

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

UNIVERSITE Dr. TAHAR MOULAY SAIDA
FACULTE DES SCIENCES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE



MEMOIRE

Présenté en vue de l'obtention du diplôme de

MASTER

Spécialité : PHYSIQUE

Option : Physique des Rayonnements

Par

Boudouani Sarra

Sur le thème

Simulation des cascades de déplacements dans le pentoxyde de tantale

Soutenu le 29/05/2018 devant le jury composé de :

KAAROUR Abdelkrim	Président	M.C.B	U. Saida	Président
DJAAFRI Abdelkader	Rapporteur	M.A.A	U. Saida	Rapporteur
MESKINE Mohamed	Examineur	M.C.A	U. Saida	Examineur
KHELFAOUI Friha	Examineur	M.A.A	U. Saida	Examineur

Année Universitaire 2017 - 2018

Dédicace

Grâce à Allah « el Kadir »

Je dédie ce travail :

*A mon meilleur exemple Mes chers parents que
j'aime plus que tout le monde*

« Allah les protège »

Ma chère grand-mère que son amour et ses prières

Me protègent

A Mes frères et mes sœurs

A toutes Mes amies

Sarra Boudouani

Remerciements

Au Nom d'Allah le Clément le Miséricordieux qu'à travers son aide on a pu réaliser notre rêve d'enfance.

Je tiens à remercier en premier lieu, Mr A. DJAAFRI et Mr A. Elias pour leur aide, leur soutien et surtout leurs précieux conseils.

Je remercie grandement tous les membres de jury qui ont voulu examiner mon travail.

Je souhaite, d'autre part que tous ceux qui ont contribué à l'élaboration de ce modeste travail, trouvent ici, l'expression de ma gratitude et de ma reconnaissance.

Que soient remerciés également tous les enseignants de la faculté des Sciences, du département de physique option spectroscopie moléculaire.

Je tiens à remercier aussi tous les membres de l'administration pour leur soutien et leur disponibilité.

Enfin, nos remerciements aux responsables de la bibliothèque pour leur disponibilité, leur aide et leur affabilité.

Sommaire

Liste des figures	viii
Liste des tableaux	x
Introduction générale	1
<i>CHAPITRE I : Défauts cristallins</i>	
I.1 Introduction	6
I.2 Défauts ponctuels	6
I.2.1 Défauts intrinsèques	6
I.2.1.1 Lacune	6
I.2.1.2 Auto-interstitiel	8
I.2.1.3 Défauts de Schottky et de Frenkel	8
I.2.2 Défauts extrinsèques	9
I.3 Défauts linéaires	11
I.3.1 Dislocation coin	11
I.3.2 Dislocation vis	12
I.4 Défauts surfaciques	12
I.4.1 Joints de grains et joints de phases	12
I.4.2 Joints de macle	13
I.5 Défauts volumiques	13
I.5.1 Pores	13
I.5.2 Inclusions	13
I.5.3 Précipités	14
<i>CHAPITRE II : Modèle de simulation</i>	
II.1 Introduction	16

II.2	Approximation des collisions binaires	16
II.2.1	Description de la cascade de déplacement	16
II.2.2	Canalisation	18
II.2.3	Focalisation	19
II.2.4	Remplacement	20
II.2.5	Défauts permanents	21
II.2.6	Collisions élastiques	21
II.2.6.1	Cinématique d'une collision binaire	21
II.2.7	Energie transférée	25
II.2.8	Angle de diffusion	26
II.2.9	Perte d'énergie	28
II.2.9.1	Pertes d'énergie inélastiques	29
II.2.9.2	Pertes d'énergie élastiques	30
II.2.9.3	Pertes d'énergie totale	31
II.2.10	Energie de déplacement	32
II.2.11	Nombre de déplacements	32
II.2.11.1	Modèle de Kinchin-Pease	32
II.2.11.2	Modèle de Norgett- Robinson-Torrens	34

CHAPITRE III : Programme Marlowe

III.1	Introduction	36
III.2	Structure du code	36
III.3	Description du matériau et du projectile	37
III.4	Choix de la cible	38
III.5	Potentiels	40
III.5.1	Potentiel de Molière	40
III.5.2	Potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark	41
III.5.3	Potentiel moyen modifié de Lenz-Jensen	41

III.5.4 Potentiel de Born-Mayer	42
III.5.5 Potentiel de Morse	42
III.6 Angle de diffusion et intégrale du temps	43
III.7 Energie inélastique perdue	44
III.8 Vibrations thermiques	45
III.9 Dynamique de la collision binaire	45
III.10 Défauts produits	46
<i>CHAPITRE IV : Résultats et discussion</i>	
IV.1 Introduction	48
IV.2 Paramètres de simulation	48
IV.3 Atomes en mouvement	50
IV.4 Nombre de déplacements	54
IV.5 Défauts de Frenkel	56
IV.6 Distributions de volumes	60
Conclusion générale	62
Bibliographie	65

Liste des figures

CHAPITRE I

Figure I.1	Cristal monoatomique : empilement régulier d'atomes à trois dimensions	6
Figure I.2	Schéma d'une lacune	7
Figure I.3	Diffusion d'une lacune dans un cristal	7
Figure I.4	Schéma d'un auto-interstitiel	8
Figure I.5	Défaut de Schottky	9
Figure I.6	Défaut de Frenkel	9
Figure I.7	Insertions tétraédrique et octaédrique dans le réseau cubique centré	10
Figure I.8	Insertions tétraédrique et octaédrique dans le réseau cubique à faces centrées	10
Figure I.9	Défaut extrinsèque en substitution	11
Figure I.10	Dislocation coin	11
Figure I.11	Dislocation vis	12
Figure I.12	Schématisation d'un joint de grains et d'un joint de phases	13
Figure I.13	Schématisation d'un joint de macle	13

CHAPITRE II

Figure II.1	Représentation schématique de la cascade de déplacements	17
Figure II.2	Représentation Schématique de la canalisation dans une structure c.f.c	18
Figure II.3	Schéma de la trajectoire d'une particule canalisée	19
Figure II.4	Schéma d'une séquence de focalisation	19
Figure II.5	Schéma d'une séquence de remplacements	20
Figure II.6	Schéma d'une collision binaire dans le système du laboratoire	22
Figure II.7	Relations entre les vitesses dans les référentiels du laboratoire et du centre de masse	24
Figure II.8	Angle de diffusion ϑ dans le référentiel du centre de masse	26
Figure II.9	Trajectoires de deux atomes en collision dans le référentiel du laboratoire	28

Figure II.10	Nombre moyen d'atomes déplacés dans le modèle de Kinchin-Pease	33
CHAPITRE III		
Figure III.1	Schéma de sélection des cibles dans Marlowe	38
Figure III.2	Schéma montrant les bases de la procédure de recherche des cibles	39
CHAPITRE IV		
Figure IV.1	Nombre moyen d'atomes en mouvement en fonction du temps dans le pentoxyde de tantale dans une cascade de 20 keV	53
Figure IV.2	Nombre d'atomes déplacés en fonction du temps dans une cascade de déplacements de Ta ₂ O ₅ de 20 keV	56
Figure IV.3	Distribution de paires de Frenkel corrélées et non-corrélées	57
Figure IV.4	Nombre total de paires de Frenkel en fonction de la distance de séparation interstitiel-lacune	59
Figure IV.5	Distributions des volumes dans Ta ₂ O ₅ irradié. Les primaires ont une énergie de 20 keV	61

Liste des tableaux

CHAPITRE II

Tableau II.1	Valeurs moyenne de l'énergie de déplacement pour quelques métaux	32
--------------	--	----

CHAPITRE IV

Tableau IV.1	Positions des atomes du pentoxyde de tantale Réf [15]	49
Tableau IV.2	Paramètre d'écran du potentiel de Molière pour les différentes interactions entre les atomes de Ta ₂ O ₅ .	49
Tableau IV. 3	Paramètre d'écran du potentiel ZBL pour les différentes interactions entre les atomes de Ta ₂ O ₅	50
Tableau IV.4	Nombre d'atomes en mouvement en fonction du temps dans le pentoxyde de tantale pour l'énergie du primaire de 20 keV	52
Tableau IV.5	Nombre total d'atomes déplacés de tantale et d'oxygène en fonction du temps pour une énergie du primaire de 20 keV.	55
Tableau IV.6	Nombre total de PF en fonction de la distance de séparation interstitiel-lacune pour une cascade de 20 keV dans Ta ₂ O ₅	58

Introduction Générale

Introduction Générale

Les matériaux composant les réacteurs nucléaires et les composants électroniques embarqués dans les véhicules spatiaux destinés à la télécommunication, l'observation de la terre et l'exploration de l'espace subissent des conditions d'irradiation sévères, conduisant à des modifications de leurs propriétés physico-chimiques et mécaniques [1]. Ces modifications peuvent avoir des conséquences graves sur la sécurité des centrales nucléaires et influencer sur le bon fonctionnement des dispositifs électroniques destinés à l'usage spatial [2, 3].

