des défauts en utilisant un modèle de piégeage spécifique à chaque matériau après implantation à 2 MeV d'hydrogène et aux fluences de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$.

Échantillons	SiC	Diamant	c-GaN SPS	c-GaN DPS	a-GaN
Types de défauts	V_{Si}	V_C	V_{Ga}	V_{Ga}	V_{Ga}
[V] à la fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2 \times (10^{17} \text{ cm}^{-3})$	$0,11 \pm 0,10$	< Seuil de détection	$1,74 \pm 1,17$	$1,15 \pm 0,74$	$2,10 \pm 1,31$
[V] à la fluence de $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2 \times (10^{18} \text{ cm}^{-3})$	$4,67 \pm 4,15$	$1,87 \pm 0,79$	Saturation	Saturation	Saturation

D'après les concentrations des V_{Ga} estimées sur le GaN, il est clair que l'orientation selon un plan cristallographique peut avoir un impact significatif sur la concentration des défauts. En effet, plusieurs études [61] [57] ont montré que la polarité de la surface joue un rôle déterminant dans la capture des impuretés et l'apparition corrélée de défauts associés. Celles-ci ont mis en évidence que la polarité N favorise largement l'incorporation d'impuretés telles que C, O et Al, ainsi que la formation de lacunes de gallium, contrairement à la polarité Ga. Il est donc raisonnable d'étendre ce raisonnement aux plans non polaires, tels que le plan a (11-20). Bien que ces surfaces n'exhibent pas de polarisation spontanée le long de la direction de croissance, leur reconstruction atomique particulière et leur forte densité de défauts structuraux, notamment les fautes d'empilement [62], peuvent créer des sites réactifs favorisant la diffusion locale des impuretés.

3.5 Bilan du chapitre

Ce chapitre présente la première étape pour le choix du matériau le plus adapté qui sera utilisé comme radiateur dans un détecteur Cherenkov. L'objectif principal était de sélectionner un matériau qui soit à la fois capable d'émettre la lumière bleue (effet Cherenkov), et suffisamment résistant aux irradiations pour maintenir ses propriétés optiques et structurales sous exposition prolongée aux particules et donc pour une émission efficace.

L'analyse post-implantation des échantillons par les différentes techniques de caractérisation complémentaires a permis de cartographier les défauts créés dans chaque semi-conducteur après implantation aux protons à basse énergie. Ces méthodes, sensibles à des profondeurs variables comme illustré sur la Figure 3.26, offrent une vision complémentaire des défauts : la PAS et la PL sondent une zone proche de la surface, tandis que l'UV-Visible et le Raman explorent des volumes plus profonds. Ceci permet de sonder une large gamme de dpa allant de la zone IT à la zone Rp.

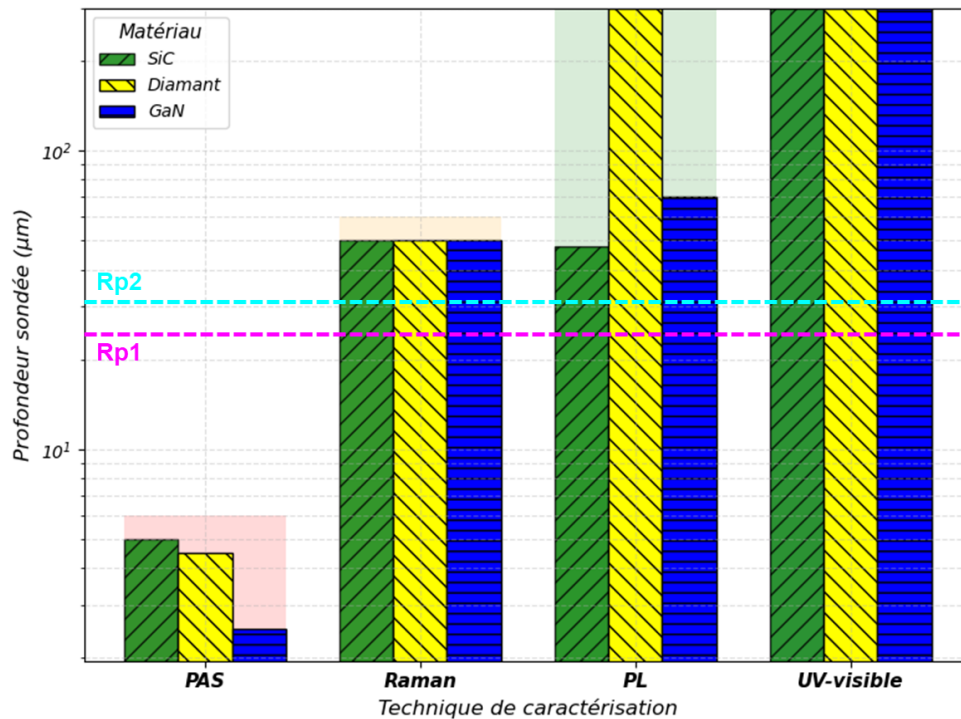


Figure 3.26 : Comparaison de la profondeur sondée selon les techniques de caractérisations et les différents matériaux. Rp_1 et Rp_2 correspondent à la profondeur de pénétration des protons de 2 MeV dans le GaN et le diamant (25μm) ainsi que le SiC (32μm), respectivement.

La spectroscopie UV-visible nous a permis tout d'abord d'étudier l'effet global de l'absorption des échantillons dans le domaine du visible. Ainsi il a été démontré qu'un SiC de type n présente une absorption à 460 nm qui correspond à la longueur d'onde du bleu. Ceci compromet son utilisation comme radiateur Cherenkov. Comparativement au diamant polycristallin, le diamant monocristallin a montré une meilleure transmission optique,

probablement en raison de l'absence de joints de grains susceptibles d'absorber la lumière. Le GaN (plans a et c) a présenté un comportement similaire à celui du diamant sauf qu'après l'implantation à $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ une bande d'absorption légère apparaît à 450 nm. Dans la littérature celle-ci est attribuée à la lacune de Ga.

Les mesures de photoluminescence ont apporté des informations complémentaires sur les défauts induits dans les différents matériaux étudiés. Dans le SiC, deux bandes de luminescence situées autour de 500 nm et 650 nm, attribuée à des défauts natifs, caractérisent les échantillons avant et après implantation, pour les deux fluences testées. Pour les deux types de diamant, en plus de l'émission caractéristique du centre NV observée à 575 nm, une faible émission apparaît après implantation à haute fluence, autour de 470 nm. Cette dernière est attribuée au défaut TR12, associé à des lacunes de carbone (V_C) complexées à des interstitiels de carbone, confirmant la création de défauts d'irradiation spécifiques. Enfin, dans le cas du GaN, en dehors de l'émission bande à bande, aucune autre bande ou pic de luminescence lié à des défauts ou impuretés n'a été détecté dans le domaine spectral de l'effet Cherenkov, suggérant une bonne stabilité optique du matériau vis-à-vis des implantations.

La spectroscopie Raman effectuée sur du SiC irradié a révélé la restauration du mode phonon optique longitudinal (LO) dans la région de fin de parcours R_p , indiquant une compensation efficace du dopage donneur par les défauts induits par l'irradiation. Par ailleurs, aucune modification n'a été observée ni dans le diamant polycristallin, ni dans le diamant monocristallin. Les spectres Raman à 1332 cm^{-1} sont restés nets et symétriques, ce qui indique qu'aucun changement structural significatif ni défaut induit par l'irradiation n'a été détecté par cette technique. Dans le GaN, le même comportement a été identifié sur les deux plans utilisés. Une baisse d'intensité a été enregistrée après implantation à forte fluence au R_p .

À l'échelle nanométrique, la spectroscopie d'annihilation de positons (PAS) a permis d'évaluer avec précision la nature et la concentration des défauts ponctuels induits en surface après l'implantation d'hydrogène à deux fluences différentes. Dans le cas du SiC, la lacune de silicium a été identifiée comme étant le défaut majoritaire selon l'analyse des fonctions $S(W)$, une concentration significative de lacunes de silicium (V_{Si}) a été détectée. Concernant le diamant, les résultats varient selon la structure cristalline. Dans le diamant monocristallin, aucun défaut n'a été détecté à basse fluence, suggérant une bonne résistance initiale à l'irradiation. Toutefois, à plus haute fluence, la présence de défauts lacunaires neutres ont été mis en évidence. Enfin, dans le GaN, les mesures ont révélé que la lacune de gallium (V_{Ga}) constitue le défaut prédominant après implantation, confirmant ainsi les observations de l'UV-visible. Sa concentration a été évaluée supérieur dans le a-GaN, ce qui nous fait penser que l'orientation cristallographique joue un rôle dans la concentration des défauts. Toutefois, les résultats obtenus après implantation à une fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ permettent d'estimer les concentrations de défauts correspondant à un niveau de déplacement par atome ($dpa \sim 10^{-8}$) proche de la valeur d'intérêt de cette étude ($\sim 10^{-9}$).

Ces résultats soulignent l'intérêt de la complémentarité des techniques pour la détection sensible et localisée de défauts.

Le Tableau 3.10 résume les défauts et modifications détectés dans des échantillons (SiC, diamant et GaN) avant et après implantation à une fluence de $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ par les diverses techniques de caractérisation employées.

Tableau 3.10 : Défauts détectés dans le SiC, le diamant et le GaN par les différentes techniques de caractérisation dans les échantillons vierges et implantés avec une énergie de 2 MeV d'hydrogène et deux fluences ($5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ et $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$).

Échantillons		Défauts détectés par les techniques de caractérisations			
		UV-Visible	PL	Raman	PAS
SiC	Vierge	Abs (due à N)	DAP		
	Implanté $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$	Abs (due à N)	DAP		$V_{Si} [(1,09 \pm 1,04) \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}]$
	Implanté $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$	Abs (due à N)	DAP	Stresse (mode LO/LOPC) montre la présence de défauts accepteur	$V_{Si} [(4,67 \pm 4,15) \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}]$
Diamant	Vierge		NV^0		
	Implanté $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$		NV^0		
	Implanté $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$	V_C	NV^0 , TR12		$V_C [(1,87 \pm 0,79) \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}]$
GaN	Vierge				
	Implanté $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$				$V_{Ga} [(1,15 \pm 0,74) \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}]$
	Implanté $5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$	V_{Ga}		Stress (mode TO)	$V_{Ga} \gg V_{Ga}$ (à $5 \times 10^{12} \text{ H}^+/\text{cm}^2$)

Tous les semiconducteurs étudiés présentent des défauts qu'ils soient natifs ou induit par irradiation. Toutefois, nous constatons qu'à faible dpa ($\sim 10^{-9}$) proche de notre domaine d'intérêt, le diamant et le SiC sont ceux qui présentent la concentration la plus faible par rapport au GaN. Cependant il est clair que d'une part, le SiC dopé n ne peut être utilisé comme radiateur et que d'autre part le diamant monocristallin et le GaN présentent les meilleures performances en termes de stabilité structurale, de transparence optique dans le visible à basse fluence. Ces derniers apparaissent donc comme les plus favorables pour une intégration dans un détecteur Cherenkov fonctionnant dans un environnement à haute énergie d'irradiation.

Références

- [1] R. Weingärtner, P. J. Wellmann, M. Bickermann, D. Hofmann, T. L. Straubinger, et A. Winnacker, « Determination of charge carrier concentration in *n* - and *p* -doped SiC based on optical absorption measurements », *Applied Physics Letters*, vol. 80, n° 1, p. 70-72, janv. 2002, doi: 10.1063/1.1430262.
- [2] P. J. Wellmann, R. Weingärtner, M. Bickermann, T. L. Straubinger, et A. Winnacker, « Optical quantitative determination of doping levels and their distribution in SiC », *Materials Science and Engineering: B*, vol. 91-92, p. 75-78, avr. 2002, doi: 10.1016/S0921-5107(01)00976-X.
- [3] V. P. Amarasinghe, L. Wielunski, A. Barcz, L. C. Feldman, et G. K. Celler, « Optimization of H⁺ Implantation Parameters for Exfoliation of 4H-SiC Films », *ECS Trans.*, vol. 50, n° 7, p. 341-348, mars 2013, doi: 10.1149/05007.0341ecst.
- [4] A. A. Gippius, R. A. Khmel'nitsky, V. A. Dravin, et A. V. Khomich, « Defect-induced graphitisation in diamond implanted with light ions », *Physica B: Condensed Matter*, vol. 308-310, p. 573-576, déc. 2001, doi: 10.1016/S0921-4526(01)00738-4.
- [5] R. G. Farrer, « On the substitutional nitrogen donor in diamond », *Solid State Communications*, vol. 7, n° 9, p. 685-688, mai 1969, doi: 10.1016/0038-1098(69)90593-6.
- [6] K. Meykens *et al.*, « Optical absorption and cathodoluminescence in homoepitaxially grown CVD diamond films », *Diamond and Related Materials*, vol. 5, n° 9, p. 958-963, juill. 1996, doi: 10.1016/0925-9635(95)00488-2.
- [7] Y. Meng *et al.*, « Enhanced optical properties of chemical vapor deposited single crystal diamond by low-pressure/high-temperature annealing », *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, vol. 105, n° 46, p. 17620-17625, nov. 2008, doi: 10.1073/pnas.0808230105.
- [8] J. Quirk, M. Rothmann, W. Li, D. Abou-Ras, et K. P. McKenna, « Grain boundaries in polycrystalline materials for energy applications : First principles modeling and electron microscopy », *Applied Physics Reviews*, vol. 11, n° 1, p. 011308, mars 2024, doi: 10.1063/5.0175150.
- [9] M. Sall, *Irradiation par des ions de grande énergie de semiconducteurs III-N (AlN, GaN, InN) : création de défauts ponctuels et étendus*, Ph.D. dissertation, Université de Caen Basse-Normandie, Caen, France, Nov. 2013.
- [10] S. Pimputkar, « Gallium nitride », in *Single Crystals of Electronic Materials*, Elsevier, 2019, p. 351-399. doi: 10.1016/B978-0-08-102096-8.00011-2.
- [11] G. Alfieri, E. V. Monakhov, B. G. Svensson, et A. Hallén, « Defect energy levels in hydrogen-implanted and electron-irradiated n-type 4H silicon carbide », *Journal of Applied Physics*, vol. 98, n° 11, p. 113524, déc. 2005, doi: 10.1063/1.2139831.
- [12] J. Homberger, A. B. Lostetter, K. J. Olejniczak, T. McNutt, S. M. Lal, et A. Mantoosh, « Silicon-carbide (SiC) semiconductor power electronics for extreme high-temperature environments », in *2004 IEEE Aerospace Conference Proceedings (IEEE Cat. No.04TH8720)*, Big Sky, MT, USA : IEEE, 2004, p. 2538-2555. doi: 10.1109/AERO.2004.1368048.

- [13] S.-K. Kim, E. Y. Jung, et M.-H. Lee, « Defect-Induced Luminescence Quenching of 4H-SiC Single Crystal Grown by PVT Method through a Control of Incorporated Impurity Concentration », *Compounds*, vol. 2, n° 1, p. 68-79, mars 2022, doi: 10.3390/compounds2010006.
- [14] S.-Y. Zhuo, X.-C. Liu, T.-X. Xu, C.-F. Yan, et E.-W. Shi, « Strong correlation between B-Al-N doping concentration fluctuation and photoluminescence effects of *f*-SiC », *AIP Advances*, vol. 8, n° 7, juill. 2018, doi: 10.1063/1.5044492.
- [15] S. Castelletto, « Silicon carbide single-photon sources: challenges and prospects », *Mater. Quantum. Technol.*, vol. 1, n° 2, p. 023001, juin 2021, doi: 10.1088/2633-4356/abe04a.
- [16] S. Castelletto et A. Boretti, « Silicon carbide color centers for quantum applications », *J. Phys. Photonics*, vol. 2, n° 2, p. 022001, avr. 2020, doi: 10.1088/2515-7647/ab77a2.
- [17] O. Bulancea-Lindvall *et al.*, « Temperature dependence of the AB lines and optical properties of the carbon–antisite–vacancy pair in 4 H – Si C », *Phys. Rev. Applied*, vol. 22, n° 3, p. 034056, sept. 2024, doi: 10.1103/PhysRevApplied.22.034056.
- [18] Y. Miyano, R. Asafuji, S. Yagi, Y. Hijikata, et H. Yaguchi, « Photoluminescence study of oxidation-induced faults in 4H-SiC epilayers », *AIP Advances*, vol. 5, n° 12, p. 127116, déc. 2015, doi: 10.1063/1.4938126.
- [19] M. Na, W. Bahng, H. Jung, C. Oh, D. Jang, et S.-K. Hong, « Revisiting stacking fault identification based on the characteristic photoluminescence emission wavelengths of silicon carbide epitaxial wafers », *Materials Science in Semiconductor Processing*, vol. 175, p. 108247, juin 2024, doi: 10.1016/j.mssp.2024.108247.
- [20] M. Na *et al.*, « Overlaid Shockley- and Frank-type stacking faults in 4H-SiC epitaxial layers », *Applied Surface Science*, vol. 703, p. 163425, sept. 2025, doi: 10.1016/j.apsusc.2025.163425.
- [21] M. Kaneko, H. Takashima, K. Shimazaki, S. Takeuchi, et T. Kimoto, « Impact of the oxidation temperature on the density of single-photon sources formed at SiO₂/SiC interface », *APL Materials*, vol. 11, n° 9, p. 091121, sept. 2023, doi: 10.1063/5.0162610.
- [22] K. Onishi *et al.*, « Generation of single photon emitters at a SiO₂ /SiC interface by high-temperature oxidation and reoxidation at lower temperatures », *Appl. Phys. Express*, vol. 17, n° 5, p. 051004, mai 2024, doi: 10.35848/1882-0786/ad4449.
- [23] K. Onishi *et al.*, « Insight into the energy level structure and luminescence process of color centers at SiO₂/SiC interfaces », *APL Materials*, vol. 13, n° 2, p. 021119, févr. 2025, doi: 10.1063/5.0253294.
- [24] A. G. Burachenko *et al.*, « Luminescence spectra of diamonds containing nitrogen-vacancy and interstitial photoactive centers », *Journal of Luminescence*, vol. 237, p. 118214, sept. 2021, doi: 10.1016/j.jlumin.2021.118214.
- [25] I. Aharonovich, S. Castelletto, D. A. Simpson, C.-H. Su, A. D. Greentree, et S. Praver, « Diamond-based single-photon emitters », *Rep. Prog. Phys.*, vol. 74, n° 7, p. 076501, juill. 2011, doi: 10.1088/0034-4885/74/7/076501.

- [26] J. Walker, « An optical study of the TR12 and 3H defects in irradiated diamond », *J. Phys. C: Solid State Phys.*, vol. 10, n° 16, p. 3031-3037, août 1977, doi: 10.1088/0022-3719/10/16/013.
- [27] B. Naydenov *et al.*, « Engineering single photon emitters by ion implantation in diamond », *Applied Physics Letters*, vol. 95, n° 18, p. 181109, nov. 2009, doi: 10.1063/1.3257976.
- [28] S. Nakashima et H. Harima, « Raman Investigation of SiC Polytypes », *phys. stat. sol. (a)*, vol. 162, n° 1, p. 39-64, juill. 1997, doi: 10.1002/1521-396X(199707)162:1%3C39::AID-PSSA39%3E3.0.CO;2-L.
- [29] H. Harima, « Raman scattering characterization on SiC », *Microelectronic Engineering*, vol. 83, n° 1, p. 126-129, janv. 2006, doi: 10.1016/j.mee.2005.10.037.
- [30] R. Fukasawa et S. Perkowitz, « Raman-scattering spectra of coupled LO-phonon–hole-plasmon modes in *p*-type GaAs », *Phys. Rev. B*, vol. 50, n° 19, p. 14119-14124, nov. 1994, doi: 10.1103/PhysRevB.50.14119.
- [31] J. C. Burton *et al.*, « Spatial characterization of doped SiC wafers by Raman spectroscopy », *Journal of Applied Physics*, vol. 84, n° 11, p. 6268-6273, déc. 1998, doi: 10.1063/1.368947.
- [32] Y. Liu, S. Liu, J. Robertson, et Y. Guo, « A Novel Insight into the Strain Effect of T_{2g} Mode Splitting and Bandgap in Diamond », *Physica Rapid Research Ltrs*, vol. 17, n° 1, p. 2200344, janv. 2023, doi: 10.1002/pssr.202200344.
- [33] J. L. Bruneel, J. C. Lassègues, et C. Sourisseau, « In-depth analyses by confocal Raman microspectrometry: experimental features and modeling of the refraction effects », *J Raman Spectroscopy*, vol. 33, n° 10, p. 815-828, oct. 2002, doi: 10.1002/jrs.915.
- [34] Y. Song *et al.*, « Depth Profiling of Ion-Implanted 4H–SiC Using Confocal Raman Spectroscopy », *Crystals*, vol. 10, n° 2, p. 131, févr. 2020, doi: 10.3390/cryst10020131.
- [35] S. Lagomarsino *et al.*, « Complex refractive index variation in proton-damaged diamond », *Opt. Express*, vol. 20, n° 17, p. 19382, août 2012, doi: 10.1364/oe.20.019382.
- [36] S. Lagomarsino *et al.*, « Refractive index variation in a free-standing diamond thin film induced by irradiation with fully transmitted high-energy protons », *Sci Rep*, vol. 7, n° 1, p. 385, mars 2017, doi: 10.1038/s41598-017-00343-0.
- [37] A. P. Webb et P. D. Townsend, « Refractive index profiles induced by ion implantation into silica », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 9, n° 9, p. 1343-1354, juin 1976, doi: 10.1088/0022-3727/9/9/011.
- [38] H. C. Lin, Z. C. Feng, M. S. Chen, Z. X. Shen, I. T. Ferguson, et W. Lu, « Raman scattering study on anisotropic property of wurtzite GaN », *Journal of Applied Physics*, vol. 105, n° 3, p. 036102, févr. 2009, doi: 10.1063/1.3072705.
- [39] B. Ma, D. Jinno, H. Miyake, K. Hiramatsu, et H. Harima, « Orientation dependence of polarized Raman spectroscopy for nonpolar, semi-polar, and polar bulk GaN substrates », *Applied Physics Letters*, vol. 100, n° 1, p. 011909, janv. 2012, doi: 10.1063/1.3674983.