Les collisions entre les particules irradiantes (les neutrons libérés des réactions nucléaires qui ont lieu dans le cœur du réacteur ou les particules du vent solaire et du rayonnement cosmique) et les atomes constituant les matériaux donnent naissance à des réactions de transmutations et des déplacements atomiques qui engendrent des défauts ponctuels tels que les lacunes et les interstitiels. Ces défauts peuvent migrer et s'agglomérer pour former des amas qui évoluent à long terme à des dislocations et des cavités responsables du vieillissement des matériaux.

L'étude des effets d'irradiation dans les matériaux constitue un champ de recherche très important vu son influence sur le plan technologique et économique. Cette étude, permet d'une part, d'estimer la durée de vie utile des dispositifs microélectroniques destinés à l'utilisation spatiale et à la technologie nucléaire et d'améliorer leur performance et d'autre part de concevoir des matériaux de construction qui peuvent résister à des rayonnements intenses durant des périodes assez longues [4, 5].

Notre intérêt pour le pentoxyde de tantale (Ta_2O_5) vient des enjeux technologiques et économiques très importants liés à ses propriétés physiques très intéressantes. Il possède des valeurs élevées de l'indice de réfraction, de la constante diélectrique, [6] et de la tension de claquage [7]. Il a une très bonne résistance à la corrosion et la température [8]. Ces propriétés font de lui un matériau de choix pour des applications dans des domaines assez variées. Il est couramment utilisé dans la fabrication de condensateurs [9], de cellules solaires [10], dans les guides d'ondes optiques

Introduction Générale

[11], les revêtements de corrosion [12] et les capteurs de gaz [13]. En microélectroniques, il est prometteur comme matériau de stockage de données pour la mémoire vive dynamique [14].

Le pentoxyde de tantale continue toujours à faire l'objet de nombreux travaux qui portent sur ses propriétés physiques et sa structure cristalline [15-17]. Mais il n'y a aucune étude qui portent sur les questions de production des défauts dans ce matériau suite à son l'irradiation.

Il existe deux modèles pour simuler les interactions entre des particules irradiantes et les matériaux : la dynamique moléculaire (MD) et l'approximation des collisions binaires (BCA). La BCA qui considère que la cascade est composée de séries de collisions binaires, est facile à mettre en œuvre, consomme un temps de calcul relativement court, permet une accumulation de statistiques énormes [18]. La BCA est fréquemment utilisée dans la modélisation des interactions entre les particules énergétiques et le solide telles que l'implantation ionique, la canalisation, la rétrodiffusion et les dommages d'irradiation [19-22].

L'objectif de notre étude est de simuler des cascades de déplacements dans le pentoxyde de tantale et d'étudier la production des paires de Frenkel, la distribution spatiale des défauts ainsi que l'évaluation de la zone endommagée du matériau. Nous utiliserons, à cette fin, le programme Marlowe basé sur le modèle de la BCA.

Ce manuscrit est organisé en quatre chapitres.

Le premier chapitre est consacré au rappel des défauts ponctuels, linéaires, surfaciques et volumiques qui peuvent exister dans un cristal.

Dans le deuxième chapitre, nous exposons les méthodes utilisées pour modéliser l'interaction des particules irradiantes avec la matière. Nous présentons le modèle de l'approximation des collisions binaires avec les phénomènes qui peuvent avoir lieu pendant le développement d'une cascade de déplacements.

Le troisième chapitre présente le code Marlowe utilisé pour simuler les cascades de déplacements dans le pentoxyde de tantale. Nous abordons la structure du programme et le modèle

Introduction Générale

d'analyse. Nous exposons les potentiels de paires inclus dans Marlowe et les modèles utilisés pour l'évaluation des pertes d'énergie.

Le quatrième chapitre est dédié aux résultats obtenus des simulations. Nous présentons les résultats du développement temporel et spatial des cascades de déplacements, le nombre de défauts produits et leur distribution dans l'espace. Nous donnerons également la distribution des volumes des cascades.

Nous achevons notre étude par dresser une conclusion générale qui englobera les principaux résultats trouvés et nous donnerons des perspectives envisagées pour la poursuite de ce travail.

Chapitre I

Défauts cristallins

Chapitre I : Défauts Cristallins

I.1-Introduction

Un cristal parfait est considéré comme un empilement régulier et infini des atomes, des ions ou des molécules dans les trois dimensions de l'espace. Les cristaux réels sont en réalité imparfaits et comportent différents types de défauts. Ces défauts conduisent à la perte de la périodicité et provoquent des distorsions locales menant au surcroît d'énergie interne du cristal. La présence de ces défauts influence les propriétés physiques et mécaniques des matériaux [23].

Les défauts sont classés d'un point de vue géométrique en défauts ponctuels, défauts linéaires, défauts surfaciques et défauts volumiques.

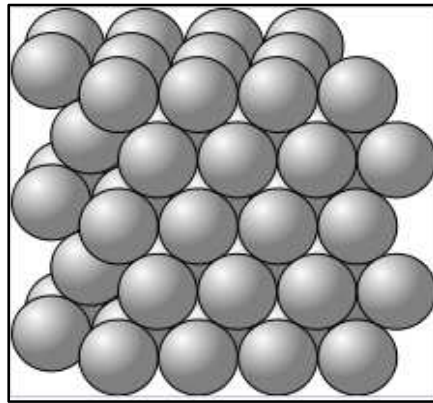


Figure I.1. Cristal monoatomique : empilement régulier d'atomes à trois dimensions.

I.2-Défauts ponctuels

Les défauts ponctuels sont des imperfections présentes en des points du réseau et qui le perturbent sur quelques distances interatomiques. Ils sont répartis en défauts intrinsèques qui ne changent pas la composition globale du composé et des défauts extrinsèques engendrés par l'introduction des atomes étrangers dans le réseau [24].

I.2.1-*Défauts intrinsèques*

I.2.1.1- *Lacune*

C'est le défaut cristallin le plus simple. Il est dû à l'absence d'un atome à un emplacement où devrait normalement se trouver un.

Chapitre I : Défauts Cristallins

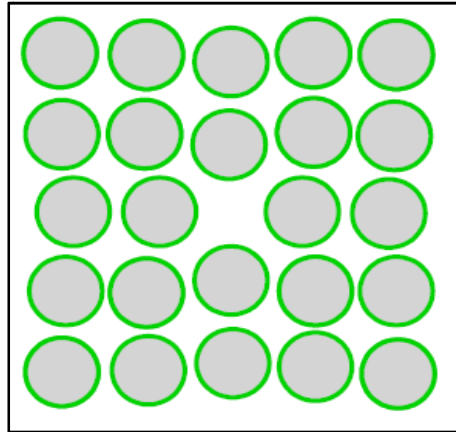


Figure I.2. Schéma d'une lacune.

Dans un cristal à l'équilibre thermodynamique il y a toujours des lacunes. Leur présence a été prédite en 1926 par Frenkel [25]. Leur concentration dans le matériau dépend de la température. Elle est d'autant plus forte que la température approche la température de fusion du matériau. Si n est le nombre de lacunes et N le nombre total de sites du cristal, on a [23]

$$n = ANe^{-\frac{Q}{RT}} \quad (1.1)$$

avec A constante sans dimension, Q énergie de formation de la lacune (J/mole), R constante des gaz parfaits ($R = 8.32 \text{ J/K}$) et T température absolue du cristal (K).

La présence de lacunes permet d'expliquer les phénomènes de diffusion dans les matériaux. Les lacunes peuvent se déplacer dans le cristal et leur déplacement se fait par permutations de positions avec les atomes voisins comme il est illustré à la figure I.3 [21, 26, 27].

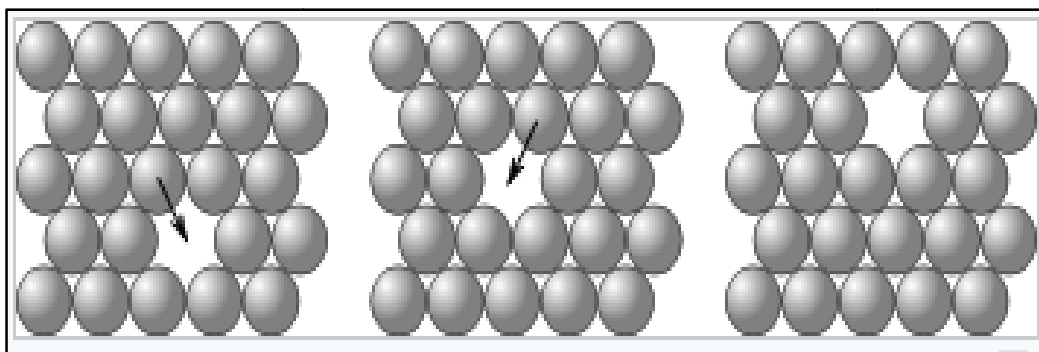


Figure I.3. Diffusion d'une lacune dans un cristal.

Chapitre I : Défauts Cristallins

1.2.1.2. Auto-interstitiel

C'est un atome excédentaire de même nature que les atomes constituant le réseau et qui est positionné en un emplacement normalement inoccupé dans le cristal (voir figure I.4). Sa présence induit une forte distorsion du réseau dans son entourage et provoque le déplacement des atomes voisins. Le volume de la maille contenant un interstitiel est plus grand que celui d'une maille de cristal parfait.

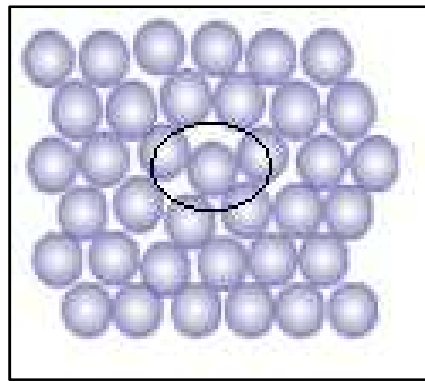


Figure I.4. Schéma d'un auto-interstitiel.

La concentration des interstitiels dans le cristal augmente avec la température. Elle obéit à la loi donnée par la relation (1.1) avec cette fois-ci Q énergie de formation de l'interstitiel. Cette énergie est généralement quatre fois plus élevée que celle de la formation d'une lacune. Ce qui explique les concentrations d'équilibre des auto-interstitiels qui sont plus importantes que celles des lacunes.

1.2.1.3. Défauts de Schottky et de Frenkel

Un défaut de Schottky [28] résulte de la présence simultanée d'une lacune cationique et une lacune anioniques au sein du cristal (figure I.5). Ce défaut se forme dans les cristaux ioniques, lorsque des ions de charges opposées quittent leurs sites du réseau, en laissant des lacunes. Ces lacunes sont formées en nombre égal afin de maintenir une charge électrique neutre du cristal [21, 26, 29]. Les atomes adjacents se déplacent pour combler ces sites vacants, provoquant la formation

Chapitre I : Défauts Cristallins

de nouvelles lacunes. Normalement, les défauts de Schottky induisent une diminution de la densité du cristal.

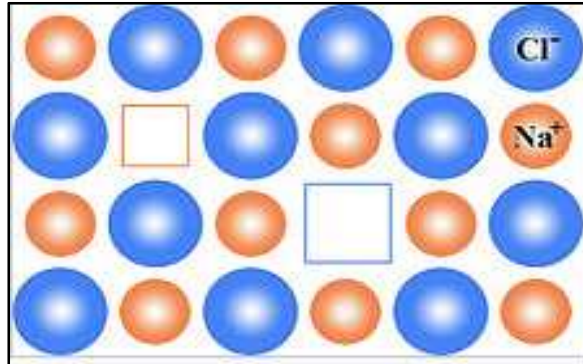


Figure I.5. Défaut de Schottky.

Une paire de Frenkel correspond à l'association d'une lacune d'une espèce donnée et de cette même espèce en position interstitielle (figure I.6). À la différence du défaut de Schottky, une paire de Frenkel peut être produite directement au sein du cristal, c'est-à-dire sans déplacement d'espèce hors de la matrice. C'est le cas par exemple dans l'irradiation des matériaux où la particule irradiante crée par collision des interstitiels et des lacunes [29].

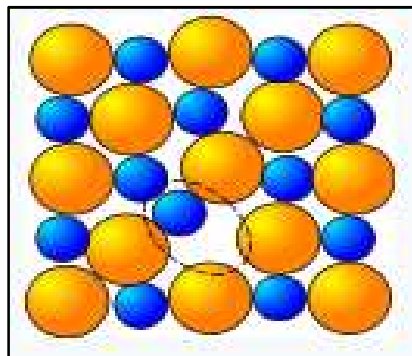


Figure I.6. Défaut de Frenkel.

1.2.2-Défauts extrinsèques

On parle de défaut extrinsèque lorsqu'il y a présence d'un atome de nature différente de celle des atomes composant le réseau. Il peut être en substitution ou en insertion. Ces deux mécanismes ont été l'objet d'étude par William Hume-Rothery dans la première moitié du siècle précédent dans les alliages d'argent, de cuivre et de fer.

Chapitre I : Défauts Cristallins

L'insertion en position interstitiel peut se faire comme il est montré sur les figures I.7 et I.8 en site tétraédrique où l'atome introduit se place au centre d'un tétraèdre dont les sommets sont composés par les atomes du cristal ou en site octaédrique comme il est présenté sur la figure I.6 où l'atome introduit se loge au centre d'un octaèdre.

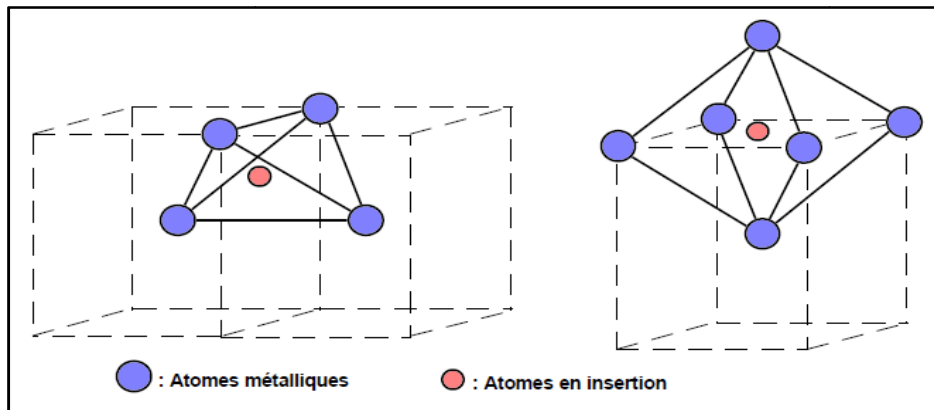


Figure I.7. Insertions tétraédrique et octaédrique dans le réseau cubique centré.

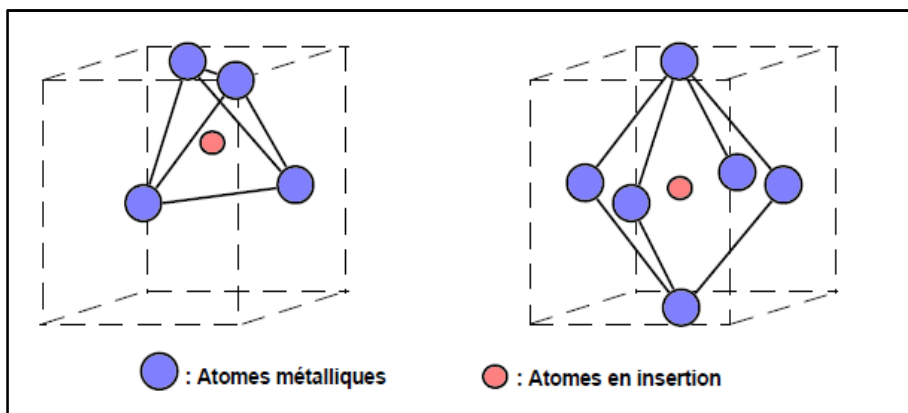


Figure I.8. Insertions tétraédrique et octaédrique dans le réseau cubique à faces centrées.

Dans le cas de la substitution, l'atome inséré est de taille proche de celles des atomes du cristal, il peut ainsi les remplacer sur un site du réseau (figure I.9).

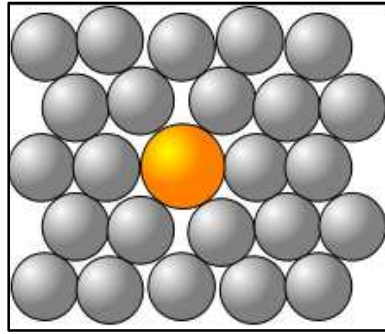


Figure I.9. Défaut extrinsèque en substitution.

I.3-Défauts linéaires

Les défauts linéaires sont appelés « dislocations ». Ce sont des défauts à une seule dimension. Les dislocations correspondent à une discontinuité dans l'organisation de la structure cristalline. Elles peuvent être classées en deux types : les dislocations coins et les dislocations vis. Elles sont caractérisées par leur ligne et par un vecteur de glissement appelé vecteur de Burgers dont la norme donne l'amplitude de la déformation. Les dislocations jouent donc un rôle primordial dans les propriétés mécaniques des matériaux [23, 27].

I.3.1- Dislocation coin

Ce type de défaut correspond à la présence d'un demi-plan atomique introduit dans le réseau cristallin qui se termine par une ligne de dislocation comme il est représenté à la figure I.10. La ligne de dislocation est la ligne passant par le point A et perpendiculaire au plan de la figure. Le vecteur \vec{b} qui est perpendiculaire à la ligne de dislocation et qui représente la grandeur et la direction du glissement est le vecteur de Burgers de la dislocation.