- [40] H. Gao, F. Yan, J. Li, J. Wang, et J. Yan, « Polarized Raman scattering studies of nonpolar a -plane GaN films grown on r -plane sapphire substrates by MOCVD », *Physica Status Solidi (a)*, vol. 203, n° 15, p. 3788-3792, déc. 2006, doi: 10.1002/pssa.200622306.
- [41] L. HENRY, « Structure atomique et activité électrique des défauts natifs et induits par irradiation dans le carbure de silicium 6H-SiC déterminées par annihilation de positons », Ph.D. thesis, Orléans, Orléans, 2001.
- [42] X. Kerbiriou, « Propriétés des défauts ponctuels natifs et induits par irradiation dans les polytypes 3C et 6H du carbure de silicium déterminées par annihilation de positons et RPE », Thèse de doctorat, Université d'Orléans, Orléans, France, 2006.
- [43] Y. Bennour, M.-R. Ammar, J. Botsoa, N. Doumit, P. Guève, et E. Ntsoenzok, « Proton irradiation induced defect analysis in wide-bandgap semiconductors: Optical and structural characterization of SiC and diamond for potential Cherenkov radiators », *AIP Advances*, vol. 15, n° 10, p. 105118, oct. 2025, doi: 10.1063/5.0295486.
- [44] A. Kawasuso *et al.*, « Silicon vacancies in 3C-SiC observed by positron lifetime and electron spin resonance », *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, vol. 67, n° 2, p. 209-212, août 1998, doi: 10.1007/s003390050759.
- [45] J. Wiktor, X. Kerbiriou, G. Jomard, S. Esnouf, M.-F. Barthe, et M. Bertolus, « Positron annihilation spectroscopy investigation of vacancy clusters in silicon carbide: Combining experiments and electronic structure calculations », *Phys. Rev. B*, vol. 89, n° 15, p. 155203, avr. 2014, doi: 10.1103/PhysRevB.89.155203.
- [46] J. Wiktor, G. Jomard, M. Torrent, M.-F. Barthe, et M. Bertolus, « Fully self-consistent calculations of momentum distributions of annihilating electron-positron pairs in SiC », *Phys. Rev. B*, vol. 93, n° 19, p. 195207, mai 2016, doi: 10.1103/PhysRevB.93.195207.
- [47] F. Linez, « Propriété des défauts lacunaires dans le carbure de silicium: évolution de leur nature en fonction des conditions d'irradiation et interaction avec l'hélium ».
- [48] J. Botsoa *et al.*, « Optimal conditions for N V – center formation in type-1b diamond studied using photoluminescence and positron annihilation spectroscopies », *Phys. Rev. B*, vol. 84, n° 12, p. 125209, sept. 2011, doi: 10.1103/PhysRevB.84.125209.
- [49] J.-M. Mäki, F. Tuomisto, C. J. Kelly, D. Fisher, et P. M. Martineau, « Properties of optically active vacancy clusters in type IIa diamond », *J. Phys.: Condens. Matter*, vol. 21, n° 36, p. 364216, sept. 2009, doi: 10.1088/0953-8984/21/36/364216.
- [50] A. Pu, T. Bretagnon, D. Kerr, et S. Dannefaer, « Positron annihilation investigation of vacancies in as-grown and electron-irradiated diamonds », *Diamond and Related Materials*, vol. 9, n° 8, p. 1450-1463, août 2000, doi: 10.1016/S0925-9635(00)00264-8.
- [51] K. Fujito, S. Kubo, H. Nagaoka, T. Mochizuki, H. Namita, et S. Nagao, « Bulk GaN crystals grown by HVPE », *Journal of Crystal Growth*, vol. 311, n° 10, p. 3011-3014, mai 2009, doi: 10.1016/j.jcrysgro.2009.01.046.
- [52] M. Matsubara et E. Bellotti, « A first-principles study of carbon-related energy levels in GaN. I. Complexes formed by substitutional/interstitial carbons and gallium/nitrogen vacancies », *Journal of Applied Physics*, vol. 121, n° 19, p. 195701, mai 2017, doi: 10.1063/1.4983452.

- [53] CEMHTI – CNRS Orléans, « Rapport interne sur le GaN (non publié) ».
- [54] J. Oila *et al.*, « Ga vacancies as dominant intrinsic acceptors in GaN grown by hydride vapor phase epitaxy », *Applied Physics Letters*, vol. 82, n° 20, p. 3433-3435, mai 2003, doi: 10.1063/1.1569414.
- [55] M. J. Wang, L. Yuan, C. C. Cheng, C. D. Beling, et K. J. Chen, « Defect formation and annealing behaviors of fluorine-implanted GaN layers revealed by positron annihilation spectroscopy », *Applied Physics Letters*, vol. 94, n° 6, p. 061910, févr. 2009, doi: 10.1063/1.3081019.
- [56] J. Neugebauer et C. G. Van De Walle, « Gallium vacancies and the yellow luminescence in GaN », *Applied Physics Letters*, vol. 69, n° 4, p. 503-505, juill. 1996, doi: 10.1063/1.117767.
- [57] D. Ehrentraut, E. Meissner, et M. Bockowski, Éd., *Technology of Gallium Nitride Crystal Growth*, vol. 133. in Springer Series in Materials Science, vol. 133. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2010. doi: 10.1007/978-3-642-04830-2.
- [58] M. A. Reshchikov *et al.*, « Evaluation of the concentration of point defects in GaN », *Sci Rep*, vol. 7, n° 1, p. 9297, août 2017, doi: 10.1038/s41598-017-08570-1.
- [59] N. Yu. Arutyunov, V. V. Emtsev, A. V. Mikhailin, et V. Yu. Davidov, « Positron annihilation in AlN and GaN », *Physica B: Condensed Matter*, vol. 308-310, p. 110-113, déc. 2001, doi: 10.1016/S0921-4526(01)00709-8.
- [60] K. Saarinen *et al.*, « Observation of Native Ga Vacancies in GaN by Positron Annihilation », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 79, n° 16, p. 3030-3033, oct. 1997, doi: 10.1103/PhysRevLett.79.3030.
- [61] M. Sumiya, K. Yoshimura, K. Ohtsuka, et S. Fuke, « Dependence of impurity incorporation on the polar direction of GaN film growth », *Applied Physics Letters*, vol. 76, n° 15, p. 2098-2100, avr. 2000, doi: 10.1063/1.126267.
- [62] S.-R. Xu *et al.*, « Comparative Study of the Characteristics of the Basal Plane Stacking Faults of Nonpolar a -Plane and Semipolar (1122) GaN », *Chinese Phys. Lett.*, vol. 29, n° 1, p. 017803, janv. 2012, doi: 10.1088/0256-307X/29/1/017803.

Chapitre 4. Étude des défauts créés dans le SiC et le GaN lors des irradiations aux ions lourds à hautes énergies

Table des matières

4	Étude des défauts créés dans le SiC et le GaN lors des irradiations aux ions lourds à hautes énergies	124
4.1	Conditions d'irradiation et calcul de dpa	125
4.1.1	Choix des matériaux utilisés	125
4.1.2	Paramètres d'irradiation utilisés et calcul de dpa correspondants	125
4.2	Caractérisation des échantillons	127
4.2.1	Étude des propriétés optiques après irradiation à hautes énergies.....	127
4.2.2	Évaluation des défauts structuraux avec la spectroscopie Raman.....	130
4.2.3	Évaluation des défauts proche de la surface par spectroscopie d'annihilation des positons.....	136
4.2.4	Bilan des techniques de caractérisation	141
4.3	Bilan du chapitre	141
4.4	Synthèse et validation de la méthodologie utilisée dans cette thèse	142
	Références.....	146

4 Étude des défauts créés dans le SiC et le GaN lors des irradiations aux ions lourds à hautes énergies

Le Chapitre 3 a permis d'analyser la réponse du GaN, du diamant et du SiC dopé n soumis à des irradiations aux protons de 2 MeV, fournissant une première compréhension des mécanismes des défauts induits par l'interaction d'ions avec ces matériaux. Cette étude a été menée en travaillant dans une large gamme de dpa comme première approche pour une meilleure comparaison avec les conditions d'irradiation utilisées au FRIB et une meilleure étude des défauts induits.

Les résultats indiquent que le diamant ne présente aucune absorption dans le visible et possède la plus faible concentration de défauts parmi les matériaux étudiés. Le SiC, en dehors des effets liés au dopage à l'azote, montre également une bonne résistance à l'irradiation. En revanche, le GaN nécessite encore des investigations sous des conditions d'irradiation représentatives de celles de FRIB afin de confirmer son potentiel.

Par ailleurs, comme discuté au Chapitre 1, la conception d'un détecteur Cherenkov destiné au FRIB nécessite une surface active du radiateur de l'ordre de $30 \times 30 \text{ cm}^2$. Il est clair comme présenté dans le Tableau 4.1 que le coût d'un tel radiateur utilisant le diamant est 7 et 160 fois plus élevé que le GaN et le SiC respectivement. Ces considérations rendent l'utilisation du diamant peu réaliste à grande échelle et motivent le choix de matériaux offrant un compromis optimal entre résistance aux irradiations et coût.

Tableau 4.1 : Le coût préliminaire du radiateur Cherenkov utilisant les différents matériaux.

Matériaux	Coûts préliminaire d'un radiateur de $30 \times 30 \text{ cm}^2$
SiC dopé	7 700 \$
Diamant	1 276 200 \$
GaN	171 000 \$

L'objectif de ce chapitre est d'une part analyser les défauts induits par les ions lourds dans le GaN et le SiC non dopé, afin évaluer lequel des deux sera plus performant comme radiateur. La méthodologie employée est similaire à celle utilisée dans le Chapitre 3. L'approche par dpa comparable a été adoptée pour les irradiations aux ions lourds, servira de comparaison rigoureuse avec les résultats du Chapitre 3. Les irradiations ont été réalisées avec des isotopes de carbone (^{12}C , ^{17}C) et de magnésium (^{37}Mg) effectuées au GANIL et au FRIB.

4.1 Conditions d'irradiation et calcul de dpa

4.1.1 Choix des matériaux utilisés

Comme évoqué plus haut dans ce chapitre, le SiC non dopé sera utilisé en remplacement du SiC dopé n utilisé dans le Chapitre 3.

Concernant le GaN, il convient de préciser que, pour couvrir un large domaine d'irradiations à haute énergie des échantillons GaN DPS (Double polished side), et SPS (Single polished side) ont également été intégrés à l'étude.

4.1.2 Paramètres d'irradiation utilisés et calcul de dpa correspondants

Plusieurs conditions d'irradiation ont été utilisées dans les échantillons de GaN et de SiC :

- Le ^{12}C : Le choix des énergies d'irradiation utilisées dans cette étude a été déterminé en fonction de plusieurs considérations physiques et expérimentales. Les faisceaux d'ions ^{12}C à 85 MeV/n et 95 MeV/n ont été employés dans le but d'examiner l'influence de l'énergie incidente par rapport au seuil de l'émission Cherenkov qui est d'environ 90 MeV/n. Cette valeur dépend directement de l'indice de réfraction spécifique à chaque matériau, ce qui permet de situer ces deux énergies de part et d'autre de ce seuil critique : 85 MeV/n correspondant à une irradiation en dessous du seuil, et 95 MeV/n à une irradiation légèrement au-dessus.
- Le ^{17}C à 100 MeV/n : Cette irradiation a été choisie pour évaluer les performances des détecteurs installés dans la salle expérimentale S2Volt (présentée au Chapitre 2) de la collaboration MoNA.
- Le ^{37}Mg à 215 MeV/n correspond aux conditions réelles durant des expérimentations effectuées au FRIB.

Les conditions d'irradiation réalisées ainsi que le type d'échantillon utilisé sont résumées dans le Tableau 4.2.

Tableau 4.2 : Conditions des irradiations à hautes énergies réalisées sur le GaN et le SiC.

Particules	^{12}C	^{12}C	^{17}C	^{37}Mg
Energies (MeV/n)	85	95	100	215
Fluences (p/cm^2)	$1,14 \times 10^{11}$	$1,14 \times 10^{11}$	10^8	10^8
Echantillon utilisé	SiC et GaN	SiC et GaN	GaN	SiC et GaN

Le nombre de dpa (displacements per atom) généré par chaque particule à différentes énergies et fluences a été estimé à l'aide du logiciel SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter). La Figure 4.1 illustre les résultats des simulations effectuées dans le GaN (Figure 4.1a)

et le SiC (Figure 4.1b), sur une épaisseur de 300 μm correspondant à la région de trace (IT : Ion Track).

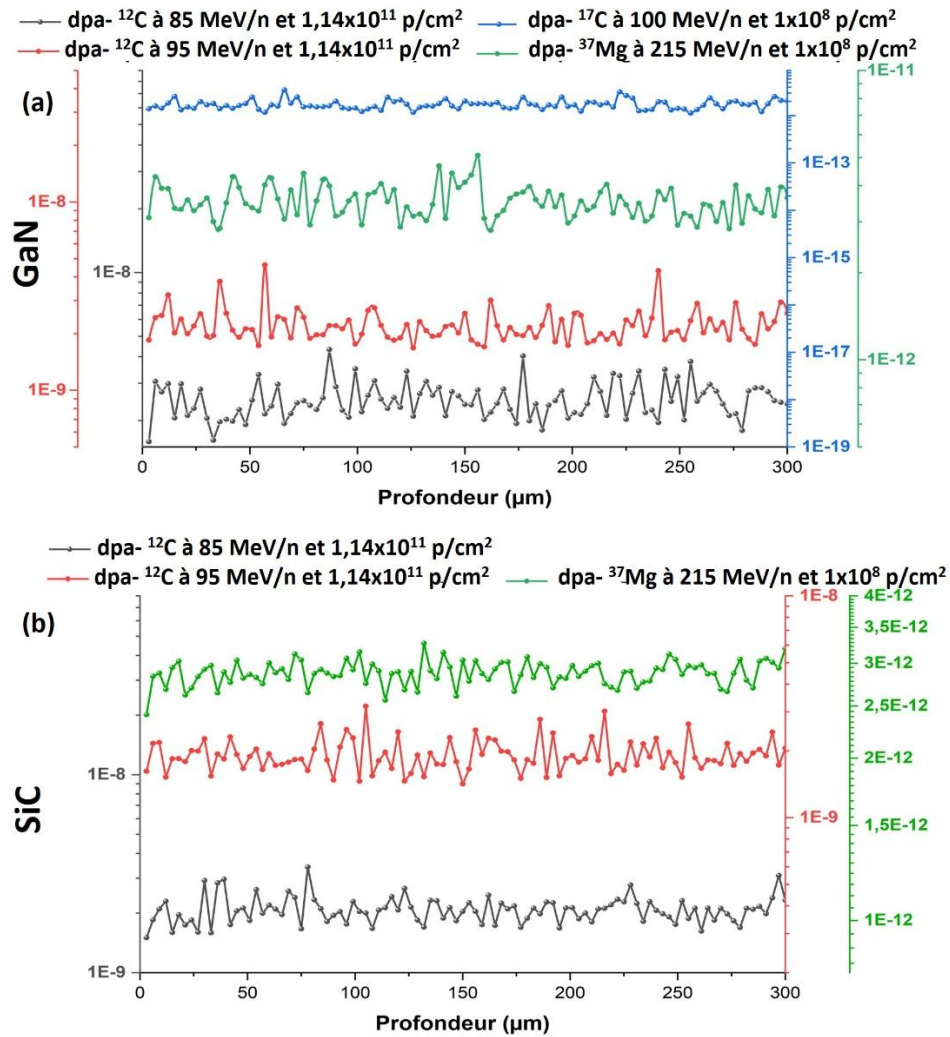


Figure 4.1 : Calcul des dpa obtenues par la simulation SRIM dans (a) le GaN et (b) le SiC. Les particules utilisées sont : le ^{12}C à 85MeV/n et 95MeV/n et une fluence de $1,14 \times 10^{11} \text{p/cm}^2$, le ^{17}C à 100 MeV/n et une fluence de 10^8p/cm^2 et le ^{37}Mg à 215 MeV/n et une fluence de 10^8p/cm^2 .

La Figure 4.2 présente les résultats des dpa obtenus par les simulations SRIM pour le GaN et le SiC, en fonction des conditions d'irradiation.

Il apparaît que, pour chaque énergie de particules utilisée (^{12}C à 85 MeV/nm, ^{12}C à 95 MeV/nm, ^{17}C à 100 MeV/nm, et ^{37}Mg à 215 MeV/nm), les valeurs de dpa sont légèrement plus élevées pour le GaN (représenté par des cercles rouges) que pour le SiC (représenté par des cercles bleus). Cette tendance est cohérente avec les différences de densité atomique ainsi que les énergies de déplacement des atomes dans chaque matériau.

Une variation des dpa en fonction de la masse des particules est également observée. En particulier, une diminution des dpa est notée pour des énergies supérieures à 100 MeV/n.

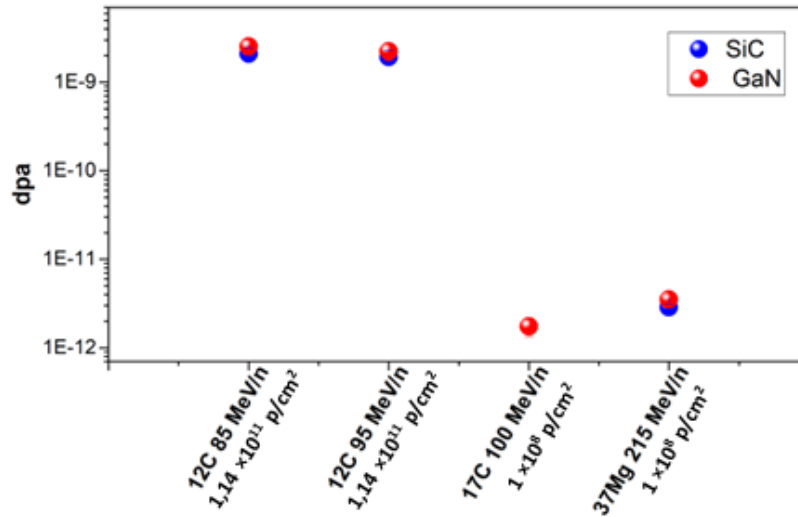


Figure 4.2 : Comparaison des dpa obtenues par les différentes conditions d'irradiations dans le GaN et le SiC. Le ^{12}C à 85 MeV/n et 95 MeV/n et une fluence de $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$, le ^{17}C à 100 MeV/n et une fluence de 10^8 p/cm^2 et le ^{37}Mg à 215 MeV/n et une fluence de 10^8 p/cm^2 ont été utilisés comme conditions d'irradiation.

Les valeurs de dpa obtenus par les simulations SRIM fournissent une première évaluation du taux d'endommagement induits par les irradiations dans les différents matériaux.

4.2 Caractérisation des échantillons

4.2.1 Étude des propriétés optiques après irradiation à hautes énergies

4.2.1.1 Étude par spectroscopie UV-Visible

Afin d'évaluer l'impact direct des irradiations à haute énergie sur la transparence du GaN et du SiC, des spectres de transmission optique ont été mesurés par spectroscopie UV-Visible, comme présenté sur la Figure 4.3. Cette technique donne déjà un premier aperçu de la transmission des échantillons soumis aux ions lourds à fortes énergies.