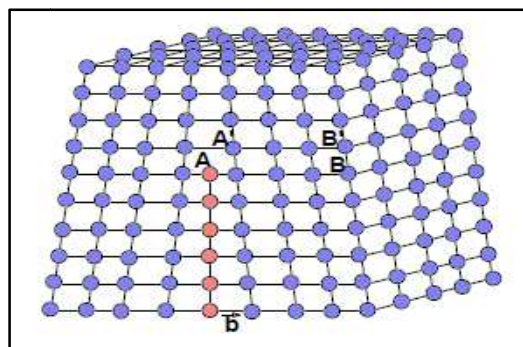


Figure I.10. Dislocation coin.

1.3.2. Dislocation vis

Une dislocation vis est caractérisée par un vecteur de Burgers \vec{b} parallèle à la ligne de dislocation AD (figure I.11).

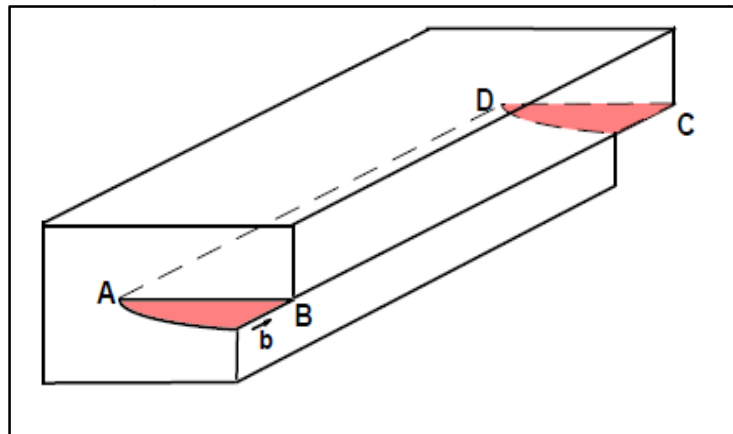


Figure I.11. Dislocation vis.

La ligne de dislocation n'est pas forcément droite. On peut avoir des dislocations mixtes, dont la ligne fait un angle quelconque avec le vecteur de Burgers.

1.4-Défauts surfaciques

La plupart des matériaux sont polycristallins, c'est-à-dire ils sont composés de plusieurs cristaux appelés grains de tailles différentes. Ces cristaux sont orientés aléatoirement les uns par rapport aux autres. Les défauts surfaciques comprennent les joints de grains, les joints de phases et les joints de macles [21, 23].

1.4.1-Joints de grains et joints de phases

Les joints se sont les zones d'accolement entre les cristaux. Ce sont des surfaces et donc des défauts à deux dimensions. Si ces grains sont de nature identique, leur surface de raccordement est appelée joint de grains. Si par contre, les grains sont de nature différente, leur surface de raccordement est appelée joint de phases (figure I.12).

Chapitre I : Défauts Cristallins

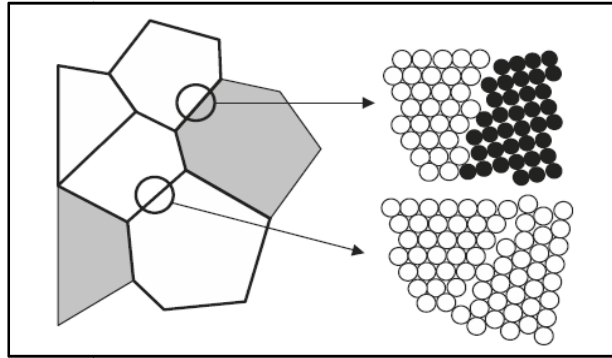


Figure I.12. Schématisation d'un joint de grains et d'un joint de phases.

1.4.2-Joints de macle

Le joint de macle est un joint séparant deux parties du grain d'orientation symétriques (figure I.13).

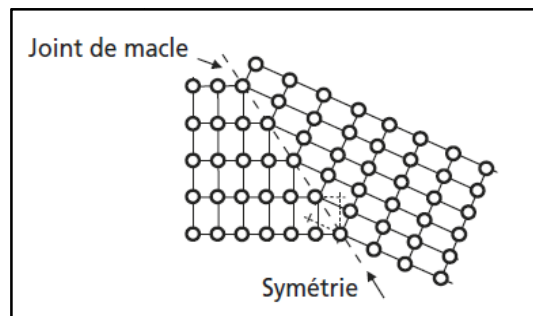


Figure I.13. Schématisation d'un joint de macle.

1.5-Défauts volumiques

Les défauts volumiques sont des agrégats à trois dimensions d'atomes ou de lacunes. Ils sont répertoriés en trois classes : les pores, les inclusions et les précipités [21, 30, 31].

1.5.1-Pores

Ce sont des cavités formées dans un cristal ou d'un polycristal suite à l'agglomération de lacunes ou sont des gaz piégés durant la phase de solidification. Ils ont pour effet de diminuer la résistance mécanique du matériau et de favoriser la rupture à de faibles charges.

1.5.2-Inclusions

Les inclusions sont des particules de nature différente (des impuretés) enrobées dans le matériau qui proviennent de son élaboration à l'état liquide. Leur présence est indésirable car ce

Chapitre I : Défauts Cristallins

sont des sites préférentiels pour la rupture et altèrent les propriétés électriques des dispositifs microélectroniques en introduisant des effets indésirables [30, 31].

1.5.3-Précipités

Les précipités sont de petites particules de nature différente de l'environnement formées entre le métal de base et un élément d'alliage. La taille des précipites et la distance les séparant influencent les propriétés mécaniques des matériaux [30].

Chapitre II

Modèle de simulation

Chapitre II : Modèle de Simulation

II.1- Introduction

Lorsqu'une particule énergétique traverse un solide, elle perd son énergie cinétique en effectuant des collisions multiples avec les atomes composant le milieu. Ces collisions finissent par déplacer les atomes du réseau de leurs positions d'équilibre et créent ainsi, des défauts ponctuels qui sont les interstitiels et les lacunes. Les défauts peuvent migrer dans le solide et se recombinaient s'ils sont de types différents et s'agglomérer pour former des amas s'ils sont de même type.

Pour comprendre comment une cascade de déplacements se développe, il faut se tourner vers la simulation par ordinateur. Deux méthodes sont habituellement employées pour modéliser le comportement des atomes dans une cascade; la méthode de la dynamique moléculaire et la méthode de l'approximation des collisions binaires [32]. Dans ce qui suit nous décrivons le modèle de la BCA.

II.2-Approximation des collisions binaires

Ce modèle est très utilisé pour étudier les interactions des particules irradiantes avec la matière. Il est appliqué avec succès aux phénomènes de rétrodiffusion, transmission, implantation d'ions et les dommages causés par irradiation [19-22].

Dans la BCA, les chocs subits par une particule en mouvement le long de sa trajectoire dans un milieu sont traités comme une suite de collisions individuelles entre la particule et les atomes immobiles du matériau. Les trajectoires des particules avant et après les collisions sont remplacées par leurs asymptotes. L'énergie cédée par la particule mobile au milieu est considérée comme étant composée d'une partie élastique transférée durant les chocs avec les noyaux et une partie inélastique due à l'excitation des électrons atomiques du milieu [33-35].

II.2.1. Description de la cascade de déplacements

Suite à la collision de la particule irradiante avec un atome du matériau, celui-ci acquiert une quantité d'énergie et quitte sa position d'équilibre. Un tel atome est appelé primaire ou PKA (pour

Chapitre II : Modèle de Simulation

Primary knock-on atom). Le primaire entre en choc avec les atomes se trouvant dans sa trajectoire produisant des atomes secondaires qui peuvent à leur tour éjecter d'autres atomes du réseau en ainsi de suite. On assiste alors à une multitude de collisions atomiques appelée cascade de déplacements (figure II.1). Les atomes heurtés du réseau sont déplacés définitivement de leurs positions d'équilibre s'ils reçoivent une énergie supérieure à l'énergie seuil de déplacement E_d du matériau. Si l'énergie reçue est inférieure à E_d , l'atome cible oscillera autour de sa position d'équilibre et dissipera l'énergie acquise sous forme de chaleur [36]. Les pertes d'énergies élastiques et inélastiques font qu'à long terme, les atomes en mouvement ralentiront et s'immobiliseront ce qui conduit à l'arrêt de l'expansion de la cascade [21].

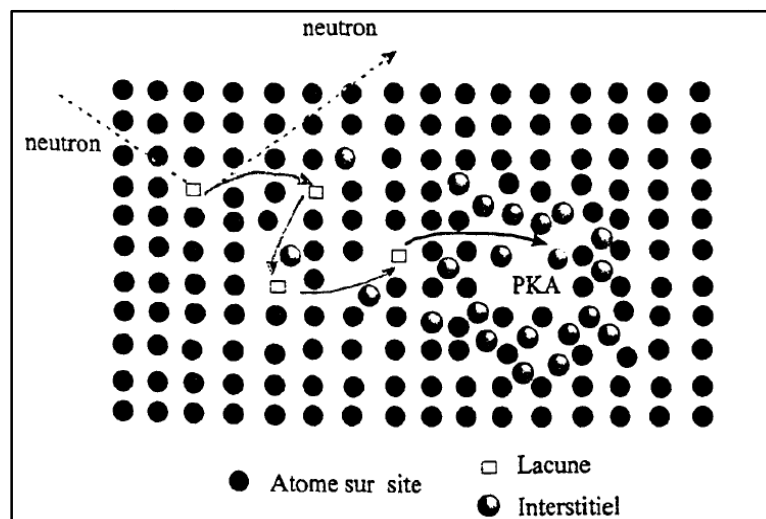


Figure II.1. Représentation schématique de la cascade de déplacements.

L'image donnée par Brinkman [37] et Seeger à une cascade de déplacement est qu'elle est composée d'une région centrale riche en lacunes et d'une périphérie formée essentiellement d'atomes interstitiels.

Des phénomènes physiques divers peuvent avoir lieu durant le développement d'une cascade. Parmi ces phénomènes on cite la canalisation, la focalisation et les séquences de remplacements [21].

II.2.2. Canalisation

Le phénomène de canalisation se produit le plus souvent dans l'irradiation à haute énergie. La particule se déplace dans le milieu parallèlement à une direction cristallographique de bas indice. Comme il est présenté à la figure II.2, la particule se meut en suivant une trajectoire entre les atomes.

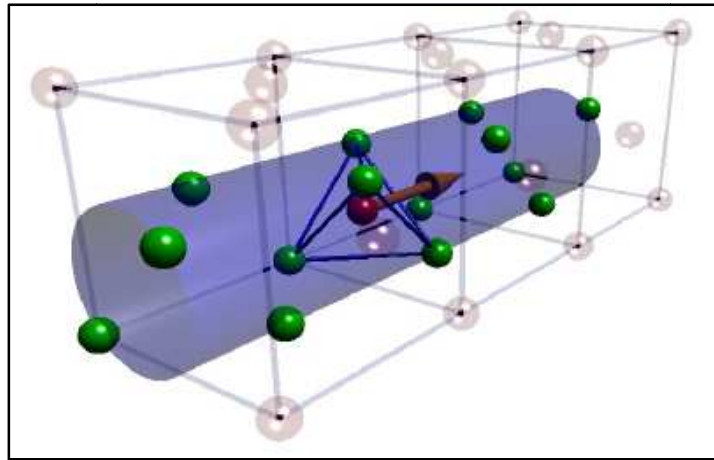


Figure II.2. Représentation Schématique de la canalisation dans une structure c.f.c.

La canalisation permet aux particules mobiles de parcourir des distances longues avant d'entrer en collision importante avec les atomes du milieu. Sous l'effet du potentiel exercé par les atomes voisins, la trajectoire de la particule dans le canal est ondulée (voir figure II.3). Elle est donnée par [21, 32]

$$r = \theta_0 \left(\frac{E}{k}\right)^{1/2} \sin \left[\left(\frac{k}{E}\right)^{1/2} z \right] \quad (2.1)$$

avec θ_0 l'angle initial et

$$k = \frac{A_{BM}}{Da_{BM}} \left(\frac{2\pi R_{ch}}{a_{BM}}\right) e^{-\frac{R_{ch}}{a_{BM}}} \quad (2.2)$$

E étant l'énergie cinétique de la particule, R_{ch} la largeur du canal, A_{BM} et a_{BM} sont des paramètres du potentiel de Born-Mayer. L'angle limite au-delà duquel la canalisation ne peut pas se produire est calculé en posant r_{max} dans (2.1) égal à R_{ch}

Chapitre II : Modèle de Simulation

$$\theta_{ch} = R_{ch} \left(\frac{k}{E} \right)^{1/2} \quad (2.3)$$

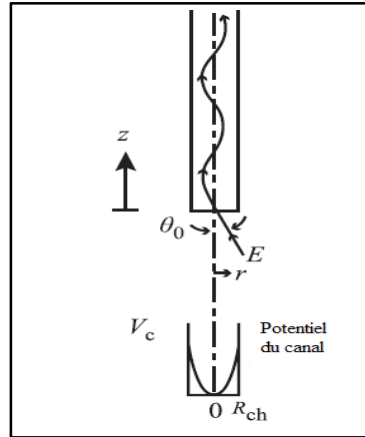


Figure II.3. Schéma de la trajectoire d'une particule canalisée.

II.2.3. Focalisation

La focalisation consiste en une série de collisions successives d'atomes voisins d'une rangée atomique. Ce phénomène a tendance à se produire vers la fin du développement des cascades.

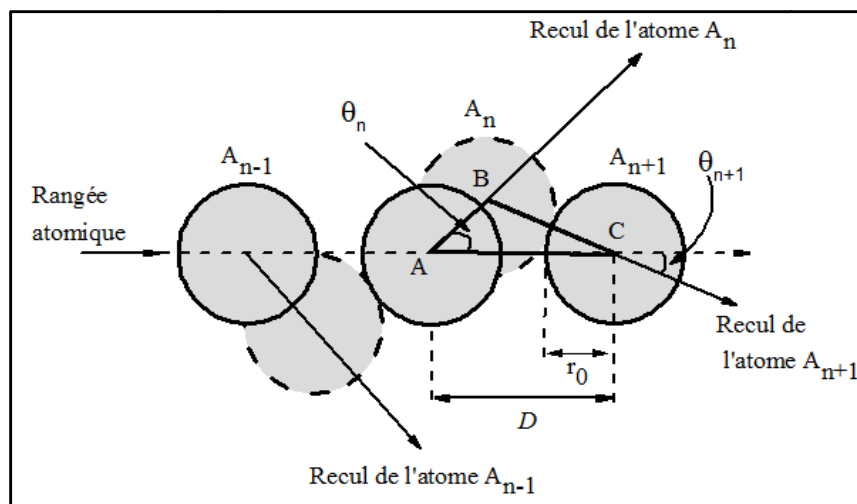


Figure II.4. Schéma d'une séquence de focalisation.

Soit A_{n-1} , A_n et A_{n+1} trois atomes d'une série de focalisation (figure II.4). L'atome A_{n-1} déplace l'atome A_n qui lui-même heurte l'atome A_{n+1} . L'utilisation de l'approximation de la sphère dure et des relations trigonométriques permet d'écrire pour l'angle de recul, θ_n , de l'atome A_n en

Chapitre II : Modèle de Simulation

fonction de θ_0 l'angle que faisait le premier atome de la séquence avec la direction de la rangée atomique, D la distance entre deux atomes voisins de la rangée et r_0 le rayon d'un atome [21, 36]

$$\theta_n = \left(\frac{D}{2r_0} - 1 \right)^n \theta_0 . \quad (2.4)$$

On constate de (2.4) que si $D > 4r_0$, alors le coefficient précédent θ_0 sera supérieur à 1. Dans une telle situation, les angles de recul $\theta_1, \theta_2, \dots$ s'accroîtront et on assiste à une défocalisation. Pour $D < 4r_0$, le coefficient sera inférieur à 1 et on aura une focalisation de la séquence vers des collisions frontales. Donc $D = 4r_0$ est une limite qui est obtenue de considérations purement géométriques pour la focalisation.

II.2.4. Remplacements

Un phénomène de remplacement se produit lorsque l'atome en mouvement transfère toute son énergie à l'atome cible et s'immobilise à sa place. On parle de séquences de replacements lorsque ce phénomène se répète sur plusieurs atomes d'une rangée atomique (voir figure II.5). À la fin d'une séquence de replacements, on se retrouve avec un atome interstitiel qui a, approximativement, la même énergie cinétique que le premier atome de la séquence [21].

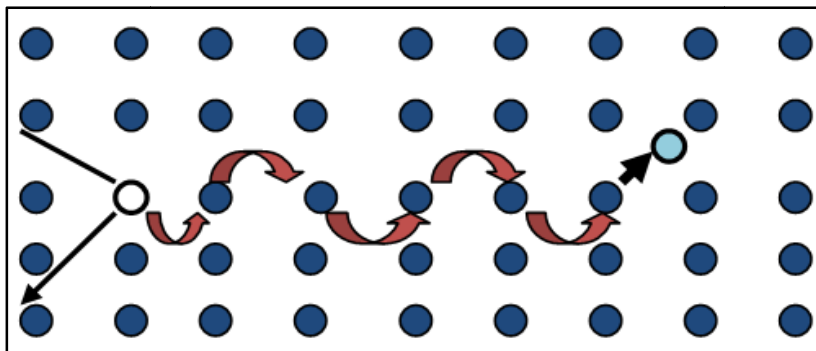


Figure II.5. Schéma d'une séquence de replacements.