Les échantillons GaN DPS et SPS vierges présentent respectivement des transmissions initiales de $\sim 72\%$ et $\sim 44\%$ (Figure 4.3a). Toutefois, aucune bande absorbante n'apparaît, confirmant ainsi la bonne qualité optique du matériau. Après irradiation, une légère diminution de la transmission est constatée pour les échantillons GaN SPS avec les trois faisceaux ^{12}C (à 85 MeV/n), ^{17}C et ^{37}Mg comparativement à l'échantillon vierge ($\sim 15\%$, 5% et 11% pour chaque irradiation respectivement). Cette diminution est difficile à attribuer à un centre de défaut absorbant dans tout le domaine du visible. Donc ceci peut être dû à l'erreur de mesure liée à la technique. En revanche, aucune diminution notable n'est détectée pour le GaN DPS irradié avec le ^{12}C à 95 MeV/n. De plus, aucune nouvelle bande d'absorption spécifique n'apparaît dans le domaine spectral associé à l'effet Cherenkov, contrairement aux observations faites après implantation d'hydrogène à haute fluence (Chapitre 3 section 3.2.1), où la présence de

monolacune V_{Ga} avait été mise en évidence. La concentration des V_{Ga} doit probablement être au-dessous du seuil de détection de cette technique. Ces résultats confirment la stabilité optique remarquable du GaN dans les conditions d'irradiation utilisées.

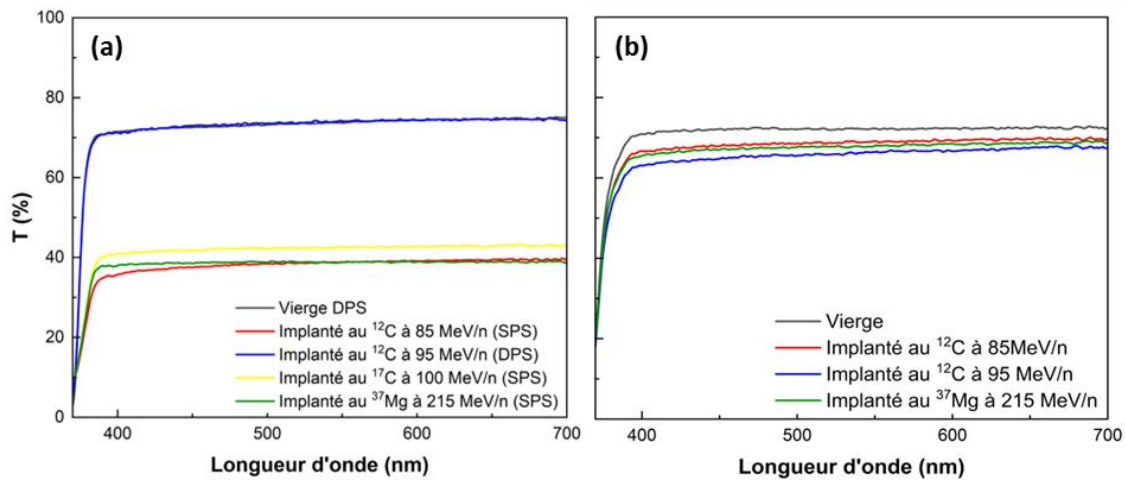


Figure 4.3 : Spectroscopie UV-visible avant et après irradiation avec différentes particules et énergies : **(a)** GaN vierge (DPS), irradié au ^{12}C à 85 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$ (noir), irradié au ^{12}C à 95 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$ (rouge)(DPS), au ^{17}C à 100 MeV/n et 10^8 p/cm^2 (jaune) et au ^{37}Mg 215 MeV/n et 10^8 p/cm^2 (vert) ainsi que le **(b)** SiC vierge (noir), irradié au ^{12}C à 85 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$ (rouge), irradié au ^{12}C à 95 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$ (bleu), et au ^{37}Mg à 215 MeV/n et 10^8 p/cm^2 (vert).

Pour le SiC (Figure 4.3b), l'échantillon vierge présente une transmission élevée, supérieure à 70% au-delà de 400 nm, traduisant une bonne qualité cristalline et optique initiale. Après irradiation, une diminution progressive de la transmission est observée, plus marquée pour les ions lourds et les énergies plus élevées, notamment pour l'irradiation avec le ^{37}Mg à 215 MeV/n. L'absence de nouvelles bandes d'absorption suggère que la structure électronique n'a pas subi de modifications profondes. Ce résultat est analogue avec ce qui a été observé dans le GaN

Contrairement à ce qui a été observé dans le SiC au Chapitre 3 (section 3.2.1), où une bande d'absorbance dominante apparaît à 460 nm, les résultats obtenus montrent bien qu'en l'absence du dopant azote, cette bande d'absorption est absente.

L'absorption UV-Visible a montré que le GaN et le SiC ont préservé leurs propriétés optiques après les différentes irradiations testées. De façon globale cette méthode ne met en évidence des effets d'endommagement suite aux irradiations.

4.2.1.2 Étude par photoluminescence

Dans nos conditions expérimentales, la photoluminescence constitue un outil privilégié pour l'identification des centres luminescents actifs dans le domaine du visible. Ces centres, souvent à l'origine de phénomènes de scintillation induits par l'irradiation, peuvent perturber

le signal optique émis par effet Cherenkov. Une telle interférence est susceptible de compromettre le pouvoir de détection du dispositif.

La Figure 4.4 montre les spectres de photoluminescence obtenus pour le GaN et le SiC non dopés, respectivement avant implantation (courbes noires) et après irradiations à différentes énergies.

Pour le GaN (Figure 4.4a), les spectres sont normalisés par rapport à l'émission bande à bande, une forte émission observée à 365 nm (3,41 eV) conformément aux résultats obtenus au Chapitre 3. Une émission secondaire à 3,28 eV, attribuée à une paire donneur-accepteur (DAP) [1] apparaît sur l'ensemble des échantillons. Après irradiation, une bande de photoluminescence apparaît dans le domaine spectral du vert, centrée entre ~530 et 550 nm ($\approx 2,25\text{--}2,35$ eV) communément appelée GL (Green Luminescence). Cette bande est faible pour les implantations au ^{12}C à 85 MeV/n et 95 MeV/n, et plus intense après implantation au ^{17}C à 100 MeV/n, où elle atteint son maximum, puis diminue légèrement pour l'irradiation au ^{37}Mg à 215 MeV/n. Cette bande n'était pas visible pour les hautes fluences utilisées dans le Chapitre 3, ce qui suggère que ce pic est principalement associé aux plus faibles valeurs de dpa comme il a été constaté. L'apparition uniquement après irradiation et la dépendance à la fois de la masse et de l'énergie des ions incidents sont caractéristiques d'une luminescence induite par irradiation et sont en bon accord avec les attributions largement rapportées dans la littérature, qui associent la bande GL induite par irradiation à la formation de lacunes d'azote (V_N) [2]. Il est important de distinguer cette luminescence induite par irradiation à celle de la bande GL1 décrite dans le GaN HVPE non irradié, attribuée à des défauts multichargés nécessitant la capture séquentielle de deux trous (souvent associée au carbone C_N ou à des complexes $C_N\text{--}V_{Ga}$) [3]. Contrairement à la GL1, la luminescence observée dans ce travail est absente à l'état initial, et est clairement corrélée à la création de défauts primaires induits par irradiation.

La Figure 4.4b présente les spectres des échantillons de SiC vierge et irradiés normalisés par rapport au mode Raman TO. Ils présentent des émissions similaires entre 356 nm et 370 nm, attribuées à des modes TO ou LO, dont l'apparition dépend de la polarité des échantillons. Une bande large centrée à 550 nm est également observée. Celle-ci peut être associée à des transitions DAP de la même manière que pour les échantillons de SiC dopés étudiés au Chapitre 3. Un décalage vers le bleu de la bande d'émission de type donneur-accepteur (DAP), centrée est aussi observé dans l'insert à droite dans la même figure. Ceci est probablement dû à l'évolution des défauts qui participe au mécanisme de recombinaison.

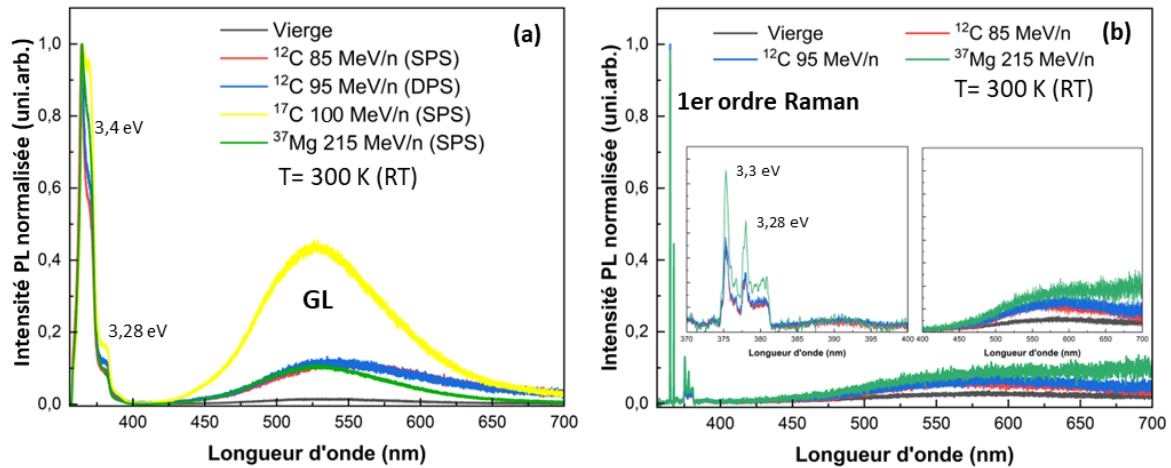


Figure 4.4 : Spectroscopie de photoluminescence avant et après irradiations à hautes énergies: **(a)** du GaN vierge, irradié au ^{12}C à 85 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$ (noir), irradié au ^{12}C à 95 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$ (rouge), au ^{17}C à 100 MeV/n et 10^8 p/cm^2 (jaune) et au ^{37}Mg 215 MeV/n et 10^8 p/cm^2 (vert) ainsi que du **(b)** SiC vierge (noir), irradié au ^{12}C à 85 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$ (rouge), irradié au ^{12}C à 95 MeV/n et $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$ (bleu), et au ^{37}Mg à 215 MeV/n et 10^8 p/cm^2 (vert). Cette analyse a été réalisée à température ambiante (RT)

Contrairement aux irradiations aux protons à basse énergie étudiées dans le Chapitre 3 qui engendrent de forts dpa, les irradiations à haute énergie induisent clairement l'apparition d'une luminescence verte dans les spectres de photoluminescence du GaN. Cette émission, absente à l'état initial (échantillon vierge, courbe noire), est attribuée à la formation de monolacunes d'azote (V_N) créées par les cascades de déplacements atomiques générées lors des irradiations à haute énergie. Celles-ci sont à priori liées à la masse et l'énergie de l'ion et non aux dpa.

La position spectrale de cette luminescence dans le domaine du vert constitue un point favorable pour notre application, dans la mesure où elle n'interfère pas avec l'émission Cherenkov, située dans le domaine du bleu. Ainsi, bien que l'irradiation induit des défauts ponctuels optiquement actifs dans le GaN, la détection de l'effet Cherenkov n'en est pas compromise.

En outre, la PL ne permet pas de mettre en évidence l'apparition d'un défaut induit par irradiation dans nos échantillons de SiC dans les conditions utilisées.

4.2.2 Évaluation des défauts structuraux avec la spectroscopie Raman

Afin de caractériser les modifications structurales induites par les irradiations à hautes énergies, des cartographies Raman ont été réalisées sur l'ensemble de la coupe transversale des échantillons de SiC et de GaN, avant et après les irradiations. Les mesures ont été effectuées à l'aide d'un microscope $\times 100$ en mode confocal, permettant une résolution spatiale fine de l'ordre de $0,8 \mu\text{m}$ (comme mentionné dans le Chapitre 2 section 2.4.3).

Pour le SiC, une surface de $40 \times 500 \mu\text{m}^2$ a été explorée, tandis qu'une zone de $60 \times 350 \mu\text{m}^2$ a été sondée pour le GaN, avec un pas d'acquisition de $0,5 \mu\text{m}$. Cette approche permet de visualiser la distribution spatiale des modifications structurales, notamment la position des modes TO et LO ainsi que la largeur à mi-hauteur (FWHM) de ces pics.

La Figure 4.5 présente les spectres Raman du GaN avant et après irradiation ionique. En partie supérieure, sont illustrés les spectres représentatifs des modes transverse optique (TO) (à gauche) et longitudinal optique (LO) (à droite), centrés respectivement autour de 531 cm^{-1} et 740 cm^{-1} , caractéristiques de la structure Wurtzite du GaN. Les cartographies situées en dessous montrent la distribution spatiale de la position de chaque mode pour les différentes conditions d'irradiation. Le spectre moyen enregistré est aussi présenté systématiquement à gauche (pour le pic TO) et à droite (pour le pic LO) pour les différents échantillons.

Pour l'échantillon vierge, le mode TO enregistré est centré à 531 cm^{-1} sur l'ensemble de la tranche, comme l'indique la coloration bleue uniforme de la cartographie. Cette homogénéité traduit l'absence de contraintes internes significatives et confirme la bonne qualité cristalline du GaN initial. Après implantation au ^{12}C avec des énergies de 85 MeV/n et 95 MeV/n et une fluence de $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$, la position du mode TO reste inchangée, indiquant que ces irradiations n'induisent aucun décalage significatif. De même, lorsque la masse et l'énergie des ions augmentent, comme dans le cas de l'irradiation au ^{37}Mg à 215 MeV/n , aucune variation mesurable de la position du mode TO n'est observée. L'observation du spectre moyen du pic TO souligne également l'absence de décalage du pic TO suite aux irradiations.

Le mode LO (colonne de droite), généralement plus sensible aux perturbations structurales, présente un comportement légèrement différent. Avant irradiation, sa position moyenne est d'environ 741 cm^{-1} . Après implantation au ^{12}C (85 MeV/n , $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$), la position du pic reste quasiment inchangée sur l'ensemble de la zone analysée. En revanche, lorsque l'énergie du faisceau est portée à 95 MeV/n pour la même fluence, un léger décalage uniforme vers les hautes fréquences ($\sim 743 \text{ cm}^{-1}$) est observé (voir spectre moyen à droite), représenté par une coloration rouge sur la cartographie. Ce décalage vers le bleu indique l'apparition d'une contrainte de compression dans le réseau cristallin, induite par l'irradiation. Ainsi, si on considère un coefficient de décalage Raman de $0,8 \text{ cm}^{-1}/\text{GPa}$ [4], le décalage observé correspond à une contrainte d'approximativement $\sim 1,875 \text{ GPa}$. Pour les irradiations au ^{17}C (100 MeV/n , $\sim 10^8 \text{ p/cm}^2$) et au ^{37}Mg (215 MeV/n , $\sim 10^8 \text{ p/cm}^2$), aucune modification notable de la position du mode LO n'est détectée, les cartographies conservant une teinte bleue homogène. Ces observations montrent qu'à l'exception du décalage observé pour l'irradiation au ^{12}C à 95 MeV/n qui est d'environ $1,5 \text{ cm}^{-1}$ par rapport à l'échantillon vierge, le réseau cristallin du GaN reste globalement, sans contrainte majeure, dans les conditions d'irradiation étudiées.

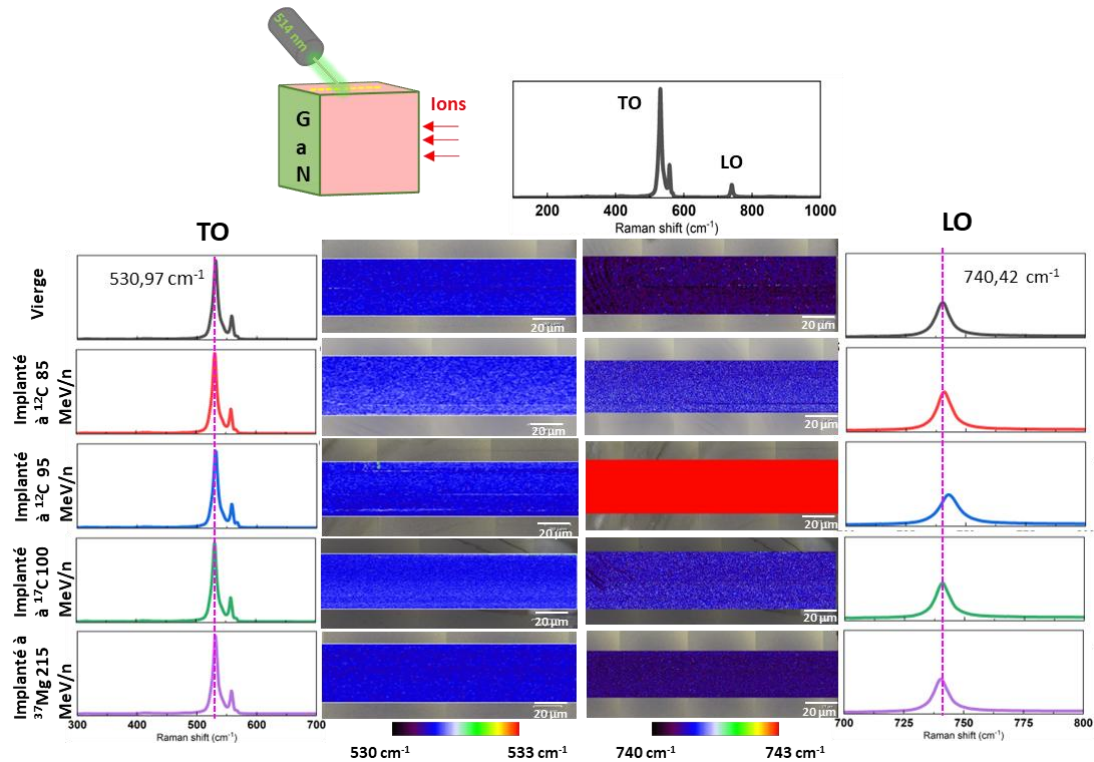


Figure 4.5 : Cartographies de la position des modes Raman TO (à gauche) et LO (à droite) du GaN avant et après irradiation ionique. Les spectres représentatifs en partie supérieure montrent les pics Raman mesurés utilisés pour cette cartographie.

La Figure 4.6 présente les cartographies de la largeur à mi-hauteur (FWHM) des modes Raman TO (à gauche) et LO (à droite) du GaN avant et après irradiation. Pour chacun d'eux, un spectre représentatif accompagné de son ajustement (fit) est montré en partie supérieure, tandis que les cartographies situées en dessous illustrent la variation de la FWHM sur l'ensemble de la tranche analysée.

Avant irradiation, la cartographie correspondante, présentant une FWHM moyenne d'environ 10 cm^{-1} (coloration uniformément bleue), traduit une grande homogénéité cristalline sur l'ensemble de la zone étudiée. Après implantation au ^{12}C avec des énergies de 85 MeV/n et 95 MeV/n et une fluence de $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$, la FWHM du mode TO demeure identique à celle de l'échantillon vierge, indiquant que ces irradiations n'ont pas induit de désordre mesurable. De même, lorsque la masse et l'énergie de la particule augmentent notamment pour l'irradiation au ^{37}Mg à 215 MeV/n, aucune modification notable de la FWHM n'est observée.

Le comportement du mode LO (colonne de droite) présente une évolution différente de celle du mode TO. Avant irradiation, la FWHM moyenne est de $\sim 7,2 \text{ cm}^{-1}$, valeur caractéristique d'un cristal bien ordonné. Après implantation au ^{12}C (85 MeV/n, $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$), la FWHM reste pratiquement inchangée sur l'ensemble de la tranche. Lorsque l'énergie du faisceau est portée à 95 MeV/n pour la même fluence, une augmentation uniforme de la FWHM est

observée, atteignant environ $9,5 \text{ cm}^{-1}$. Cette variation traduit une augmentation marginale du désordre cristallin. En revanche, pour les irradiations au ^{17}C (100 MeV/n , $\sim 10^8 \text{ p/cm}^2$) et au ^{37}Mg (215 MeV/n , $\sim 10^8 \text{ p/cm}^2$), aucune évolution significative de la FWHM du mode LO n'est détectée, confirmant la stabilité structurale du GaN dans ces conditions. Ainsi, l'ensemble des résultats montre que le GaN conserve une bonne qualité cristalline après irradiation, seule une variation claire de la FWHM étant observée à haute énergie sous ^{12}C . Ces observations suggèrent que le réseau wurtzite du GaN présente une grande résistance au désordre induit par irradiation dans la gamme d'énergies et de fluences étudiées.