Chapitre II : Modèle de Simulation

En utilisant le modèle de la sphère dure et le potentiel de Born-Mayer pour tenir compte des interactions entre les atomes, on peut établir qu'une séquence de remplacements peut se produire lorsque l'énergie, E , transportée le long de la séquence remplit la condition [21, 32]

$$E > E_r = \frac{A_{BM}}{2} e^{-D/2a_{BM}} . \quad (2.5)$$

Du fait que les séquences de remplacements déplacent les atomes loin de leurs sites d'origines, ils peuvent contribuer à la production de dégâts dans les matériaux irradiés.

II.2.5- Défauts permanents

Les collisions atomiques qui ont lieu au sein d'un solide irradié provoquent des déplacements atomiques et produisent, ainsi, des lacunes et des interstitiels. Le processus de guérison (recombinaison des lacunes et des interstitiels) a pour conséquence de réduire considérablement le nombre de défauts générés dans la phase de collision. Dans les simulations par la BCA, une paire de Frenkel est considérée comme stable si la distance lacune-interstitiel est supérieure à une certaine distance appelée rayon de recombinaison [21, 34, 38, 39]. Il est clair que les positions relatives des défauts influent considérablement sur le nombre final de défauts qui survivent à la fin de la cascade de déplacements.

II.2.6- Collisions élastiques

II.2.6.1-Cinématique d'une collision binaire

La collision entre un atome en mouvement et un atome immobile est supposée composée d'une partie élastique où il y a conservation de l'énergie cinétique totale du système et d'une partie inélastique causée par l'excitation ou l'ionisation des électrons atomiques. Dans ce qui suit, nous allons examiner une seule collision atomique et appliquer les lois de conservation de l'énergie et du quantité de mouvement pour calculer différentes grandeurs qui nous intéressent dans l'étude. Les

Chapitre II : Modèle de Simulation

calculs sont effectués dans le référentiel du laboratoire (L) et dans le référentiel du centre de masse (CM).

Soit un atome de masse m_1 , de vitesse \vec{v}_0 et d'énergie E_0 qui entre en collision avec un atome immobile de masse m_2 . Désignons par \vec{v}_1 , \vec{v}_2 , respectivement, les vitesses du projectile et de l'atome cible après la collision et par Q l'énergie inélastique perdue par excitation ou ionisation des électrons atomiques. La figure II.6 représente une collision binaire dans le système de référence du laboratoire. Les lois de conservation de l'énergie totale et de la quantité de mouvement du système dans le référentiel du laboratoire s'écrivent [21, 40]

$$\frac{1}{2}m_1v_0^2 = \frac{1}{2}m_1v_1^2 + \frac{1}{2}m_2v_2^2 + Q, \quad (2.6)$$

$$m_1\vec{v}_0 = m_1\vec{v}_1 + m_2\vec{v}_2. \quad (2.7)$$

En décomposant suivant l'axe du mouvement Ox et un axe perpendiculaire Oy nous obtenons

$$\begin{cases} m_1v_0 = m_1v_1\cos\theta_1 + m_2v_2\cos\theta_2 \\ 0 = m_1v_1\sin\theta_1 - m_2v_2\sin\theta_2 \end{cases}, \quad (2.8)$$

où θ_1 et θ_2 sont les angles de diffusion du projectile et de l'atome cible par rapport à la direction d'incidence.

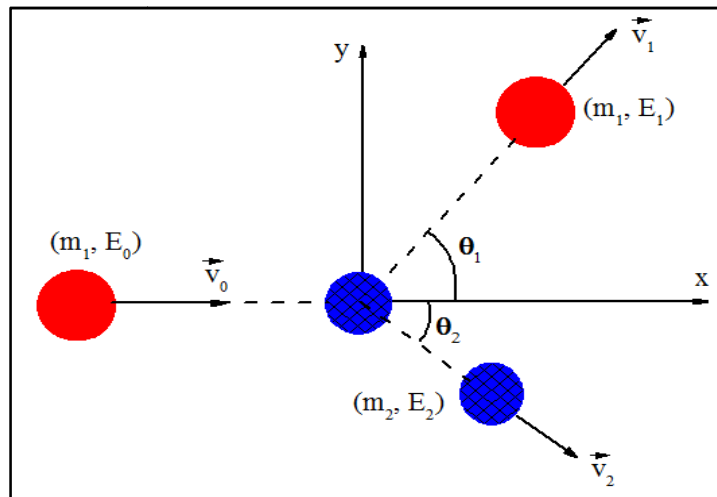


Figure II.6. Schéma d'une collision binaire dans le système du laboratoire.

Chapitre II : Modèle de Simulation

Les relations (2.6) et (2.8) permettent le calcul des angles de diffusion θ_i en fonction des énergies cinétiques

$$\cos\theta_1 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_1}{E_0}} (1 + A) + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_0}{E_1}} \left[1 - A \left(1 - \frac{Q}{E_0} \right) \right], \quad (2.9)$$

$$\cos\theta_2 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_2}{E_0}} \frac{1+A}{\sqrt{A}} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_0}{E_2}} \frac{1}{\sqrt{A}} \frac{Q}{E_0}, \quad (2.10)$$

avec $A = m_2/m_1$.

Désignons par \vec{v} la vitesse du centre de masse par rapport au référentiel du laboratoire et par \vec{v}_{1c} et \vec{v}_{2c} les vitesses du projectile et de l'atome cible avant la collision dans un référentiel lié au centre de masse (CM) et \vec{v}'_{1c} et \vec{v}'_{2c} après la collision. De la loi de composition des vitesses [21]

$$\begin{cases} \vec{v}_{1c} = \vec{v}_0 - \vec{v} \\ \vec{v}_{2c} = -\vec{v} \end{cases}. \quad (2.11)$$

La conservation de l'impulsion totale donne

$$m_1 \vec{v}_{1c} + m_2 \vec{v}_{2c} = m_1 \vec{v}'_{1c} + m_2 \vec{v}'_{2c} = 0, \quad (2.12)$$

À partir des relations (2.11) et (2.12) il en découle

$$\vec{v} = \frac{1}{1+A} \vec{v}_0, \quad (2.13)$$

$$\vec{v}_{1c} = \frac{A}{1+A} \vec{v}_0, \quad (2.14)$$

$$\vec{v}_{2c} = -\frac{1}{1+A} \vec{v}_0. \quad (2.15)$$

La loi de conservation de l'énergie totale dans le référentiel (CM) donne

$$\frac{1}{2} m_1 v_{1c}^2 + \frac{1}{2} m_2 v_{2c}^2 = \frac{1}{2} m_1 v'^2_{1c} + \frac{1}{2} m_2 v'^2_{2c} + Q. \quad (2.16)$$

L'énergie totale dans le système (CM) s'écrit à partir des relations (2.14), (2.15) et (2.16)

Chapitre II : Modèle de Simulation

$$E_r = E_{1c} + E_{2c} = \frac{A}{1+A} E_0 \quad (2.17)$$

Les relations entre les vitesses dans les deux référentiels sont illustrées sur la figure II.7.

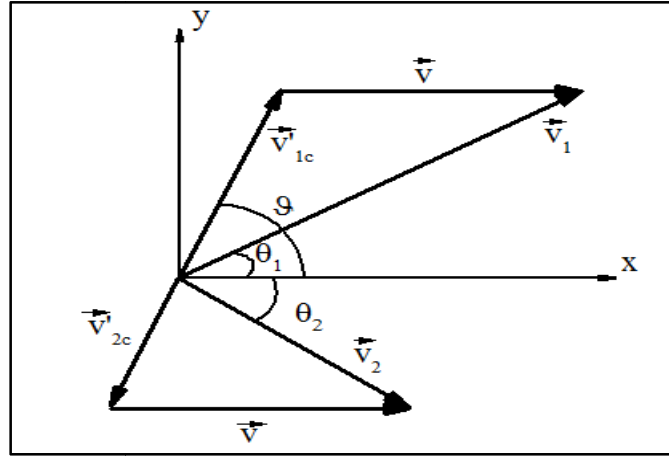


Figure II.7. Relations entre les vitesses dans les référentiels du laboratoire et du centre de masse.

Nous avons

$$\vec{v}_1 = \vec{v}'_{1c} + \vec{v} \quad (2.18)$$

La projection sur les axes Ox et Oy donne les expressions

$$\begin{cases} v'_{1c} \sin \vartheta = v_1 \sin \theta_1 \\ v'_{1c} \cos \vartheta + v = v_1 \cos \theta_1 \end{cases} \quad (2.19)$$

Nous tirons des deux relations l'angle de diffusion θ_1

$$\tan \theta_1 = \frac{\sin \vartheta}{\cos \vartheta + v/v'_{1c}} \quad (2.20)$$

Pour établir une relation directe entre θ_1 et ϑ , nous utilisons les relations (2.12), (2.13) et (2.16)

pour obtenir

$$\left(\frac{v'_{1c}}{v_{1c}} \right)^2 = 1 - \frac{1+A}{A} \frac{Q}{E_0} = 1 - \frac{Q}{E_r} = f^2, \quad (2.21)$$

où $f = \sqrt{1 - \frac{Q}{E_r}}$ puis les relations (2.13), (2.14) et (2.21)

$$\frac{v}{v'_{1c}} = (fA)^{-1}, \quad (2.22)$$

Chapitre II : Modèle de Simulation

pour écrire (2.20) sous la forme

$$\tan\theta_1 = \frac{Af\sin\vartheta}{1+Af\cos\vartheta}. \quad (2.23)$$

Un calcul similaire donne pour l'angle θ_2

$$\tan\theta_2 = \frac{\sin\vartheta}{1-f\cos\vartheta}. \quad (2.24)$$

De (2.23), (2.24) et la relation trigonométrique $\cos\theta_i = 1/\sqrt{1 + \tan^2(\theta_i)}$ nous obtenons

$$\cos\theta_1 = \frac{1+Af\cos\vartheta}{\sqrt{1+2Af\cos\vartheta+A^2f^2}}, \quad (2.25)$$

et

$$\cos\theta_2 = \frac{1-f\cos\vartheta}{\sqrt{2-2f\cos\vartheta-(1-f^2)\cos^2\vartheta}}, \quad (2.26)$$

II.2.7-Energie transférée

Pour calculer l'énergie du projectile après la collision et l'énergie transférée à l'atome cible en fonction de l'angle de diffusion dans le système (CM), calculons tout d'abord à partir des expressions (2.9) et (2.10) les rapports E_1/E_0 et E_2/E_0

$$\frac{E_1}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} (\cos\theta_1 \pm \sqrt{A^2f^2 - \sin^2\theta_1})^2 = \left(\frac{v_1}{v_0}\right)^2, \quad (2.27)$$

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{A}{(1+A)^2} (\cos\theta_2 \pm \sqrt{f^2 - \sin^2\theta_2})^2 = A \left(\frac{v_2}{v_0}\right)^2, \quad (2.28)$$

Puis utilisons les expressions (2.25) et (2.26)

$$\frac{E_1}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} \left((1+Af)^2 - 4Af\sin^2\frac{\vartheta}{2} \right), \quad (2.29)$$

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{A}{(1+A)^2} \left((1-f)^2 + 4f\sin^2\frac{\vartheta}{2} \right). \quad (2.30)$$

L'énergie transférée à la cible s'écrit à l'aide de (2.17) et (2.30) comme suit

$$E_2 = T = \frac{E_r}{(1+A)} \left((1-f)^2 + 4f\sin^2\frac{\vartheta}{2} \right) \quad (2.31)$$

Chapitre II : Modèle de Simulation

L'énergie E_2 prend sa valeur maximale lorsque la perte d'énergie inélastique est nulle ($Q = 0$, ce qui revient à poser $f = 1$) et $\sin^2(\vartheta/2) = 1$

$$T_{max} = \frac{4}{1+A} E_r = \frac{4A}{(1+A)^2} E_0. \quad (2.32)$$

II.2.8 -Angle de diffusion

Désignons par $V(r)$ le potentiel d'interaction atomique qui décrit l'interaction entre le projectile et l'atome cible. Il dépend de la distance entre les deux atomes ($r = |\vec{r}_1 - \vec{r}_2|$). L'énergie totale dans le système (CM) a pour expression [21, 40]

$$E_c = \frac{1}{2} m_1 v_{1c}^2 + \frac{1}{2} m_2 v_{2c}^2. \quad (2.33)$$

L'utilisation des relations (2.14) et (2.15) transforme (2.33) à la forme

$$E_c = \frac{1}{2} \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2} v_0^2 = E_r. \quad (2.34)$$

L'énergie donnée par (2.34) est identique à l'énergie d'une particule de masse $\mu = m_1 m_2 / (m_1 + m_2)$ et de vitesse v_0 qui se meut dans un champ de force central $V(r)$. Nous pouvons écrire pour cette particule en coordonnées polaires (voir figure II.8)

$$\frac{\mu}{2} (\dot{r}^2 + r^2 \dot{\varphi}^2) + V(r) = E_r. \quad (2.35)$$

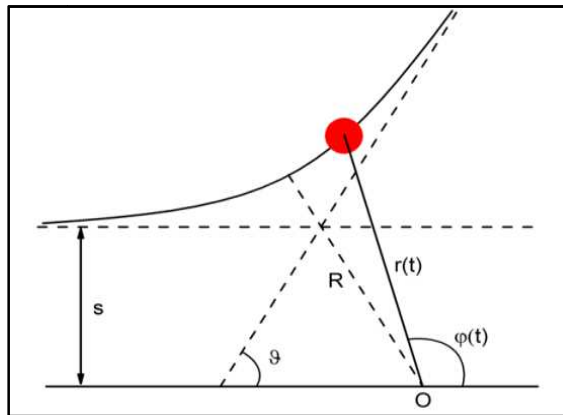


Figure II.8. Angle de diffusion ϑ dans le référentiel du centre de masse.

Chapitre II : Modèle de Simulation

La loi de conservation du moment permet d'écrire

$$r^2 \dot{\varphi} = -v_0 s, \quad (2.36)$$

s étant le paramètre d'impact qui représente la distance perpendiculaire entre la trajectoire initiale du projectile et la position initiale de l'atome cible. En portant (2.36) dans (2.35) nous obtenons pour la vitesse radiale

$$\dot{r} = \pm \sqrt{\frac{2}{\mu} [E_r - V(r)] - \frac{v_0^2 s^2}{r^2}} = \pm v_0 \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_r} - \frac{s^2}{r^2}}. \quad (2.37)$$

La distance minimale d'approche, R , qui est la distance pour laquelle $\dot{r} = 0$. Elle est solution de l'équation $g(R) = 0$ avec la fonction $g(r)$ donnée par

$$g(r) = \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_r} - \frac{s^2}{r^2}}. \quad (2.38)$$

Pour le calcul de l'angle de diffusion ϑ , nous avons de (2.36) et (2.37)

$$\frac{d\varphi}{dr} = \frac{\dot{\varphi}}{\dot{r}} = \pm \frac{s}{g(r)r^2}. \quad (2.39)$$

ou encore

$$\int_{\pi}^{\vartheta} d\varphi = \int_{\infty}^R \frac{s dr}{r^2 g(r)} - \int_R^{\infty} \frac{s dr}{r^2 g(r)} = 2 s \int_{\infty}^R \frac{dr}{r^2 g(r)}. \quad (2.40)$$

Par intégration du membre gauche de l'équation nous obtenons l'angle de diffusion

$$\vartheta = \pi - 2 s \int_R^{\infty} \frac{dr}{r^2 g(r)}. \quad (2.41)$$

L'intégrale du temps est donnée par la relation [40]

$$\tau = \sqrt{R^2 - s^2} - \int_R^{\infty} dr \left[\frac{1}{g(r)} - \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{s^2}{r^2}}} \right] \quad (2.42)$$

Chapitre II : Modèle de Simulation

Les intégrales dans (2.41) et (2.42) sont évaluées numériquement par la formule de quadrature de Gauss [34]. Les points d'intersection des asymptotes du projectile et de l'atome cible ont pour abscisses x_1 et x_2 données par [21, 33]

$$x_1 = \frac{[(1+f)\tau + (fA-1)stan\frac{\vartheta}{2}]}{f(1+A)}, \quad (2.43)$$

$$x_2 = stan\frac{\vartheta}{2} - x_1. \quad (2.44)$$

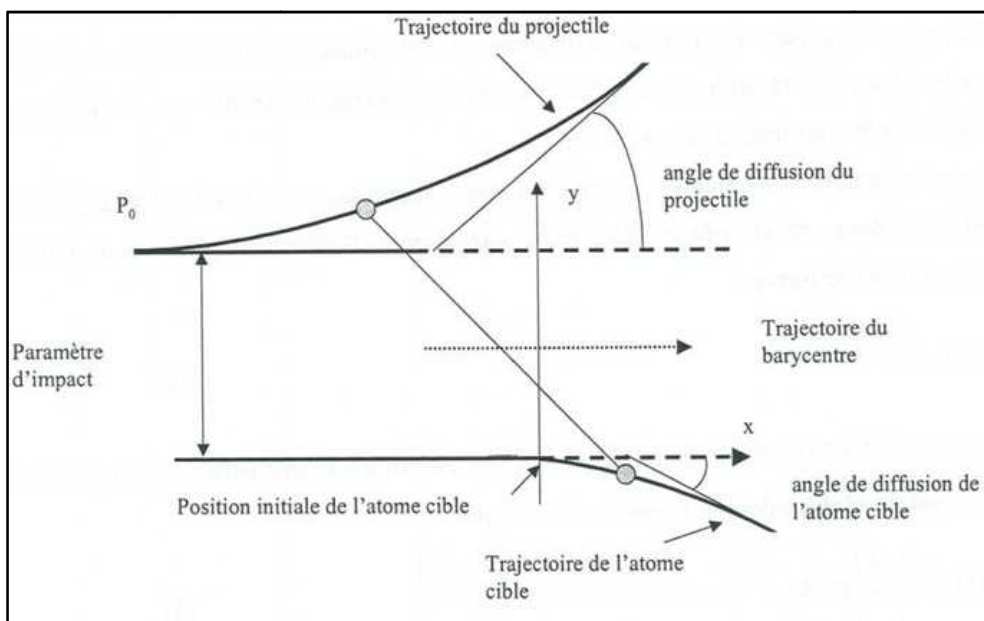


Figure II.9. Trajectoires de deux atomes en collision dans le référentiel du laboratoire.