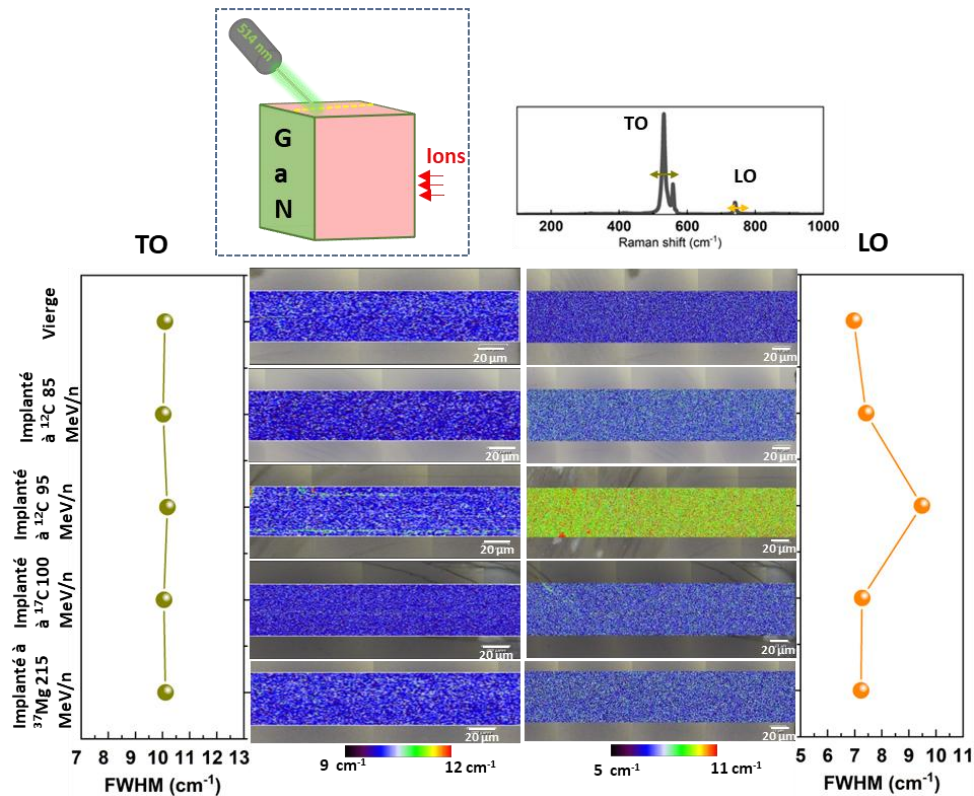


Figure 4.6 : Cartographies de la largeur à mi-hauteur (FWHM) des modes Raman TO (à gauche) et LO (à droite) du GaN avant et après irradiation ionique. Les spectres représentatifs en partie supérieure montrent les pics Raman mesurés sur l'échantillon vierge.

La Figure 4.7 présente l'évolution de la position des modes Raman caractéristiques du SiC après irradiations ioniques. À gauche, le mode transverse optique (TO) est représenté centré à 782 cm^{-1} , et à droite le mode longitudinal optique (LO) est situé à 969 cm^{-1} . Pour chaque mode, un spectre représentatif accompagné de son ajustement (fit) est montré en partie supérieure, tandis que les cartographies en dessous illustrent la distribution spatiale de la position de ces modes sur la zone analysée. Le spectre moyen est aussi présenté à gauche (pour le pic TO) et à droite (pour le pic LO) pour les différents échantillons.

Pour l'échantillon vierge, la position des modes TO et LO demeure homogène sur toute la surface, comme l'indiquent les couleurs uniformes (vert pour le mode TO à 782 cm^{-1} , bleu

pour le mode LO à $969,5 \text{ cm}^{-1}$), traduisant l'absence de contraintes internes et confirmant la bonne homogénéité cristalline du SiC initial. Après irradiation, aucun décalage significatif n'est observé pour les échantillons irradiés au ^{12}C (85 MeV/n et 95 MeV/n) et au ^{17}C (100 MeV/n). En revanche, pour l'échantillon irradié au ^{37}Mg (215 MeV/n), une légère variation de teinte (bleutée) apparaît sur la cartographie du mode TO, correspondant à une position moyenne d'environ $781,8 \text{ cm}^{-1}$. Bien que la variation observée soit aux alentours de $0,2 \text{ cm}^{-1}$, celle-ci n'est pas significative. En effet, des études expérimentales ont établi une relation linéaire entre la contrainte $\Delta\nu$ et le décalage du pic Raman, donnant un rapport de $-1,96 \text{ cm}^{-1}/\text{GPa}$ pour les modes TO de 4H-SiC [5]. Ainsi, un décalage de l'ordre de $0,2 \text{ cm}^{-1}$ correspond à une contrainte d'environ 100 MPa, qui constitue une indication de contraintes induites par les conditions expérimentales étudiées.

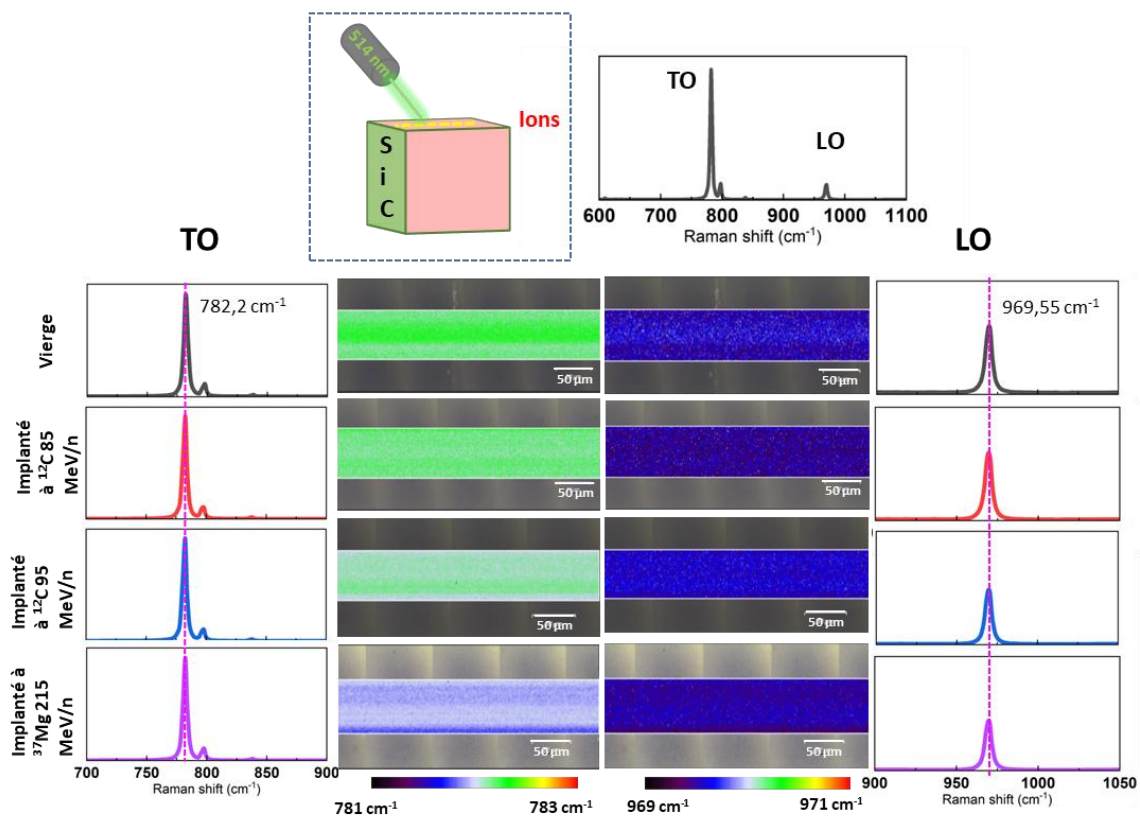


Figure 4.7 : Cartographies de la position des modes Raman TO (à gauche) et LO (à droite) du SiC avant et après irradiation ionique. Les spectres représentatifs en partie supérieure montrent les pics Raman mesurés sur l'échantillon vierge.

La Figure 4.8 présente les cartographies de la largeur à mi-hauteur (FWHM) des modes Raman transverse optique (TO) (à gauche) et longitudinal optique (LO) (à droite) du SiC, avant et après irradiation ionique. Pour chacun de ces modes, un spectre représentatif accompagné de son ajustement (fit) est affiché en partie supérieure.

Avant irradiations, le spectre Raman du mode TO (en haut à gauche) présente un pic intense et très étroit, caractéristique d'un cristal bien ordonné et d'une faible densité de défauts.

Cette observation est confirmée par la cartographie correspondante, qui montre une FWHM homogène d'environ 4 cm^{-1} (coloration uniformément bleue), traduisant une excellente cristallinité et l'absence de contraintes ou de déformations notables dans le matériau initial. Après irradiation au ^{12}C avec des énergies de 85 MeV/n et 95 MeV/n (fluence de $1,14 \times 10^{11} \text{ p/cm}^2$), la FWHM du mode TO demeure identique à celle de l'échantillon vierge. De même, lorsque la masse et l'énergie des ions sont augmentées, comme dans le cas de l'irradiation au ^{37}Mg à 215 MeV/n, aucune variation significative de la FWHM n'est observée. Ces résultats indiquent que, dans les conditions expérimentales utilisées, les irradiations n'ont pas induit de désordre mesurable dans le réseau cristallin du SiC. Le comportement du mode LO (colonne de droite), généralement plus sensible aux perturbations structurales, reste similaire à celui du mode TO. Avant et après irradiation, la FWHM conserve une valeur stable d'environ $4,5 \text{ cm}^{-1}$ (coloration de violette à noire), homogène sur l'ensemble des zones analysées. Cette stabilité confirme la préservation de la qualité cristalline du SiC et l'absence de dégradation notable du réseau atomique, quelle que soit la nature ou l'énergie des ions implantés.

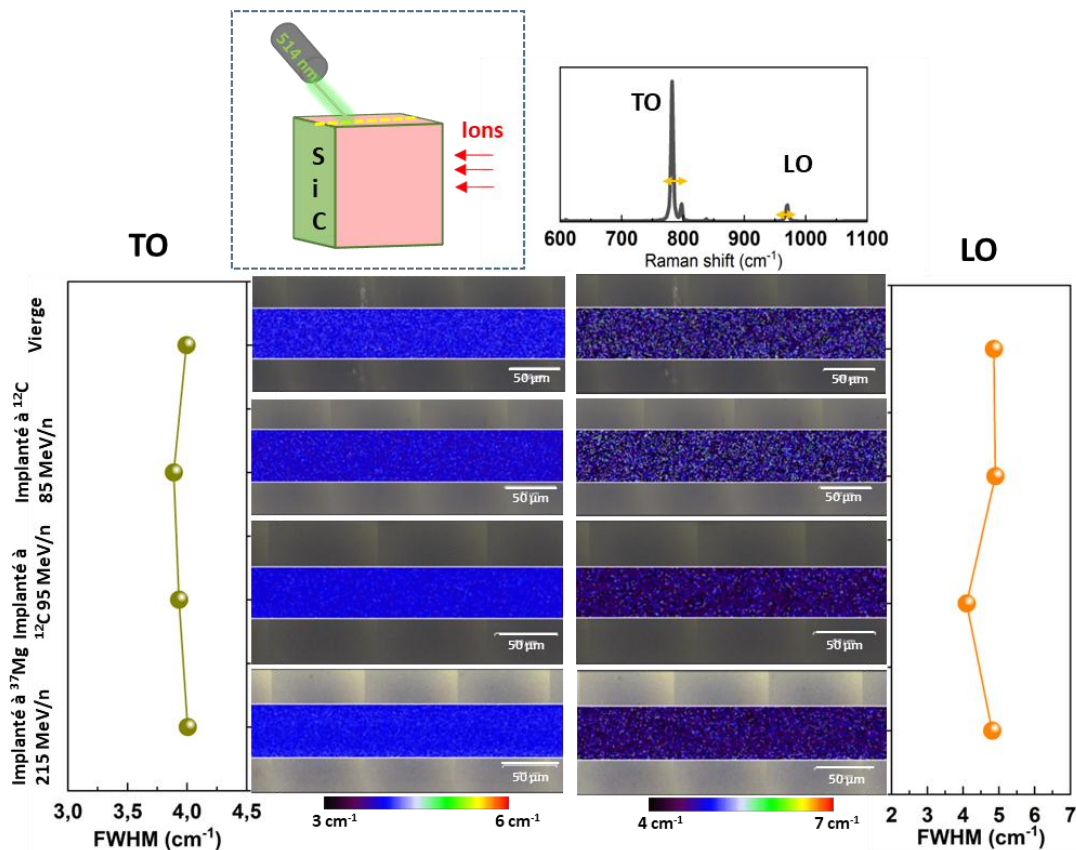


Figure 4.8 : Cartographies de la largeur à mi-hauteur (FWHM) des modes Raman TO (à gauche) et LO (à droite) du SiC avant et après irradiation ionique. Les spectres représentatifs en partie supérieure montrent les pics Raman mesurés.

L'analyse Raman présente une différence entre le SiC et le GaN face aux différentes conditions d'irradiation réalisées. Le SiC conserve globalement sa structure cristalline après irradiation

ionique, sans décalage significatif du mode LO. En revanche, un décalage du mode TO vers les faibles nombres d'onde est observé sans modification de la FWHM, montrant l'absence de désordre ou d'amorphisation notable. Ceci peut être attribué à l'apparition de contraintes dues à des défauts de faibles concentrations. Toutefois, le GaN apparaît plus sensible que le SiC. Les irradiations par ions relativement légers (^{12}C à 95 MeV/n) induisent un décalage du mode LO vers les forts nombres d'ondes reflète une augmentation de la rigidité des liaisons atomiques, induite par des contraintes de compression qui renforcent les constantes de force du réseau cristallin. L'évolution du FWHM du mode LO révèle une augmentation uniquement pour l'irradiation à 95 MeV/n, indiquant un désordre cristallin localisé ou une inhomogénéité des contraintes, tandis que l'absence de variation du FWHM dans les autres cas suggère une préservation globale de l'ordre cristallin. Malgré les faibles différences d'énergie d'irradiation, celle-ci apparaît comme un paramètre déterminant permettant d'expliquer les résultats observés avec la spectroscopie Raman.

Ces observations indiquent que, le carbure de silicium (SiC) se distingue par une résilience supérieure aux effets induits.

Dans le cas présent, aucune détection directe de défauts induits n'a pu être mise en évidence, contrairement aux résultats obtenus pour le SiC dopé présentés au Chapitre 3.

4.2.3 Évaluation des défauts proche de la surface par spectroscopie d'annihilation des positons

Des mesures PAS ont été réalisées sur les échantillons de SiC non dopé HPSI « High Purity Semi-Insulating » et de GaN irradiés aux ions lourds en utilisant la méthode d'analyse de l'élargissement de la raie d'annihilation des positons. Les résultats sont présentés dans ce qui suit.

4.2.3.1 Résultat sur le SiC

4.2.3.1.1 Étude de l'échantillon vierge

La Figure 4.9 présente les valeurs de S et W mesurées en fonction de l'énergie des positons qui varie de 0 à 25 keV pour l'échantillon de SiC HPSI vierge utilisé.

Lorsque l'énergie incidente des positons augmente, les valeurs de S décroissent (W décroît aussi), jusqu'à atteindre un plateau dans la gamme d'énergie de 10 keV à 25 keV. Ce plateau indique l'homogénéité de l'échantillon dans la zone sondée.

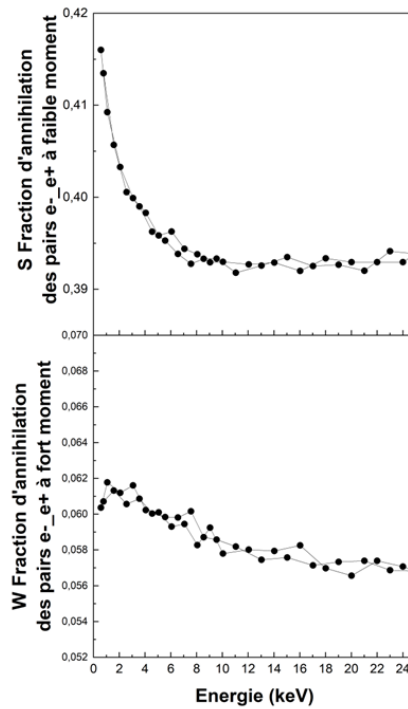


Figure 4.9 : Spectroscopie d'élargissement Doppler sur le SiC non dopé. La fraction d'annihilation des positons de faible moment S ainsi que la fraction d'annihilation de fort moment W a été représentée pour l'échantillon vierge en fonction de l'énergie des positons.

Nous avons utilisé le programme VEPFIT afin d'ajuster les courbes expérimentales en utilisant le modèle à une couche homogène. Les caractéristiques extraites pour la couche sont résumées dans le Tableau 4.3 ainsi que celles de l'échantillon Ilref2 défini au Chapitre 3 comme étant celles du cristal de SiC sans défauts.

Tableau 4.3 : Paramètres extraits de VEPFIT pour l'échantillon de SiC vierge et de Ilref 2.

Échantillons	W_{veffit}	S_{veffit}	$L_{\text{eff}}^+(\text{nm})$
SiC vierge HPSI	$W=0,0578 \pm 0,0017$	$0,3916 \pm 0,0009$	72 ± 20
Ilref2	$0,0571 \pm 0,0001$	$0,3915 \pm 0,0001$	200 ± 5

On constate ainsi que dans l'échantillon vierge, la longueur de diffusion des positons L_{eff}^+ est bien plus faible que dans la référence Ilref2. Cela indique que cet échantillon présente déjà une densité de sites de piégeage de positons. Or, les paramètres S et W mesurés dans l'échantillon vierge sont similaires à ceux mesurés dans la référence Ilref2. Nous concluons que les sites de piégeage ne sont pas des défauts de type lacunaire mais plutôt des ions négatifs. Ces résultats mettent ainsi en évidence la présence de d'impuretés de type accepteur dans l'échantillon de SiC HPSI.

4.2.3.1.2 Étude des échantillons irradiés

- Profils S(E) et W(E)

Les courbes de S(E) et W(E) mesurées sur le SiC non dopé, avant et après irradiation à une fluence de $1,14 \times 10^{11}$ p/cm² avec des ions de ¹²C d'énergie 85 MeV/n et 95 MeV/n et une fluence de 10^8 p/cm² des ions ³⁷Mg à 215 MeV/n, sont représentées dans la Figure 4.10. Dans tous les cas, les courbes S(E) et W(E) sont très similaires. Le paramètre S ainsi que le paramètre W diminue avec l'énergie incidente des positons pour atteindre des plateaux aux plus fortes énergies. Ces plateaux reflètent l'homogénéité des échantillons dans la zone sondée. Globalement nous n'observons pas de différence claire de S(E) et W(E) suite aux différentes irradiations.

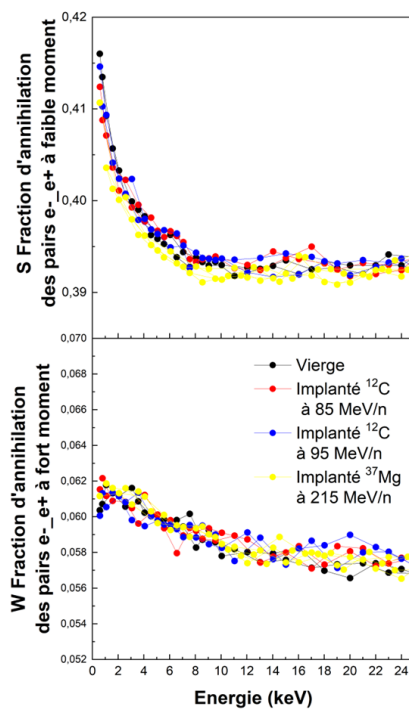


Figure 4.10 : Variation des fractions de positons de faible moment *S*, ainsi que de fort moment *W* en fonction de l'énergie obtenues expérimentalement dans le SiC avant et après irradiation avec une fluence de $1,14 \times 10^{11}$ p/cm² avec des ions de ¹²C d'énergie 85 MeV/n et 95 MeV/n et une fluence de 10^8 p/cm² des ions ³⁷Mg à 215 MeV/n.

Afin de poursuivre l'exploitation des données PAS sur les échantillons irradiés, nous avons procédé à des simulations VEPFIT en utilisant un modèle à une couche. Les résultats de ces simulations sont présentés dans le Tableau 4.4. En prenant en compte les barres d'erreur, nous constatons que les simulations VEPFIT ne mettent pas en évidence une évolution des caractéristiques d'annihilation du SiC non dopé due aux irradiations. Nous en concluons que les défauts générés dans les conditions d'irradiation utilisées sont en dessous de la limite de détection de la technique PAS.

Tableau 4.4 : Paramètres obtenus par VEPFIT pour les échantillons SiC avant et après irradiation à différentes conditions.

Échantillons	W_{Vepfit}	S_{Vepfit}	L_{eff}^+ (nm)
SiC vierge	$0,0578 \pm 0,0010$	$0,3916 \pm 0,0008$	96 ± 23
SiC implanté au ^{12}C à 85 MeV /n	$0,0576 \pm 0,0010$	$0,3928 \pm 0,0005$	77 ± 21
SiC implanté au ^{12}C à 95 MeV /n	$0,0574 \pm 0,0010$	$0,3915 \pm 0,0005$	87 ± 19
SiC implanté au ^{37}Mg à 215 MeV /n	$0,0571 \pm 0,0014$	$0,3919 \pm 0,0007$	68 ± 23

4.2.3.2 Résultat sur le GaN

4.2.3.2.1 Étude de l'échantillon vierge

D'après l'étude présentée au Chapitre 3, le cristal c-GaN SPS a été retenu comme échantillon de référence supposé exempt de défauts. Tout comme pour le SiC, ce choix est motivé par la grande longueur de diffusion des positons mesurée ($L_{\text{eff}}^+ = 159$ nm). En conséquence, cet échantillon peut être considéré comme quasi exempt de défauts. Les paramètres $S = 0,3772 \pm 0,001$ et $W = 0,0858 \pm 0,0020$, extraits des ajustements VEPFIT, peuvent ainsi être considérés comme les valeurs caractéristiques du réseau parfait. Le même échantillon est utilisé comme référence dans la suite de cette étude.

4.2.3.2.2 Étude des échantillons irradiés

- **Profils $S(E)$ et $W(E)$**

Le comportement des paramètres $S(E)$ et $W(E)$ observé dans les échantillons de GaN avant et après les différentes conditions d'irradiation (fluence de $1,14 \times 10^{11}$ p/cm² avec des ions de ^{12}C d'énergie 85 MeV/n et 95 MeV/n et une fluence de 10^8 p/cm² des ions ^{37}Mg à 215 MeV/n) comme présenté sur la Figure 4.11 est similaire. Une diminution du paramètre S (augmentation de W) est observée dans la plage d'énergies de 0 à environ 18 keV, suivie d'un régime de plateau à partir de 18 keV bien visible. Ce plateau indique l'homogénéité des échantillons dans la zone sondée.

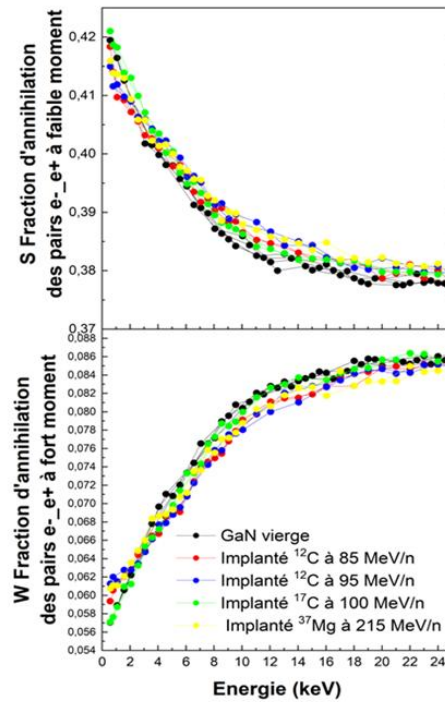


Figure 4.11 : Résultats des mesures de la spectroscopie d'élargissement Doppler sur le GaN. La fraction d'annihilation des positons de faible moment S ainsi que la fraction d'annihilation de fort moment W a été représentée pour des échantillons vierges et irradiés en fonction de l'énergie des positons.

Tout comme pour le SiC, nous avons effectué des simulations VEPFIT des données PAS en utilisant un modèle à une couche. Les résultats sont présentés dans le Tableau 4.5 pour les conditions utilisées.

Tableau 4.5 : Paramètres obtenus par Vepfit pour le GaN avant et après irradiations à différentes conditions.

Échantillons	W_{Vepfit}	S_{Vepfit}	$L_{\text{eff}}^+(\text{nm})$
Vierge SPS	$0,0858 \pm 0,0020$	$0,3772 \pm 0,0010$	159 ± 15
Vierge DPS	$0,0859 \pm 0,0013$	$0,3776 \pm 0,0008$	103 ± 8
Implanté au ^{12}C à 85 MeV /n (SPS)	$0,0854 \pm 0,0022$	$0,3776 \pm 0,0010$	163 ± 16
Implanté au ^{12}C à 95 MeV /n (DPS)	$0,0852 \pm 0,0019$	$0,3779 \pm 0,0010$	105 ± 9
Implanté au ^{17}C à 100 MeV /n (SPS)	$0,0843 \pm 0,0021$	$0,3789 \pm 0,0010$	134 ± 14
Implanté au ^{37}Mg à 215 MeV /n (SPS)	$0,0845 \pm 0,0016$	$0,3785 \pm 0,0009$	145 ± 15

Compte-tenu des barres d'erreur, les simulations VEPFIT ne permettent pas de mettre en évidence une évolution des caractéristiques d'annihilation du GaN suite aux irradiations. Tout comme pour le SiC, nous en concluons que les défauts générés dans les conditions d'irradiation utilisées sont en dessous de la limite de détection de la technique PAS.

4.2.4 Bilan des techniques de caractérisation

L'ensemble des techniques de caractérisation ont été réalisées sur le GaN et le SiC pour pouvoir étudier les propriétés optiques et structurales post-irradiation. Le Tableau 4.6 montre une analyse comparative des informations fournies par les différentes techniques de caractérisation dans le SiC et le GaN.

Tableau 4.6 : Résultat des défauts détectés par les différentes technique de caractérisation utilisées sur le SiC et GaN après irradiation a hautes énergies.

Échantillons	Absorption UV-visible	PL	Raman	PAS
SiC	Pas de nouvelles bandes d'absorption	Pas d'observation de défauts induits par irradiation	Pas de décalage significatif	Défauts au-dessous du seuil de détection
GaN	Pas de nouvelles bandes d'absorption	Observation de V_N	Décalage du pic LO	Défauts au-dessous du seuil de détection

Les différences fondamentales entre ces deux matériaux à ces faibles dpa peuvent être mises en évidence par la photoluminescence (PL) et la spectroscopie Raman. Dans le GaN, les lacunes d'azote (V_N) apparaissent clairement en PL comme une réponse directe aux irradiations à haute énergie (>85 MeV/n).

4.3 Bilan du chapitre

Ce chapitre avait pour objectif de compléter les études réalisées avec l'implantation d'hydrogène pour déterminer le matériau le plus approprié pour servir de radiateur Cherenkov, à partir de la caractérisation expérimentale du SiC non dopé et du GaN soumis à des irradiations à haute énergie.

Les analyses optiques d'absorption UV-Visible ont montré qu'aucune différence notable n'apparaît entre les échantillons vierges et irradiés, tant pour le SiC que pour le GaN. En photoluminescence, en revanche, le GaN irradié avec des ions ^{17}C (100 MeV/n) et ^{37}Mg (215 MeV/n) à une fluence de $\sim 10^8$ p/cm² révèle l'apparition nette d'une bande verte (GL), caractéristique de défauts de lacunes d'azote (V_N). Cette bande apparaît plus intense dans les irradiations à fortes doses au ^{12}C (85 et 95 MeV/n, fluence $1,14 \times 10^{11}$ p/cm²), ce qui peut indiquer une dépendance complexe entre la dose d'irradiation, et la formation de défauts

profonds. Dans le SiC, seule une très faible émission autour de 550 nm, probablement associée à des paires donneur–accepteur (DAP), est observée dans les échantillons irradiés sans autre modification notable.

Les résultats Raman confirment cette robustesse du SiC : aucune altération significative n'est détectée. À l'inverse, le GaN après irradiation au ^{12}C à 95 MeV/n, induit un décalage du mode LO accompagné d'un élargissement subtil de sa FWHM. Bien que cette variation reste modérée, elle confirme que le GaN demeure le plus sensible aux effets de l'irradiation,

Pour les mesures PAS, la concentration des V_{Ga} et V_{Si} dans le GaN ainsi que le SiC, respectivement, sont selon les simulations SRIM inférieur à 10^{15} cm^{-3} qui représente le seuil minimal de détection de la technique. Ce qui souligne que les défauts de charge négative ainsi que les défauts neutres sont de concentration inférieur à 10^{15} cm^{-3} alors que les défauts de charge positive ne peuvent être détectés.

Les observations expérimentales doivent pour la suite être combinée à des résultats de simulation pour confirmer si le SiC se démarque comme le matériau le plus robuste, le plus stable et le plus adapté pour servir de radiateur Cherenkov dans le cadre de ce travail. Le Chapitre 5 sera donc dédié à la dernière étape du processus de sélection du radiateur Cherenkov en utilisant des simulations GEANT4 et ROOT.

4.4 Synthèse et validation de la méthodologie utilisée dans cette thèse

L'objectif de cette analyse est de comparer les effets des irradiations sur des échantillons soumis à des régimes de dpa différents (forts dpa et faibles dpa) en balayant une large gamme. Le Chapitre 3 a porté sur des implantations d'hydrogène à 2 MeV et deux fluences conduisant à des dpa au Rp variants entre 10^{-8} et 10^{-3} . Tandis que le Chapitre 4 s'est intéressé aux irradiations par ions lourds à hautes énergies ($\geq 85 \text{ MeV/n}$) caractérisé par de faibles dpa allant de 10^{-12} à 10^{-9} . Cette étude s'intéresse à faire une synthèse sur les deux chapitres.

Le Chapitre 3 a montré les effets des implantations d'hydrogène sur les différents échantillons en utilisant différentes techniques de caractérisation. Celles-ci ont montré l'apparition de différents types de défauts, en particulier les lacunes dont la concentration a été déterminée par PAS. Ces défauts ont surtout été étudiés dans la région (IT), avec des dpa variant entre 10^{-8} et 10^{-4} . La Figure 4.12 montre l'évolution des lacunes évaluées par PAS ainsi que par SRIM observées dans le SiC, le diamant ainsi que le GaN dans le domaine de dpa variant de 10^{-8} à 10^{-4} . D'après les résultats montrés sur la Figure 4.12, il apparait que la PAS n'est pas sensible à des concentration inférieure à quelques 10^{15} cm^{-3} .

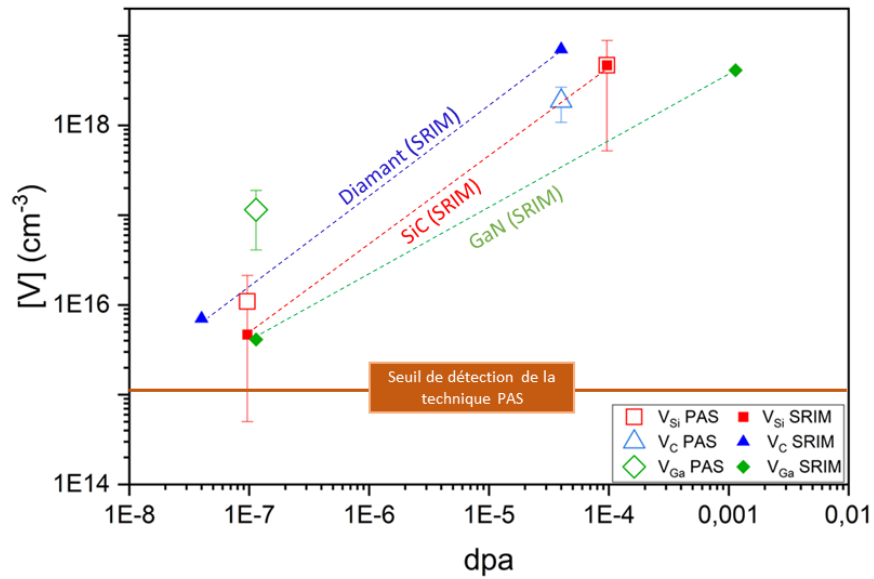


Figure 4.12 : Concentration des lacunes en fonction des dpa après une implantation d'hydrogène dans le SiC, le diamant et le GaN. Les résultats obtenus par SRIM sont comparés à ceux obtenus par PAS.

Le Chapitre 4 s'est intéressé sur un autre régime d'irradiation différent. Il se focalise sur des ions lourds avec des énergies bien plus importantes. Cette approche consiste à l'utilisation de faibles dpa (10^{-12} à 10^{-9}) pour voir l'évolution des concentrations de défauts dans des conditions plus réelles comme cela a été le cas dans le chapitre précédent. Malheureusement, l'utilisation de la PAS pour l'évaluation des concentrations des lacunes n'a pas abouti, car celles-ci sont au-dessous du seuil de détection de la technique. La Figure 4.13 montre les concentrations des lacunes estimées par SRIM en fonction des dpa utilisés.

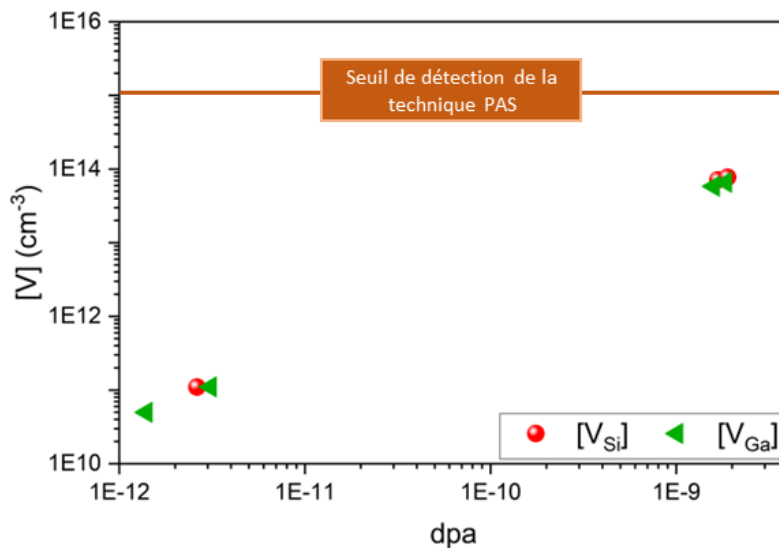


Figure 4.13 : Concentration des lacunes estimée par SRIM en fonction des dpa induits après irradiation aux ions lourds dans le SiC et le GaN.

Nous avons résumé les valeurs présentées sur la figure dans le tableau ci-dessous résumes les valeurs des dpa ainsi que les concentrations des lacunes dans le SiC et le GaN estimés par SRIM.

Tableau 4.7 : *dpa et concentration des lacunes estimées par SRIM dans le SiC et le GaN à différentes conditions d'irradiation.*

Échantillons	SiC		GaN	
	Dpa	[V _{Si}]	dpa	[V _{Ga}]
Implanté au ¹² C à 85 MeV /n	$1,68 \times 10^{-9}$	$7,134 \times 10^{13}$	$1,59 \times 10^{-9}$	$5,85 \times 10^{13}$
Implanté au ¹² C à 95 MeV /n	$1,89 \times 10^{-9}$	$7,74 \times 10^{13}$	$1,85 \times 10^{-9}$	$6,63 \times 10^{13}$
Implanté au ¹⁷ C à 100 MeV /n			$1,4 \times 10^{-12}$	$4,97 \times 10^{10}$
Implanté au ³⁷ Mg à 215 MeV /n	$2,62 \times 10^{-12}$	$1,10 \times 10^{11}$	$3,1 \times 10^{-12}$	$1,11 \times 10^{11}$

Nous pouvons dire qu'en terme de lacunes, la PAS est très peu sensible aux concentrations de celles-ci générées dans ces conditions.

Limite de l'étude à dpa comparables

Les approches utilisant des techniques de caractérisations comme la PAS, montrent que les concentrations des lacunes (défauts) évoluent avec le dpa. Cependant, les résultats obtenus sur le GaN irradié avec les ions lourds (¹²C, ¹⁷C et ³⁷Mg) montre la formation d'une bande de luminescence attribuée à la monolacune d'azote. Ces conditions d'irradiation, correspondant à des dpa de l'ordre de $\sim 10^{-12}$ contrastent fortement avec celles du Chapitre 3, où des irradiations atteignant des dpa allant jusqu'à 10^{-3} n'avaient révélé aucune signature de ce type de défaut. Ce résultat montre que l'approche basée sur des dpa comparables ne permet pas, à elle seule, une description complète des défauts induits par l'irradiation. Plus généralement, il met en évidence que le passage d'un régime de fort à faible dpa ne préjuge pas de la nature ni de l'apparition des défauts créés.

Ainsi, le choix de la méthodologie mise en œuvre dans les Chapitres 3 et 4 est pleinement validé par l'ensemble des résultats obtenus en termes de lacunes. En atteignant une fluence de 5×10^{15} H/cm² correspondant à un dpa de $\sim 10^{-3}$ au Rp, nous considérons avoir largement exploré le domaine des défauts. De plus, à la fluence de 5×10^{12} H⁺/cm², hormis la PAS aucune évolution post-irradiation n'a été détectée par les autres techniques de caractérisation utilisées, probablement dû aux concentrations des défauts qui sont sous leur seuil de détection. Néanmoins, l'observation de signatures de défauts à des valeurs de dpa nettement plus faibles $\sim 10^{-12}$ que celles utilisées au FRIB, révélées par les mesures de photoluminescence, montre clairement que le dpa ne constitue pas, à lui seul, un paramètre suffisant pour décrire les mécanismes d'endommagement induits par irradiation. Ces résultats mettent en évidence

le rôle déterminant d'autres paramètres physiques, en particulier l'énergie par nucléon et la masse des ions incidents, qui apparaissent comme des facteurs clés dans la nature et l'efficacité des processus de création de défauts.

Il est important d'ajouter que ces études à faible dpa concernent essentiellement la zone de trace comme montré sur la Figure 4.14a. Toutefois, le détecteur Cherenkov doit comporter un radiateur suffisamment épais pour pouvoir arrêter les particules et calculer les énergies déposées par celles-ci, comme il sera élaboré dans le Chapitre 5 (Figure 4.14b). Nous avons estimé des dpa de l'ordre de $\sim 10^{-9}$ qui correspondent aux conditions réelles auxquelles le détecteur Cherenkov sera soumis à FRIB au Chapitre 3. Ces dpa sont parfaitement incluses dans notre étude.

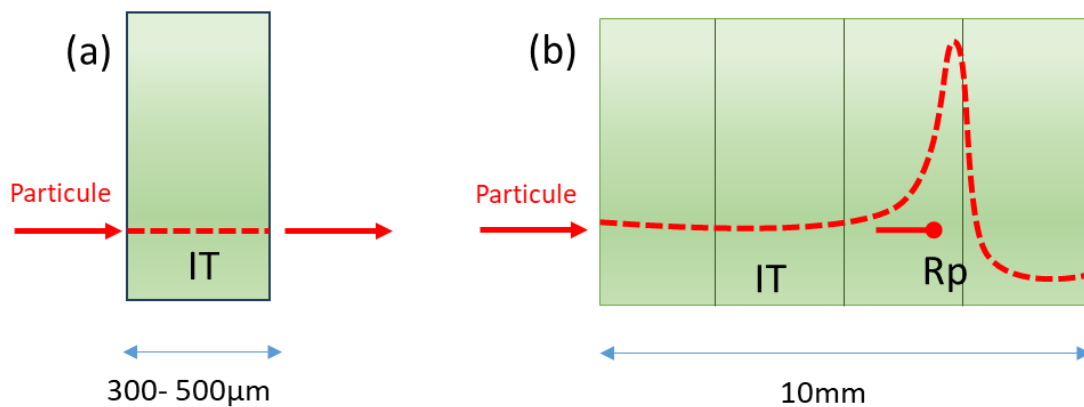


Figure 4.14 : **(a)** Schéma illustrant la zone de trace étudiée lorsque la particule passe à travers les échantillons et **(b)** la zone Rp lorsque la particule est stoppée dans les échantillons.

Références

- [1] P. Pittet *et al.*, « Implantable real-time dosimetric probe using GaN as scintillation material », *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 151, n° 1, p. 29-34, avr. 2009, doi: 10.1016/j.sna.2009.02.018.
- [2] M. A. Reshchikov, « Point Defects in GaN », in *Semiconductors and Semimetals*, vol. 91, Elsevier, 2015, p. 315-367. doi: 10.1016/bs.semsem.2014.11.003.
- [3] M. A. Reshchikov, « Luminescence Properties of Defects in GaN: Solved and Unsolved Problems », *Solids*, vol. 6, n° 3, p. 52, sept. 2025, doi: 10.3390/solids6030052.
- [4] H. Harima, « Properties of GaN and related compounds studied by means of Raman scattering », *J. Phys.: Condens. Matter*, vol. 14, n° 38, p. R967-R993, sept. 2002, doi: 10.1088/0953-8984/14/38/201.
- [5] N. Sugiyama *et al.*, « Correlation of Stress in Silicon Carbide Crystal and Frequency Shift in Micro-Raman Spectroscopy », *MRS Proc.*, vol. 1693, p. mrss14-1693-dd01-07, 2014, doi: 10.1557/opl.2014.580.
- [6] V. Kršjak *et al.*, « A new approach to near-surface positron annihilation analysis of ion irradiated ferritic alloys », *Nanoscale Adv.*, vol. 3, n° 23, p. 6596-6607, 2021, doi: 10.1039/D1NA00394A.
- [7] A. Kawasuso *et al.*, « Silicon vacancies in 3C-SiC observed by positron lifetime and electron spin resonance », *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, vol. 67, n° 2, p. 209-212, août 1998, doi: 10.1007/s003390050759.
- [8] K. Saarinen *et al.*, « Observation of Native Ga Vacancies in GaN by Positron Annihilation », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 79, n° 16, p. 3030-3033, oct. 1997, doi: 10.1103/PhysRevLett.79.3030.

Chapitre 5. Vers la réalisation d'un prototype de détecteur Cherenkov pour la collaboration MoNA au FRIB

Table des matières

5	Vers la réalisation d'un prototype de détecteur Cherenkov pour la collaboration MoNA au FRIB	148
5.1	Simulation du rayonnement Cherenkov avec GEANT4.....	148
5.2	Simulation de la séparation isotopique avec ROOT	149
5.3	Conception préliminaire d'un prototype de détecteur Cherenkov au FRIB	155
5.3.1	Étude de la géométrie	156
5.3.2	Différentes méthodes de détection	157
5.3.3	Mesure de l'énergie déposée dans le matériau (métallisation)	160
5.4	Bilan du chapitre	161
	Références.....	162

5 Vers la réalisation d'un prototype de détecteur Cherenkov pour la collaboration MoNA au FRIB

Les études et caractérisations réalisées dans les Chapitres 3 et 4 nous ont permis de sélectionner le matériau qui semble être le plus résistant aux irradiations parmi différents matériaux utilisés. Bien que le SiC soit apparu comme le plus performant, nous avons toutefois décidé de tester les deux matériaux, le GaN et le SiC, dans les conditions réelles de FRIB. Nous nous sommes ainsi donné une possibilité supplémentaire pour comparer les deux matériaux.

Ce chapitre présente une modélisation préliminaire d'un prototype Cherenkov destiné à compléter l'appareillage expérimental de la Collaboration MoNA pour l'identification des particules (PID) comme présenté dans le Chapitre 2 (section 2.3.3.1), d'une part et d'autre part l'état de la réalisation du prototype.

Afin de relier quantitativement ces observations aux mécanismes physiques sous-jacents et d'extrapoler la réponse des matériaux aux conditions de faisceaux réelles de FRIB, une approche de modélisation et de simulation Monte-Carlo a été développée dans ce chapitre. Elle combine **GEANT4** [1] et **ROOT** pour modéliser la réponse optique d'un détecteur Cherenkov et pour analyser le pouvoir de séparation dans un matériau donné.

L'objectif de ce chapitre est de simuler les performances réelles du radiateur pour la séparation isotopique dans les conditions opérationnelles de FRIB. Par la suite, les différentes approches pour la réalisations d'un prototype seront présenté.

5.1 Simulation du rayonnement Cherenkov avec GEANT4

Les simulations réalisées avec le code GEANT4 ont été menées exclusivement sur le GaN. Ce choix initial reposait sur l'hypothèse, largement soutenue par la littérature, selon laquelle le GaN présente une meilleure résistance aux irradiations et des propriétés électroniques particulièrement favorables pour les applications envisagées.

Toutefois, les résultats des caractérisations expérimentales ont mis en évidence un comportement plus robuste du SiC sous irradiation, notamment en termes de stabilité structurale et de réponse aux défauts induits. Ces observations ont conduit à une réévaluation de l'hypothèse initiale et ont montré que, malgré des prédictions numériques favorables au GaN, le SiC présente des performances supérieures dans les conditions expérimentales étudiées

Le logiciel GEANT4 a été utilisé pour modéliser la propagation des particules dans le GaN (volumes), ainsi que pour simuler la génération du rayonnement Cherenkov. Chaque matériau consiste en un bloc de $1 \times 1 \times 0,03 \text{ cm}^3$, placé sous vide et défini avec ses propriétés optiques propres (voir Chapitre 2). Les faisceaux sont émis à 2 cm en amont de la boîte et toutes les particules émises durant l'interaction faisceau-matériau sont suivies.

Les résultats de simulation réalisés sur le GaN montrent que l'émission du rayonnement Cherenkov se manifeste sous la forme d'un cône caractéristique (Figure 5.1a), dont l'angle d'émission dépend de la vitesse de la particule et de l'indice de réfraction du matériau : $\cos \theta_c = 1/n\beta$ (comme présenté dans le Chapitre 1). La détection de l'anneau du cône (Figure 5.1b) permet ainsi de reconstruire la vitesse de la particule qui traverse le radiateur.

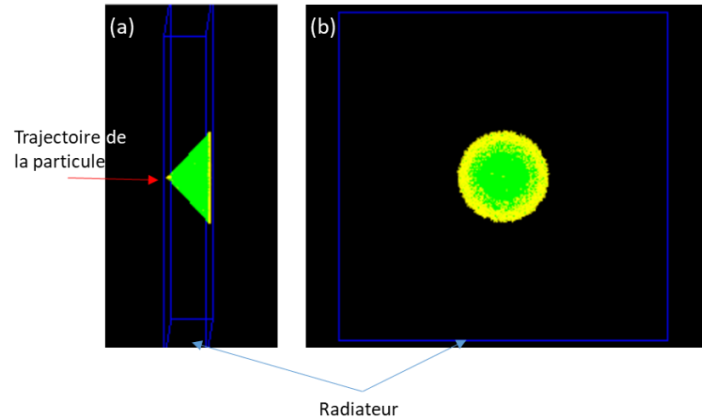


Figure 5.1 : Visualisations sous Geant4 du ^{53}Ca avec une énergie cinétique de 180 MeV/n dans le GaN (radiateur en bleu). La distribution des photons Cherenkov sur la surface du détecteur sous forme d'un cône (a) et d'un anneau (b) est représentée. La couleur verte représente les photons émis dans le volume alors que le jaune représente l'interaction avec la surface du radiateur (GaN dans notre cas).

Les calculs montrent que pour des particules ayant une énergie cinétique de 180 MeV/n, l'angle d'émission est d'environ 45° dans le SiC et 41° dans le GaN, ce qui est cohérent avec leurs indices de réfraction de 2,60 et 2,44, respectivement.

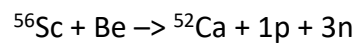
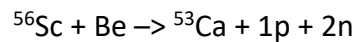
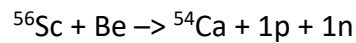
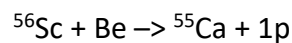
Les simulations GEANT4 confirment que les matériaux semiconducteurs tels que le GaN produisent un cône Cherenkov net. Ces résultats suggèrent que la détection Cherenkov dans les semi-conducteurs est réalisable et que les variations des propriétés des matériaux peuvent être exploitées pour optimiser la sensibilité et la résolution angulaire. Les visualisations permettent également d'estimer la densité de photons émis et leur répartition angulaire.

5.2 Simulation de la séparation isotopique avec ROOT

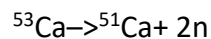
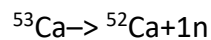
L'objectif de ces simulations est l'évaluation de la séparation isotopique entre les noyaux ^{52}Ca et ^{53}Ca au moyen d'un détecteur Cherenkov, une analyse analytique a été menée avec ROOT en considérant des conditions réalistes d'exploitation, notamment une énergie cinétique de 180 MeV/n pour les faisceaux, avec une dispersion énergétique de $\frac{\Delta E}{E} = 1\%$. Cet outil permet de générer des histogrammes contenant la vitesse relative ainsi que l'angle d'ouverture des photons Cherenkov pour chaque isotope. Le principe de l'évaluation dans ROOT est simple : si la séparation isotopique est possible, la somme des histogrammes des deux isotopes doit

faire apparaître deux pics distincts, chacun correspondant à un isotope. Autrement dit, la séparation doit être identifiable directement par inspection visuelle des distributions.

Dans le cadre de cette étude, plusieurs mécanismes peuvent conduire à la production des isotopes de calcium détectés. D'une part, les isotopes peuvent être générés directement par des réactions de fragmentation du faisceau primaire, en particulier à partir du ^{54}Sc (scandium) avec le béryllium (Be). Lors de cette interaction, le faisceau incident peut perdre un proton, suivi éventuellement de l'émission de neutrons, conduisant à la formation des différents isotopes du calcium. Ce mécanisme constitue l'une des sources majeures de production du ^{53}Ca , ^{52}Ca et d'isotopes plus légers. Les réactions les plus probables peuvent être représentées comme suit :



D'autre part, certains isotopes observés peuvent également provenir de la décroissance quasi instantanée d'un noyau produit lors de la réaction initiale. Par exemple, le ^{53}Ca dont la demi-vie est très courte (461 ms selon la base de données NuDat3 [2]), une fois formé, se désintègre presque immédiatement après sa formation par émission d'un ou plusieurs neutrons, générant ainsi divers isotopes :



Ces fragments modifient la distribution isotopique finale atteignant le détecteur. En particulier, la production directe de ^{52}Ca à partir de la décroissance du ^{53}Ca ou d'autres particules a un impact important sur l'analyse, car elle introduit un mélange naturel entre les différents isotopes d'intérêt. La prise en compte de ces processus est donc essentielle pour interpréter correctement les distributions des photons Cherenkov simulées et évaluer la performance réelle de la séparation isotopique

Finalement, la séparation de deux isotopes de masses adjacentes, tels que ^{55}Ca et ^{54}Ca ou ^{54}Ca et ^{53}Ca , constitue un indicateur de la possibilité de séparer les isotopes ^{55}Ca , ^{54}Ca , ^{53}Ca et ^{52}Ca et d'autres particules.

5.2.1.1 Séparation des isotopes de calcium obtenus par réaction du faisceau primaire

La Figure 5.2 illustre l'effet de la résolution énergétique du faisceau primaire $\frac{\Delta E}{E}$ sur les distributions de l'énergie (E), de la vitesse relative (β) et de l'angle d'émission des photons

Cherenkov (θ) d'isotopes de calcium produits par la réaction de fragmentation du ^{54}Sc avec le béryllium dans le GaN. Avec une résolution de $\frac{\Delta E}{E} = 1\%$, les histogrammes montrent des distributions larges, avec un recouvrement important entre isotopes, en particulier pour β et θ où les courbes se superposent presque intégralement (Figure 5.2a). Cette configuration rend la discrimination isotopique impossible. À l'inverse, lorsque la résolution est de 0,1%, les distributions deviennent beaucoup plus étroites et la séparation est observée (Figure 5.2b) : chaque isotope présente alors un pic distinct, permettant une identification précise. Cette comparaison met en évidence le rôle déterminant de la résolution du faisceau dans la capacité à distinguer les isotopes produits par fragmentation.

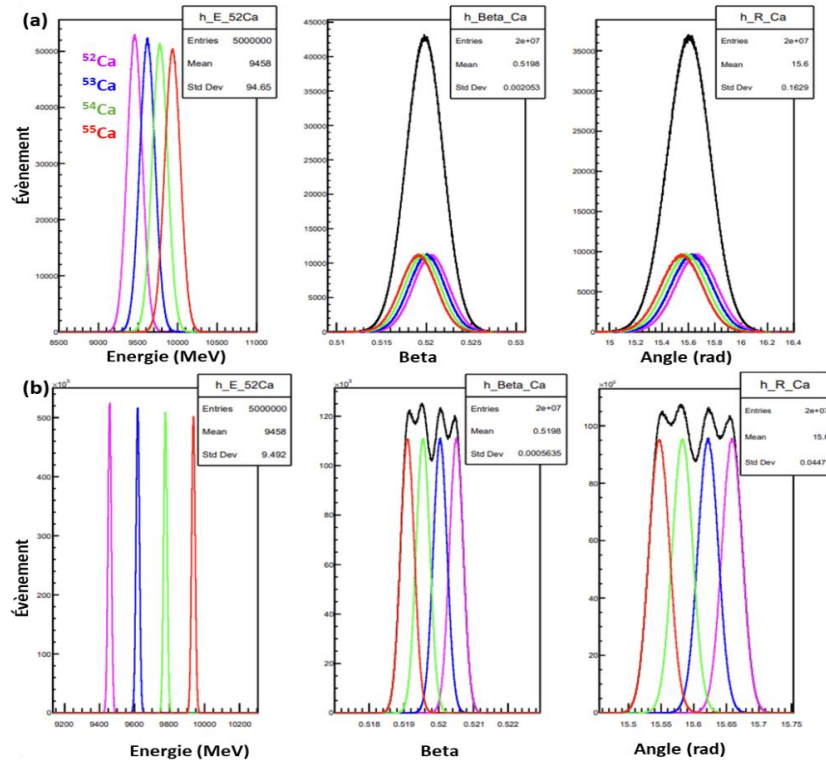


Figure 5.2 : Distributions simulées dans le GaN avec ROOT de l'énergie cinétique (Energie), de la vitesse relative (β) et de l'angle Cherenkov (Angle) pour les différents isotopes de calcium produits (^{52}Ca en magenta, ^{53}Ca en bleu, ^{54}Ca en vert et ^{55}Ca en rouge) par la fragmentation du ^{56}Sc avec une résolution énergétique du faisceau de : **(a)** 1% et **(b)** 0,1%.

5.2.1.2 Séparation des isotopes de calcium obtenus par décroissance des fragments

D'après les simulations ROOT, la superposition des distributions ne révèle aucune structure distincte permettant de différencier clairement le ^{52}Ca et le ^{53}Ca issus d'une décroissance instantanée. La Figure 5.3 illustre le résultat obtenu sur le GaN dans les conditions expérimentales de FRIB en considérant uniquement deux isotopes de calcium (^{53}Ca en bleu et le ^{52}Ca en rouge) avec une dispersion $\frac{\Delta E}{E} = 1\%$.

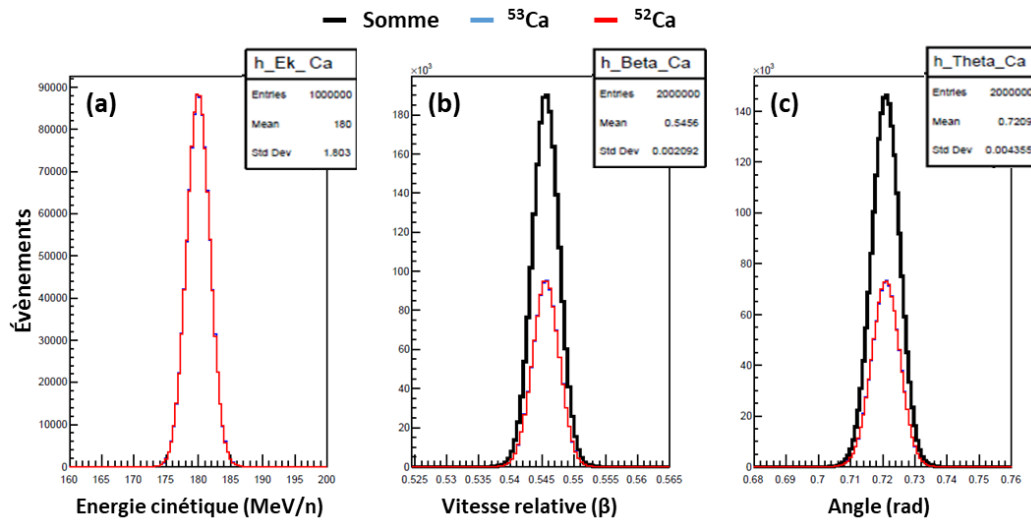


Figure 5.3 : Simulation avec ROOT de : (a) l'énergie cinétique des isotopes de Ca, (b) la vitesse relative du ^{52}Ca et du ^{53}Ca , et (c) l'angle d'émission des photons Cherenkov obtenus après le passage de chaque isotope dans le GaN. Les courbes en noir représentent la somme des deux contributions isotopiques.

D'après les histogrammes obtenus, la séparation dans de telles conditions est très difficile. En effet, les deux isotopes présentent des masses très proches, ce qui, à énergie par nucléon constante (180 MeV/n dans notre cas), se traduit par une différence de vitesse $\Delta\beta$ ($\beta_{52}-\beta_{53}$) très faible ($\sim 10^{-9}$). Toutefois, dans les conditions envisagées ici, la dispersion énergétique de 1% introduit une incertitude sur β équivalente, voire supérieure, à celle induite par la différence isotopique. Ce "beam spread" génère donc un chevauchement quasi complet des cônes Cherenkov des deux isotopes, rendant leur séparation très difficile en l'absence de dispositif complémentaire. En conséquence, bien que des matériaux comme le GaN ou le SiC soient adaptés en termes de transparence et d'indice de réfraction, les contraintes liées à la résolution et à la stabilité du faisceau ne permettent pas, dans ce contexte, une séparation efficace des isotopes ^{52}Ca et ^{53}Ca uniquement via le rayonnement Cherenkov. Des solutions alternatives, reposant notamment sur la mesure de la perte d'énergie dans le matériau, combinée à l'amélioration de la résolution du faisceau doivent être envisagées pour surmonter cette limitation fondamentale.

Une étude proposée par Fiks *et al.* [3], qui repose sur la formule de Bethe-Bloch pour la perte d'énergie par ionisation dans un radiateur mince (0,25 cm - 0,5 cm), permettant d'estimer la largeur de la distribution angulaire des photons Cherenkov émis par des ions lourds relativistes (RHI-Relativistic Heavy Ions) ayant une énergie de 1000 MeV/n a été testé et est représentée par la Figure 5.4 qui illustre deux scénarios possibles :

- Figure 5.4a : on suppose que l'ion conserve une vitesse constante tout au long de sa trajectoire dans le radiateur d'épaisseur L.

- Figure 5.4b : on intègre la diminution de la vitesse de l'ion le long de son passage dans le matériau due à l'énergie perdue, selon la formule de Bethe-Bloch. Cette perte d'énergie entraîne une réduction de la vitesse finale de la particule par rapport à son état initial, modifiant l'angle d'émission Cherenkov de θ_0 à θ_1 .

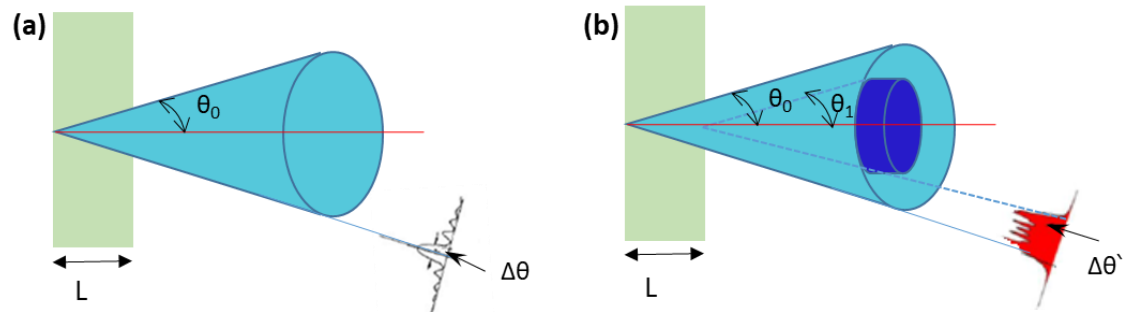


Figure 5.4 : Schéma représentant l'émission du cône Cherenkov ainsi que la variation angulaire obtenue lorsqu'une particule traverse un radiateur d'épaisseur L avec une vitesse considérée constante **(a)** ou variable et due à sa perte d'énergie **(b)**.

Grâce à cette méthode il est à la fois possible de déterminer la vitesse des particules et leur charge en se basant sur l'épaisseur de l'anneau obtenu.

En effet, la perte d'énergie par ionisation, décrite par Bethe-Bloch, dépend de la charge au carré Z^2 ainsi que de la masse de la particule : pour deux particules P_1 (Figure 5.5a) et P_2 (Figure 5.5b) de masses m_1 et m_2 respectivement, l'épaisseur de l'anneau Cherenkov émis par P_2 sera importante comparativement à celui émis par P_1 si $m_1 > m_2$.

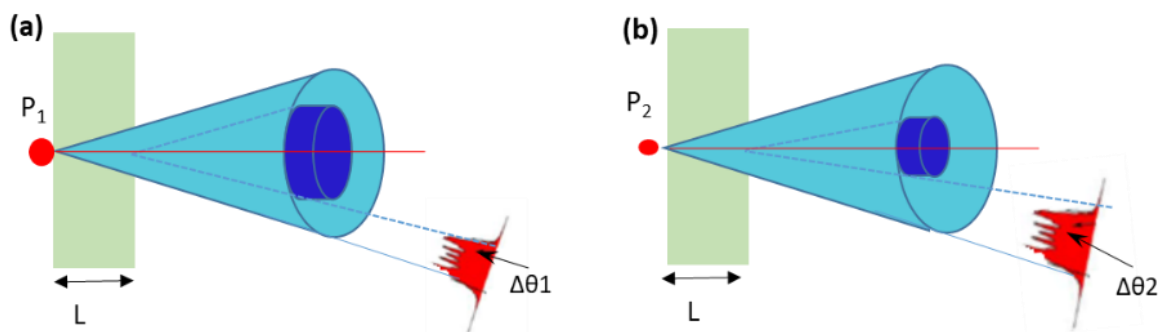


Figure 5.5 : Schéma représentant l'émission du cône Cherenkov ainsi que la variation angulaire obtenue dans un radiateur d'épaisseur L traversé par : **(a)** une particule P_1 de masse m_1 et **(b)** une particule P_2 de masse m_2 . La variation angulaire dépend de la masse des particules. Dans ce cas $m_1 > m_2$.

Nous avons reproduit cette méthode de calcul en prenant en compte la perte d'énergie en utilisant le GaN et le SiC des épaisseurs de 1 cm ; avec une énergie de 180 MeV/n et différentes résolutions du faisceau.

- **Cas du GaN**

La Figure 5.6 présente les résultats obtenus avec la simulation ROOT réalisée pour le GaN, visant à évaluer la capacité de séparation isotopique entre le ^{53}Ca (courbes vertes) et le ^{52}Ca (courbes rouges) à partir de la distribution angulaire Cherenkov $\Delta\theta$, utilisée comme variable discriminante. Les courbes noires correspondent à la somme des deux distributions et représentent ainsi le signal total mesuré.

Les Figure 5.6a, 5.6b et 5.6c illustrent l'effet de différentes résolutions énergétique du faisceau sur la forme des pics et leur degré de recouvrement.

Avec une résolution de 1% (Figure 5.6a), les distributions de ^{52}Ca et ^{53}Ca sont larges et fortement superposées, rendant toute séparation impossible.

Lorsque la résolution est égale à 0,35% (Figure 5.6b), les pics deviennent plus étroits et la distinction entre les deux isotopes s'améliore, mais reste insuffisante pour une séparation nette.

Enfin, la Figure 5.6c montre qu'une résolution de 0,325% est nécessaire pour obtenir une séparation claire entre le ^{52}Ca et le ^{53}Ca .

Cette comparaison met en évidence l'influence déterminante de la résolution du faisceau sur la capacité de discrimination isotopique

Actuellement, une nouvelle méthode expérimentale de reconstruction de la carte de champ magnétique du Sweeper semble donner des résultats prometteurs pour atteindre cette résolution [4]. Une telle évolution permettra l'utilisation d'un radiateur à base de SiC essentiellement et de GaN le cas échéant.

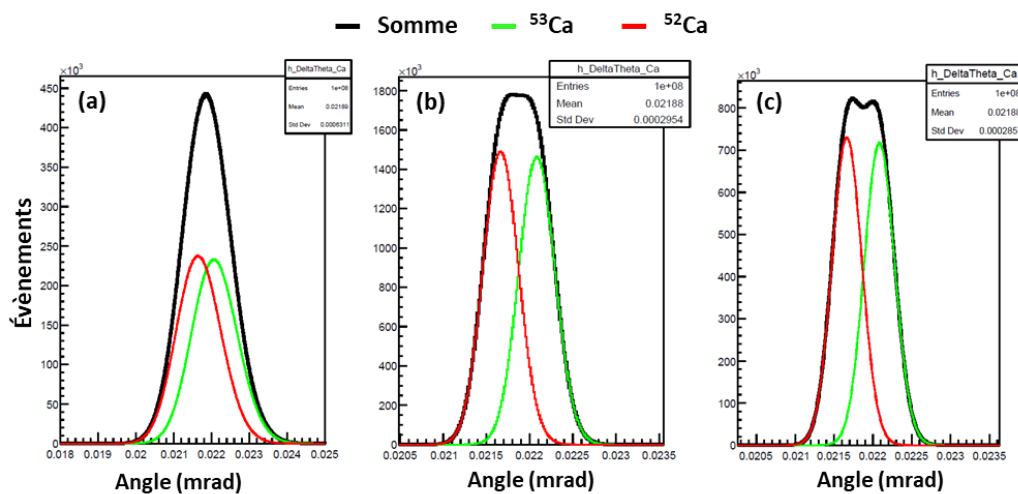


Figure 5.6 : Simulation avec ROOT de la distribution angulaire des isotopes ^{52}Ca et ^{53}Ca accélérés dans le GaN avec une énergie cinétique de 180 MeV/n et une résolution du faisceau de : (a) 1%, (b) 0,35% et (c) 0,325%.

- Cas du SiC

La Figure 5.7 présente les résultats obtenus avec la simulation ROOT réalisée pour le SiC. Les conditions utilisées sont identiques à celle du GaN : le ^{53}Ca est représenté par les courbes vertes et le ^{52}Ca avec les courbes rouges, tandis que les courbes noires correspondent à la somme des deux distributions. Une conclusion similaire au cas précédent peut être faite où l'évolution de la séparation isotopique s'améliore fortement quand la résolution du faisceau passe de 1% (Figure 5.7a) à 0,325% (Figure 5.7c).

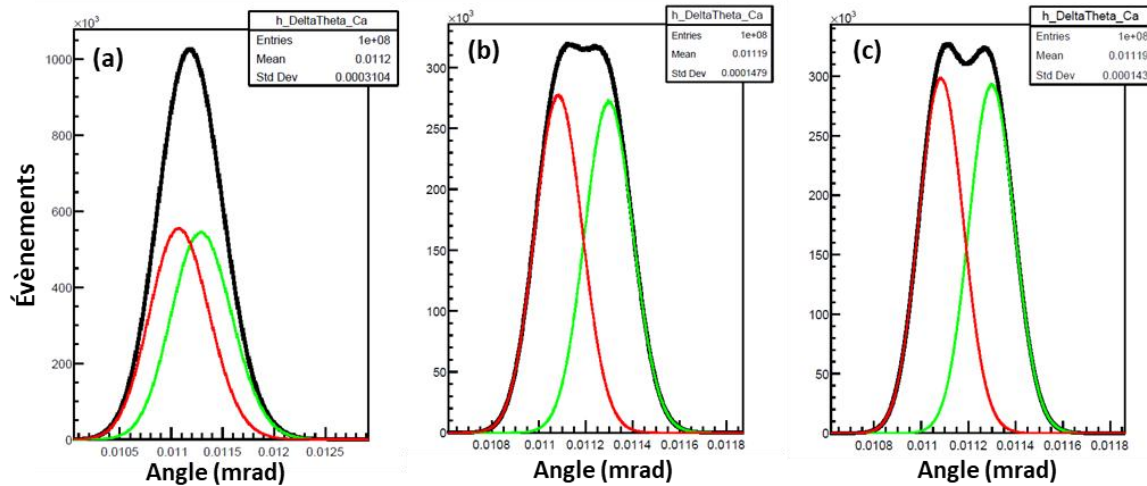


Figure 5.7 : Simulation avec ROOT de la distribution angulaire des isotopes ^{52}Ca et ^{53}Ca accélérés dans le SiC avec une énergie cinétique de 180 MeV/n et une résolution du faisceau de : **(a)** 1%, **(b)** 0,35% et **(c)** 0,325%.

Cependant, contrairement au GaN, le SiC présente déjà une séparation isotopique pour une résolution de 0,35% (contre 0,325% pour le GaN). Cette meilleure performance est liée à une perte d'énergie plus faible due à sa densité plus faible comparativement à celle du GaN. Ceci permet d'obtenir une différence d'angle Cherenkov $\Delta\theta_{\text{max}}$ maximale, rendant la discrimination isotopique plus performante. Utilisé comme radiateur Cherenkov, le SiC peut permettre des séparations isotopiques à partir des $\frac{\Delta E}{E} = 0,35\%$ alors que le GaN n'est efficace qu'à partir de 0,325%.

5.3 Conception préliminaire d'un prototype de détecteur Cherenkov au FRIB

La géométrie du radiateur ainsi que celle du système de détection dépendent des contraintes imposées par la chambre expérimentale. Dans notre cas, l'espace disponible en aval des scintillateurs pour l'installation du détecteur Cherenkov est d'environ 50 cm. Ces contraintes géométriques constituent un élément déterminant dans la conception du radiateur et dans le choix des méthodes de détection qui seront détaillées par la suite.

5.3.1 Étude de la géométrie

Le détecteur Cherenkov devra couvrir une surface active de $30 \times 30 \text{ cm}^2$ positionné après le dernier scintillateur. Un prototype limité à une surface de $5 \times 5 \text{ cm}^2$ est en cours d'étude. La géométrie du détecteur est aussi fortement conditionnée par la possibilité de mesurer la perte d'énergie déposée dans le matériau semi-conducteur envisagé. Cependant, cette fonctionnalité dépend des contraintes technologiques liées essentiellement à la taille des substrats disponibles. La Figure 5.8 montre les deux cas envisageables.

Dans le cas du SiC, la disponibilité des plaquettes de grandes dimensions atteignant $\sim 20 \text{ cm}$ de diamètres permet la réalisation d'une structure monolithique comme présenté sur la Figure 5.8a, couvrant l'intégralité de la surface cible de $5 \times 5 \text{ cm}^2$. Le « wafer » peut être découpé, conduisant à un volume sensible uniforme. À l'inverse, les contraintes actuelles de croissance du substrat de GaN non dopé limitent leur taille disponible à environ $10 \times 10 \text{ mm}^2$. Afin de palier à cette limitation, une géométrie adaptée (**géométrie segmentée**) est proposée dans la Figure 5.8b, reposant sur l'assemblage d'une matrice de sous-modules GaN élémentaires. Chaque substrat constitue un volume sensible indépendant, intégré mécaniquement dans une structure commune et potentiellement doté d'une lecture électronique individuelle. Pour cette conceptualisation, le rapport entre la surface occupée par le support et celle du radiateur devra être minimisé pour optimiser la détection des photons Cherenkov.

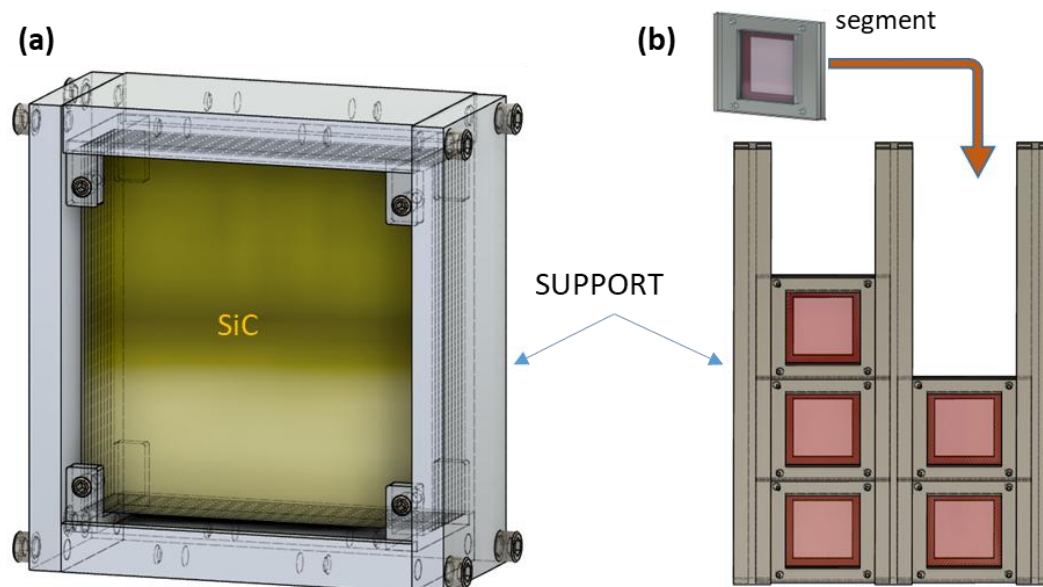


Figure 5.8 : Géométries possibles pour le radiateur Cherenkov où **(a)** représente une géométrie monolithique et **(b)** représente une géométrie segmentée.

Les avantages et inconvénients de chaque géométrie sont résumés dans le Tableau 5.1.

Tableau 5.1 : Avantages et inconvénients de la géométrie monolithique ainsi que de la géométrie segmentée.

Type de géométrie	Avantages	Inconvénients
Monolithique	• Une réponse optique homogène spatialement • L'absence d'effets susceptibles de perturber la propagation du rayonnement Cherenkov • Une simplification de la modélisation du dépôt d'énergie et de la collection de charge	• Fragilité du radiateur due à la surface
Segmentée	• Compatibilité avec des SCs où la production se limite à de faibles surfaces • Possibilité de segmentation fonctionnelle de la détection, favorable à l'identification des événements multiples	• La présence d'interfaces mécaniques susceptibles d'affecter la propagation des photons Cherenkov • Plus complexe à réaliser

Les deux types de géométries présentées ci-dessus ont un impact sur la stratégie de détection envisageable.

5.3.2 Différentes méthodes de détection

Les méthodes de détection visent à collecter et amplifier le faible signal lumineux de l'effet Cherenkov (typiquement quelques photons par cm). Comme défini au Chapitre 1 section 1.1, le nombre de photons Cherenkov émis par le matériau est donné par la formule [5]:

$$\frac{dN}{dl} = 2\pi\alpha z^2 \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} \right) \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n^2} \right)$$

Dans ce travail deux méthodes de détections ont été envisagées à savoir : la détection directe par une caméra permettant une visualisation de l'anneau Cherenkov et la détection par photomultiplicateurs (PMTs), offrant une amplification du signal lumineux pour une mesure quantitative.

5.3.2.1 La détection par caméra

Cette méthode consiste à utiliser une caméra ultra rapide pour la détection des photons émis sous forme de cône dû à l'effet Cherenkov. Nous avons testé cette méthode lors des irradiations réalisées au GANIL. Pour rappel, deux énergies ont été utilisées : une énergie de 85 MeV/n et une énergie de 95 MeV/n, considérées respectivement comme étant au-dessous et au-dessus du seuil de l'émission Cherenkov dans le GaN. À l'aide d'une webcam placée devant les échantillons (Figure 5.9a), nous avons pu enregistrer des vidéos desquelles des images ont été extraites (Figure 5.9b et Figure 5.9c)

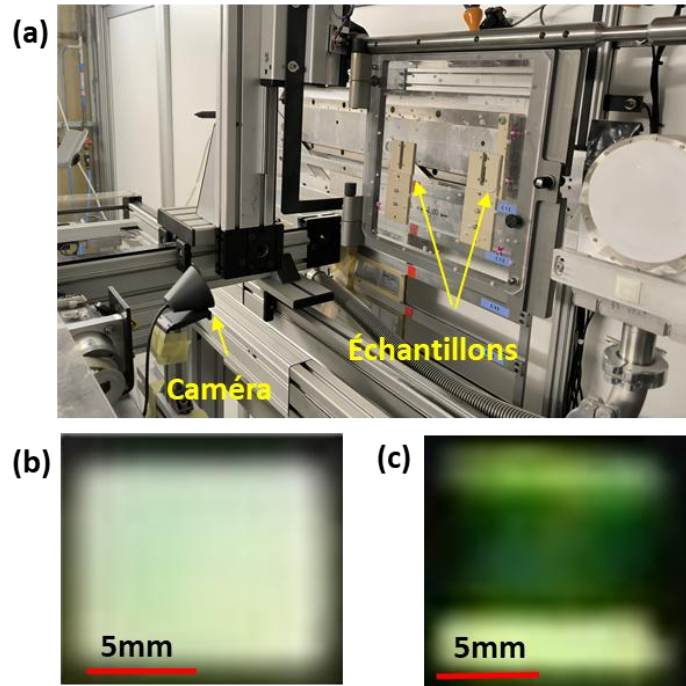


Figure 5.9 : Irradiations au GANIL des échantillons SiC et GaN. **(a)** Une webcam a été utilisée pour visualiser les photons Cherenkov émis durant les irradiations. Des images obtenues sur du GaN irradié sous un faisceau de ^{12}C avec une énergie de **(b)** 85 MeV/n et **(c)** 95 MeV/n.

Il est cependant clair que la lumière bleue caractéristique de l'effet Cherenkov n'est pas visible ; ce qui est probablement dû au type de caméra utilisée.

En effet, les capteurs standards ne sont pas optimisés pour la détection dans l'ultraviolet, alors qu'une part significative du spectre Cherenkov se situe dans la région UV-bleu comme montré au Chapitre 1 (section 1.1). Ce qui réduit fortement le signal détectable.

Les systèmes d'imagerie Cherenkov utilisent en général des caméras très sensibles (faible bruit, parfois refroidies) associées à des optiques et des filtres adaptés, offrant un avantage considérable par rapport à une webcam grand public. Dans notre configuration expérimentale, le critère le plus contraignant reste toutefois la résolution temporelle du système de détection. En effet, le rayonnement Cherenkov est émis quasi instantanément, sur des échelles de temps de l'ordre de la picoseconde, tandis que des processus lumineux parasites, tels que la scintillation dans certains matériaux, se produisent sur plusieurs nanosecondes. Une résolution temporelle suffisante devrait donc permettre, en principe, de discriminer le signal Cherenkov de ces contributions indésirables.

En conséquence, l'utilisation de dispositifs de détection ultrarapides, tels que les Streak cameras [6], capables de mesurer des événements à l'échelle de la picoseconde (ou tétraseconde), ou les caméras à détection de photons uniques de type SPAD (Single Photon

Avalanche Diode)[7], apparaît particulièrement adaptée. Néanmoins, leurs coûts présentent une contrainte majeure.

5.3.2.2 Détection par photomultiplicateurs

Une alternative à la caméra ultra rapide est l'utilisation de tubes photo-multiplicateurs (PMTs ou « photo-multiplicator tubes » en anglais). Ces tubes constituent une solution largement utilisée dans les détecteurs Cherenkov en raison de leur excellente sensibilité et de leur résolution temporelle élevée. Ils permettent une détection rapide et efficace des photons Cherenkov, ce qui les rend particulièrement adaptés aux expériences nécessitant des mesures en temps réel et un haut taux d'événements, comme celles menées au FRIB.

Dans le prototype en cours de développement, l'utilisation de PMTs est privilégiée pour plusieurs raisons : leur coût relativement faible, leur simplicité d'intégration et leur capacité à mesurer précisément le signal lumineux intégré. Les caractéristiques de quelques PMTs Hamamatsu [8] sont présentées dans le Tableau 5.2.

Tableau 5.2 : Quelques références de tubes photomultiplicateurs.

Référence	Diamètre (mm)	Surface effective (mm ²)	Réponse spectrale (nm)
R1527P	28	8 x 24 (carré)	185 à 680
R3788	28	8 x 24 (carré)	185 à 750
R374	25	25 (rond)	185 à 850

La Figure 5.10 montre le dispositif intégrant un plan de PMTs pour la détection du cône. Une lentille de Fresnel est placée entre le radiateur et les PMTs pour avoir un maximum de photons focalisés sur le plan. Le même dispositif a été utilisé dans les mRICH (Modular focusing ring imaging Cherenkov detector) [9].

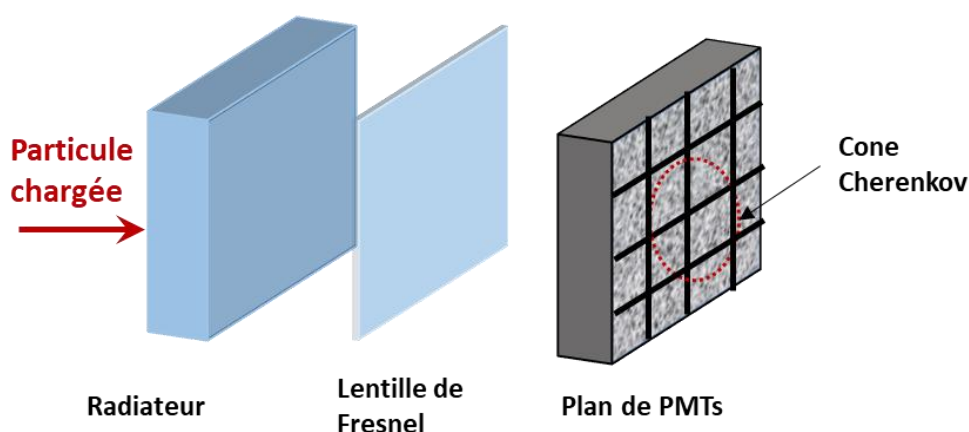


Figure 5.10 : Méthode de détection du cône Cherenkov par plan de photomultiplicateurs.

5.3.3 Mesure de l'énergie déposée dans le matériau (métallisation)

La mesure de l'énergie déposée par les particules dans le détecteur constitue un complément essentiel à l'information fournie par le rayonnement Cherenkov. Lorsqu'une particule chargée traverse le radiateur, une partie de son énergie est dissipée par perte d'énergie électronique et nucléaire du matériau.

Une métallisation fine déposée sur le radiateur (par exemple une couche optique conductrice mince d'ITO : Indium Tin Oxyde) peut être utilisée pour collecter un signal électrique proportionnel à l'énergie déposée. Ce signal résulte du courant généré par l'interaction de la particule avec le matériau.

La Figure 5.11 illustre le cas de deux isotopes du calcium (^{52}Ca et ^{53}Ca) possédant la même énergie cinétique par nucléon (E_c/A) qui pénètrent successivement dans les deux radiateurs de même nature. En raison de leur différence de masse, leurs énergies cinétiques totales diffèrent, entraînant des pertes d'énergie distinctes. Ainsi, l'isotope ^{52}Ca perd une fraction plus importante de son énergie dans le premier radiateur et atteint le seuil Cherenkov ($E_{52\text{Ca}} < E_{th}$, donc plus d'émission) avant d'être stoppé. À l'inverse, l'isotope ^{53}Ca conserve une énergie suffisante après le premier radiateur et continue à produire du rayonnement Cherenkov dans le second radiateur, avant d'y être finalement ralenti sous le seuil. Cette différence se traduit également par une variation de la distance parcourue par chaque isotope.

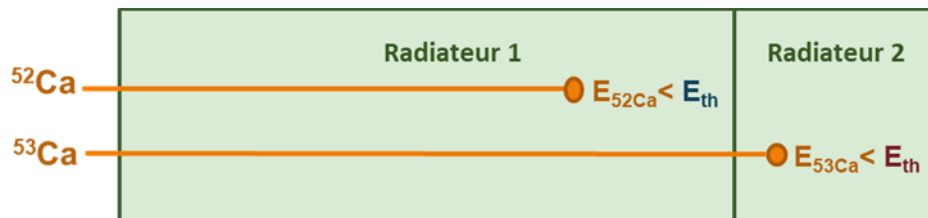


Figure 5.11 : Séparation du ^{52}Ca et du ^{53}Ca traversant deux radiateurs de même nature en utilisant les énergies seuil Cherenkov (E_{th}) et les énergies déposées.

Afin de mesurer séparément l'énergie déposée dans chacun des deux radiateurs, une métallisation dédiée à chaque couche est mise en œuvre. Une électrode intermédiaire déposée à l'interface entre les deux radiateurs permet de découpler électriquement les signaux issus de chaque volume sensible. Cette configuration autorise une détermination directe de la répartition du dépôt d'énergie entre les deux radiateurs et améliore significativement la discrimination entre particules ayant la même énergie cinétique par nucléon.

Cette approche présente plusieurs avantages :

- Elle permet une mesure indépendante de l'énergie déposée, complémentaire au signal Cherenkov ;

- Elle améliore la capacité de discrimination entre différents types de particules ;
- Elle offre la possibilité de corrélérer le signal lumineux et le signal électrique pour une meilleure identification.

L'épaisseur et la nature de la métallisation doivent être soigneusement optimisées afin de ne pas perturber excessivement la propagation de la lumière Cherenkov tout en garantissant une collecte efficace du signal électrique.

Toutefois, cette méthode n'en est qu'à un stade préliminaire de développement. Sa validation et son exploitation à grande échelle nécessitent une étude complète et approfondie, à mener en collaboration avec des spécialistes en microélectronique.

5.4 Bilan du chapitre

Ce chapitre s'articule autour de deux axes complémentaires :

- Le premier axe vise à compléter les résultats de comparaison des performances du GaN et du SiC en utilisant des simulations GEANT4 et ROOT. En particulier, les simulations ROOT montrent que la séparation isotopique dépend fortement de la résolution énergétique du faisceau d'ions : la résolution de 1% utilisée actuellement par FRIB s'avère insuffisante, tandis qu'une amélioration de cette résolution à 0,35% et à 0,325% permet une amélioration de cette séparation isotopique pour le SiC et le GaN, respectivement. En tenant compte des pertes d'énergie et de la largeur angulaire $\Delta\theta$ il apparaît clairement que le SiC offre de meilleures conditions de séparation isotopique que le GaN, notamment grâce à son indice de réfraction, sa densité et sa stabilité sous irradiation.
- Le second axe constitue une étape clé vers la réalisation d'un prototype expérimental dédié à la séparation des isotopes rares au FRIB. Les différentes méthodes de détection envisagées ont été comparées. Il apparaît que l'utilisation d'un plan de photomultiplicateurs, combinée à une mesure segmentée de l'énergie déposée dans les radiateurs, représente une solution prometteuse pour atteindre une séparation isotopique efficace. Cette approche permet en effet d'exploiter simultanément l'information de vitesse fournie par le rayonnement Cherenkov et celle du dépôt d'énergie et donc d'extraire expérimentalement les masses des isotopes. Mais cette étude reste encore à un stade préliminaire.

En conclusion, les résultats présentés dans ce chapitre démontrent la faisabilité du concept étudié et fournissent des éléments déterminants pour l'optimisation d'un prototype Cherenkov. L'objectif de sa réalisation a été intégré dans une proposition de financement récente au NFS (U.S. National Science Foundation) en novembre 2025.

Références

- [1] J. Allison *et al.*, « Recent developments in Geant4 », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 835, p. 186-225, nov. 2016, doi: 10.1016/j.nima.2016.06.125.
- [2] National Nuclear Data Center (NNDC), « NuDat3 ». [En ligne]. Disponible sur: <https://www.nndc.bnl.gov/nudat3/>
- [3] E. I. Fiks, O. V. Bogdanov, et Y. L. Pivovarov, « New peculiarities in angular distribution of Cherenkov radiation from relativistic heavy ions caused by their stopping in radiator: numerical and theoretical research », *J. Phys. : Conf. Ser.*, vol. 357, p. 012002, mai 2012, doi: 10.1088/1742-6596/357/1/012002.
- [4] P. Guèye, « Private communication », FRIB, MSU, US, 2025.
- [5] W. R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments: A How-to Approach*. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 1994. doi: 10.1007/978-3-642-57920-2.
- [6] Hamamatsu Photonics K.K., *Streak Camera*, Photometry Systems Product Page. [Online]. Available : Hamamatsu Streak Camera.
- [7] H. Defienne et D. Faccio, « Towards real-time quantum imaging with single photon avalanche diode cameras », *Photoniques*, n° 107, p. 36-39, mars 2021, doi: 10.1051/photon/202110736.
- [8] Hamamatsu Photonics, « Hamamatsu Photonics – Side-on Type PMT (Photomultiplier Tubes) ». [En ligne]. Disponible sur: https://www.hamamatsu.com/jp/en/product/optical-sensors/pmt/pmt_tube-alone/side-on-type.html
- [9] C. P. Wong *et al.*, « Modular focusing ring imaging Cherenkov detector for electron–ion collider experiments », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 871, p. 13-19, nov. 2017, doi: 10.1016/j.nima.2017.07.001.

Conclusion générale et perspectives

Ce travail de thèse se focalise sur l'étude des défauts induits par irradiation sur les propriétés optiques et structurales de trois semiconducteurs à grands gaps ; SiC, GaN et diamant ; en vue de leur potentielle utilisation comme radiateur Cherenkov. L'objectif était d'identifier un matériau capable de générer un rayonnement Cherenkov détectable tout en présentant une bonne résistance à l'irradiation. Des échantillons de SiC dopé et non dopé, de GaN plans c et a, ainsi que de diamant mono- et polycristallin ont été irradiés à l'hydrogène et aux ions lourds sous différentes conditions, puis caractérisés à l'aide de techniques complémentaires. Les irradiations ont été comparées à taux d'endommagement ou dpa (displacement per atom) comparables estimés à l'aide des simulations SRIM, permettant une analyse indépendante de la nature, de l'énergie et de la fluence des ions. Un large domaine de dpa allant de 10^{-12} à 10^{-3} a été balayé pour avoir une cartographie complète des défauts qui peuvent affecter les performances du radiateur Cherenkov destinée au FRIB ainsi que d'autres utilisations potentielles d'un tel détecteur.

Dans la première partie, les implantations d'hydrogène dans un large domaine de dpa variant entre 10^{-8} et 10^{-3} dans les trois matériaux ont montré que :

- En UV-Visible, une faible absorbance apparaît à 270 nm après implantation à haute fluence ($5 \times 10^{15} \text{ H}^+/\text{cm}^2$) dans le diamant et donc loin du domaine d'intérêt de cette étude. En revanche, le SiC dopé montre une large bande d'absorption centrée autour de 460 nm, liée au dopage, qui serait très pénalisant pour une potentielle application Cherenkov. Le GaN quant à lui présente une faible bande d'absorbance à 450 nm due aux lacunes de gallium (V_{Ga}) formées après implantation à haute fluence.
- La photoluminescence révèle des émissions associées aux défauts natifs NV^0 dans le diamant, ainsi qu'une émission à 470 nm après implantation à haute fluence, attribuée à des défauts impliquant deux lacunes et deux atomes de carbone interstitiels. Ce défaut est généralement labelisé TR12 dans la littérature.
- Les analyses Raman quant à elles indiquent l'absence de contraintes structurales significatives induites par l'irradiation dans le diamant monocristallin et le GaN, contrairement au SiC où une compensation des défauts par les plasmons dus au dopage est observée. Cette compensation permet une détection des défauts de type accepteurs créés par l'implantation à forte fluences dans le SiC.
- Les mesures PAS ont permis la détection des défauts lacunaires dont les lacunes de silicium (V_{Si}), les lacunes de carbone (V_C) et les lacunes de gallium (V_{Ga}) dans le SiC, le diamant et le GaN, respectivement. Ces mesures montrent que le diamant présente la plus faible concentration de lacunes après implantation, comparé au GaN et au SiC dopé.

Il est clair que les trois matériaux présentent des défauts natifs ou induits par l'irradiation à forte fluence. Cependant, le diamant monocristallin présente la meilleure résistance à l'irradiation.

Toutefois, le rapport performance/ coût n'est pas favorable au diamant car malgré une moins bonne résistance à l'irradiation (comparativement au diamant), le SiC et le GaN présentent des performances largement suffisantes pour une application comme radiateur Cherenkov. Ce qui a justifié le choix d'étudier le SiC non dopé et le GaN dans les conditions d'irradiation proches de celles de FRIB (dpa $\sim 10^{-9}$) dans la suite de ce travail.

Dans la deuxième partie, des irradiations réalisées dans les conditions de FRIB, avec des dpa variant de 10^{-12} à 10^{-9} soient des valeurs plus faibles que celles utilisées dans la première partie de l'étude (où les dpa variaient entre 10^{-8} et 10^{-3}), l'étude a montré que :

- Aucune absorption dans le domaine du visible pour le SiC et le GaN n'a été mesurée par la technique UV-Visible. De même, les lacunes créées dans les deux semiconducteurs restent sous le seuil de détection de la PAS.
- La photoluminescence est la technique qui a la meilleur sensibilité et qui a mis en évidence les différences fondamentales entre ces deux matériaux. Dans le GaN, les lacunes d'azote (V_N) apparaissent clairement en PL comme une réponse directe aux irradiations à haute énergie (>85 MeV/n), alors qu'aucun défaut du à l'irradiation n'est détecté dans le cas du SiC.

Le SiC non dopé apparait au vue de tous ces résultats comme le matériau le plus performant pour la réalisation du radiateur Cherenkov.

Les résultats ont également montré que la notion de dpa n'apparait pas comme une unité suffisante pour étudier complètement les défauts induits des irradiations dans les matériaux. Car nous avons vu que les irradiations aux ions lourds et aux fortes énergies ont engendré des défauts non visibles à des dpa relativement beaucoup plus importantes 10^{-12} - 10^{-9} .

La troisième partie met en évidence la séparation isotopique dans les deux matériaux en se basant sur des simulations GEANT4 et ROOT. Les simulation ROOT montre notamment l'intérêt d'utiliser le SiC comme radiateur. En effet, dans ce travail de thèse nous avons été confrontés à l'effet de la résolution du faisceau d'ion sur la séparation des isotopes. Toutefois, nous avons pu montrer qu'une amélioration de cette résolution à $\frac{\Delta E}{E} = 0,35\%$, donnait lieu à une séparation efficace dans le SiC contrairement au GaN.

Cette étude a clairement montré que le SiC est le meilleur candidat pour la réalisation d'un détecteur Cherenkov destiné au FRIB. Son coût, la qualité et la surface des échantillons disponibles sont des atouts supplémentaires pour ce matériau.

Perspectives

Il convient de souligner que le radiateur sera soumis à des irradiations provenant de plusieurs isotopes d'éléments différents. Il serait donc plus pertinent de réaliser des simulations prenant en compte l'ensemble des particules incidentes, afin d'obtenir une modélisation plus réaliste des conditions de fonctionnement.

Étant donné les faibles niveaux de dpa induits par ces irradiations, l'utilisation de techniques de caractérisation plus sensibles, telles que la DLTS (Deep Level Transient Spectroscopy), paraît également nécessaire pour une compréhension plus complète des défauts. Dans le cadre de ce travail, l'utilisation de cette technique n'a pas pu être menée à son terme.

Enfin, la réalisation complète de ce détecteur fait l'objet d'une proposition de projet de financement auprès de la NSF (U.S. National Science Foundation). Son intégration dans d'autres applications constitue par ailleurs une perspective de développement future prometteuse

Produits de la recherche

Publications

Proton irradiation induced defect analysis in wide-bandgap semiconductors: Optical and structural characterization of SiC and diamond for potential Cherenkov radiators
AIP advances journal. 2025. <https://doi.org/10.1063/5.0295486>

Conférences

Communications orales

Étude du SiC, GaN et diamant comme potentiel radiateur pour un détecteur Čerenkov
Yamina Bennour, Mohamed-Ramzi Ammar, Jacques Botsoa, Nicole Doumit, Paul Guèye, Esidor Ntsoenzok
Congrès Général de la Société Française de Physique, UTT, Troyes, France. 2025.

Cherenkov detector with a large band gap semiconductor as radiator at FRIB
Yamina Bennour, Jacques Botsoa, Nicole Doumit, Paul Guèye, Emily Holman, Esidor Ntsoenzok
NSBP meeting– USA, Houston. 2024.

A large band gap semiconductor as a radiator for a Cherenkov detector
Yamina Bennour, Paul Guèye, Nicole Doumit, Jacques Botsoa, Esidor Ntsoenzok, Emily Holman, Phuonganh, Ryan Richards, Justin Schmitz, Sara Tatreau
APS April meeting, Sacramento, USA. 2024.

Characterization of large band gap semiconductors for Cherenkov radiation at the Facility for Rare Isotope Beams
Yamina Bennour, Paul Guèye, Jacques Botsoa, Nicole Doumit, Esidor Ntsoenzok, Anna Brandl, Emily Holman, Phuonganh, Ryan Richards, Justin Schmitz, Sara Tatreau
APS Division of Nuclear Physics, Hawaii, USA. 2023

Posters

Detachment of SiC thin film by ion implantation and induced stress
Yamina Bennour, Jacques Botsoa, Nicole Doumit, Frédéric Mazen, Esidor Ntsoenzok
La 5ème édition de C’Nano, Poitier, France. 2023

Annexe : Méthodes de croissance du SiC, du diamant et du GaN

1 . Cas du SiC

Le SiC est généralement produit par deux méthodes principales :

- ***La méthode de Lely modifiée (PVT-Physical Vapor Transport)***

Cette méthode repose sur un principe simple : un germe monocristallin est placé à une extrémité d'une enceinte, tandis qu'une poudre de SiC, servant de source, est disposée à l'autre extrémité. Un gradient de température est appliqué le long de l'enceinte, permettant à la vapeur de SiC formée de se condenser sur le germe. La vapeur de silicium générée au-dessus des creusets diffuse à travers les perforations vers la zone du germe, maintenue à environ 1800 °C. Ce gradient thermique favorise la condensation de la vapeur de SiC sur le germe cristallin. Par ailleurs, le silicium interagit avec les parois en graphite des creusets, produisant des espèces gazeuses telles que Si_2C et SiC_2 , qui facilitent le transport du carbone vers la zone de croissance. Cette méthode est la mieux adaptée pour obtenir des substrats monocristallins et elle est utilisée par plusieurs compagnies comme Worfspeed (anciennement CREE Company ©) [1].

- ***La méthode de dépôt chimique par phase vapeur (CVD-Chemical Vapor Deposition)***

Cette méthode commence par une attaque chimique de la surface du substrat afin d'éliminer la couche endommagée proche de la surface. Cette étape est effectuée sous vapeurs d'acide chlorhydrique (HCl), à une température d'environ 1500 °C. Le dépôt CVD consiste à décomposer des gaz dans une enceinte, à haute température comprise entre 1300 et 1600 °C, et à faire réagir les constituants décomposés avec la surface d'un substrat. Le mélange le plus utilisé pour déposer du SiC est $\text{SiH}_4 + \text{C}_3\text{H}_8$, dilué dans le gaz porteur H_2 . Le silane (SiH_4) et le propane (C_3H_8) sont des gaz réactifs qui contribuent, respectivement, à l'apport de silicium et de carbone. Le dépôt CVD permet de contrôler le dopage de type n et p dans une gamme très large.

1. Cas du Diamant

- ***Synthèse par haute pression haute température (HPHT- High Pressure High Temperature)***

L'objectif de cette méthode est de reproduire les conditions de formation du diamant naturel. Du carbone de haute pureté, et en quantité abondante, est dissous par un flux métallique (fer, nickel, cobalt, ...) qui sert de catalyseur. Ce processus s'effectue à des températures très élevées (> 1500 °C) et sous des pressions extrêmes (≤ 10 GPa), conditions nécessaires à la stabilité du diamant. Il en résulte la germination et la croissance de monocristaux. Les diamants obtenus par cette technique sont de petite taille et généralement réservés aux

applications industrielles et mécaniques en raison de la présence d'impuretés dues au catalyseur utilisé et à la présence d'azote (qui est à l'origine de la couleur jaune du diamant).

- ***Synthèse par dépôt chimique phase vapeur (CVD-Chemical Vapor Deposition)***

La synthèse du diamant par dépôt en phase vapeur est une technique de croissance hors équilibre thermodynamique, permettant la formation de diamant à partir d'un mélange gazeux activé. Elle s'effectue soit à basse pression (< 1 atm) sur un germe de diamant dans le cas d'une homoépitaxie, soit sur un substrat d'une autre nature présentant des paramètres de maille cristalline compatibles, tels que le silicium, l'iridium, ou d'autres matériaux similaires : on parle alors d'hétéroépitaxie.

L'activation thermique du mélange gazeux de synthèse permet la formation de radicaux libres (comme le radical d'hydrogène ($\cdot\text{H}$) ou de méthyl ($\cdot\text{CH}_3$), essentiels à la croissance du diamant. Cette activation peut être réalisée de différentes manières, en fonction du type de réacteur utilisé : soit dans un réacteur HFCVD (Hot Filament CVD), un filament chauffé à haute température génère l'environnement thermique nécessaire à la formation des radicaux [2], ou alors dans un réacteur MWCVD (Microwave Plasma CVD), un plasma est généré au-dessus du substrat par irradiation micro-ondes, créant un environnement riche en espèces réactives [3].

2. Cas du GaN

- ***Épitaxie par jet moléculaire (MBE : Molecular Beam Epitaxy)***

Cette méthode constitue une technique de dépôt de couches atomiques sous ultra-haut vide (10^{-8} à 10^{-12} Torr) à la surface d'un substrat. Pour le GaN, le gallium solide (Ga) est chauffé au-dessus de son point de fusion tandis que l'azote (N) est fourni soit par une source produisant des radicaux à partir de l'azote N_2 (injecteur à très haute température ou source plasma RF), soit par une source gazeuse (injecteur d'ammoniac NH_3). La température du substrat, comprise entre 450°C et 850°C , permet la condensation des atomes tout en leur conférant l'énergie nécessaire pour rejoindre leurs sites cristallographiques. L'EJM présente l'avantage de permettre une croissance à plus basse température et un contrôle in situ de la croissance et des épaisseurs des couches. En revanche, les vitesses de croissance restent faibles ($< 1\ \mu\text{m/h}$).

- ***L'épitaxie en phase vapeur aux organométalliques (MOCVD : Metal-Organic Chemical Vapor Deposition)***

Cette technique utilise le triméthylgallium (TMGa) qui est un organo-métal comme source de Ga et l'ammoniac (NH_3) est comme précurseur d'azote N_2 . Très répandue en industrie, elle permet des croissances rapides sur des substrats de grande dimension ($>4''$), avec l'obtention de couches de qualité cristallographique correcte.

- **Croissance latérale par épitaxie (ELO : Epitaxial Lateral Overgrowth)**

L'objectif principal de cette méthode est de réduire la densité de défauts cristallins générés lors de la croissance du GaN, principalement due à l'incompatibilité de maille entre le GaN et les substrats utilisés (souvent le silicium ou le saphir). Le procédé consiste à déposer, par MOCVD à 1080 °C, une couche de GaN sur un tampon (buffer) de GaN préalablement épitaxié sur le substrat. Un masque de SiO₂ est ensuite déposé à la surface, puis structuré par lithographie ou gravure afin de créer un motif composé de bandes de 7 µm de largeur, séparées par des fenêtres de 4 µm. La croissance de GaN reprend sélectivement dans les fenêtres ouvertes du masque, et se propage ensuite latéralement au-dessus du SiO₂.

Références

- [1] Wolfspeed, Inc., *Silicon Carbide Substrates and Epitaxy Catalog*, SiC Materials Product Documentation. [En ligne]. Disponible sur : https://assets.wolfspeed.com/uploads/2026/02/Wolfspeed_Materials_Catalog.pdf.
- [2] Dilpreet Singh, « Optimization of the hot-filament chemical vapor deposition setup », 2023. [En ligne]. Disponible sur : <https://resolver.tudelft.nl/uuid:df9ad225-903d-46bf-a027-ee0cf6776978>.
- [3] Y. Li *et al.*, « Growth of single-crystal diamond by microwave plasma CVD with high precursor utilization using cyclic gas injection and control of carbonaceous species content with optical emission spectroscopy », *Vacuum*, vol. 206, p. 111529, déc. 2022, doi: 10.1016/j.vacuum.2022.111529.