II.2.9-Perte d'énergie

Le ralentissement d'une particule dans un milieu se fait par deux processus : La collision nucléaire et la collision électronique. La collision nucléaire traduit les chocs élastiques avec les atomes du milieu alors que la collision électronique ou inélastique traduit l'interaction entre le projectile et le nuage électronique des atomes cibles conduisant à l'excitation et l'ionisation de ceux-ci. La perte d'énergie inélastique se fait selon un processus continu [21, 36, 41, 42].

Chapitre II : Modèle de Simulation

Le pouvoir d'arrêt d'un matériau pour une particule est une mesure de la quantité d'énergie que celle-ci perd par unité de longueur le long de son parcours. Nous examinons, dans ce qui suit, le pouvoir d'arrêt nucléaire et électronique.

II .2.9.1- Pertes d'énergie inélastiques

Le pouvoir d'arrêt électronique, $(-dE/dx)_{in}$, dépend de la vitesse du projectile et de sa charge Z_1 . Lorsque la vitesse du projectile vérifie $v \gg Z_1^{2/3} e^2 / \hbar$, il y a de forte chance que la particule en mouvement se trouve totalement épluchée de ses électrons externes. Elle se meut dans le matériau comme un ion de charge effective Z_{eff} et interagit à travers un potentiel coulombien avec les électrons de la cible. Bethe [43] et Bloch [44] ont dérivé pour le pouvoir d'arrêt électronique la formule suivante [21]

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{in} = \frac{e^4}{2\pi\epsilon_0^2} \frac{Z_{eff}^2}{m_e v^2} N Z_2 \left[\ln\left(\frac{2m_e v^2}{I}\right) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 - \frac{C_K}{Z_2} - \frac{\delta}{2} \right], \quad (2.45)$$

I étant le potentiel moyen d'excitation de l'atome cible, N la densité atomique de la cible, Z_2 le numéro atomique de l'atome cible, e la charge de l'électron, ϵ_0 la permittivité du vide, $\beta = v/C$ avec C la vitesse de la lumière dans le vide, C_K et δ sont des corrections apportées pour tenir compte de la liaison forte des électrons de la couche K et la polarisation des atomes du milieu par le champ du projectile.

Nombreuses formules empiriques existent pour estimer la charge effective du projectile. Citons, par exemple, la relation de Bohr [36]

$$Z_{eff} = \frac{Z_1^{1/3} \hbar}{e^2} \left(\frac{2E}{m_1}\right)^{1/2}, \quad (2.46)$$

La formule de Bethe-Bloch constitue une bonne approximation pour les particules lourdes de quelques MeV jusqu'à des centaines de GeV.

Chapitre II : Modèle de Simulation

Pour des vitesses $v \ll Z_1^{2/3} e^2/\hbar$ deux modèles basés sur les collisions binaires sont habituellement utilisés pour évaluer la perte d'énergie dans ce domaine de vitesses: le modèle de Firsov [45] et le modèle dit LSS [46] (développé par Lindhard, Scharff et Schiott). Dans le modèle de Firsov, le projectile et l'atome-cible sont supposés composer une quasi-molécule pendant la période d'interaction [21]. L'expression du pouvoir d'arrêt obtenu par Firsov a la forme

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{in} = 5.15 \cdot 10^{-15} N (Z_1 + Z_2) \frac{v}{v_B}, \quad (2.47)$$

où $v_B = e^2/\hbar$ est la vitesse de Bohr.

Dans le modèle LSS, le milieu dans lequel se produit l'interaction est décrit comme un gaz d'électrons libres. Les échanges d'électrons entre le projectile et les atomes cibles se manifestent par un transfert d'énergie au nuage électronique produisant des vibrations thermiques au sein de celui-ci. Lindhard et al. ont dérivé pour le pouvoir d'arrêt électronique la formule suivante [21, 47]

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{in} = \frac{8 \pi e^2 N a_B Z_1^{7/6} Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \frac{v}{v_B}, \quad (2.48)$$

où a_B est le rayon de Bohr ($a_B = 0.529 \text{ \AA}$). En tenant compte de la relation entre l'énergie cinétique d'une particule et sa vitesse on peut réécrire la formule précédente sous la forme

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{in} = k\sqrt{E}, \quad (2.49)$$

où k est une constante. Le pouvoir d'arrêt (2.49) a un caractère non local puisqu'il est indépendant de la position relative du projectile par rapport aux atomes cibles. Sa valeur croit avec l'énergie de la particule.

II.2.9.2 - Pertes d'énergie élastiques

Deux modèles sont utilisés conjointement pour décrire les collisions élastiques entre le projectile et les atomes cibles : la mécanique des chocs et la diffusion d'une particule chargée dans un potentiel. Le pouvoir d'arrêt élastique ou nucléaire est donné par [21, 36]

Chapitre II : Modèle de Simulation

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{el} = N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T \sigma(T) dT, \quad (2.50)$$

T étant l'énergie communiquée à l'atome cible et qui est susceptible de le déplacer pour créer une lacune. Elle est régie par la relation (2.31). T_{min} et T_{max} dénotent, respectivement, l'énergie minimale et l'énergie maximale qui peuvent être transférées à l'atome cible, alors que σ désigne la section efficace de diffusion. Le calcul de l'intégrale (2.50) requiert l'évaluation de l'angle de déflexion qui dépend à son tour du potentiel d'interaction atomique. Les calculs utilisant un potentiel coulombien $V(r) = (Z_1 Z_2 e^2)/r^2$ donnent

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{el} = \frac{2\pi N m_1 Z_1^2 Z_2^2 e^4}{m_2 E} \ln\left(\frac{T_{max}}{T_{min}}\right) \quad (2.51)$$

Un calcul plus réaliste devrait tenir compte de l'écrantage des deux noyaux en interaction par les nuages électroniques en interposition entre les deux. Basé sur un potentiel écranté de type Thomas-Fermi, Biersack [48] proposa pour le pouvoir d'arrêt nucléaire la relation suivante [21]

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{el} = 4\pi N Z_1 Z_2 e^2 a_{12} \frac{m_1}{(m_1 + m_2)} \frac{\ln \epsilon}{2\epsilon(1 - \epsilon^{-1.49})}, \quad (2.53)$$

ϵ étant l'énergie réduite donnée par

$$\epsilon = \frac{m_2 a_{12}}{(m_1 + m_2)} \frac{E}{Z_1 Z_2 e^2}, \quad (2.54)$$

et a_{12} est le paramètre d'écrantage de Thomas-Fermi donné par

$$a_{12} = \frac{0.4685}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}}. \quad (2.55)$$

II.2.9.3- Perte d'énergie totale

La perte d'énergie totale d'un projectile dans un milieu est la somme des pertes d'énergie élastique et inélastique

$$-\frac{dE}{dx} = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_{el} + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_{in}. \quad (2.56)$$

Chapitre II : Modèle de Simulation

Les deux mécanismes de la perte d'énergie sont en compétition et leur importance relative dépend des caractéristiques du projectile et de la cible. Le ralentissement est principalement de nature électronique à haute énergie et il est presque exclusivement nucléaire vers la fin du parcours du projectile [21].

II.2.10 - Energie de déplacement

Le calcul BCA suppose qu'une paire de Frenkel stable ne peut se créer que si l'énergie transférée à l'atome cible est supérieure à une valeur, E_d , appelée énergie seuil de déplacement. La détermination d'une valeur adéquate pour l'énergie seuil de déplacement est une tâche ardue car elle a une forte dépendance aux directions cristallographiques. Par exemple, pour une structure cubique simple, il y a facilité de déplacements atomiques dans les directions $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$, alors que pour une structure cfc cette facilité est dans la direction $\langle 110 \rangle$ [21, 32]. La table II.1 donne les valeurs de E_d pour quelques métaux [49].

Tableau II.1. Valeurs moyenne de l'énergie de déplacement pour quelques métaux.

Métal	Cu	Fe	Ni	W	Ta	V
Structure	cfc	cc	cfc	cc	cc	cc
E_d (eV)	30	40	40	90	90	40

II.2.11- Nombre de déplacements

Plusieurs modèles théoriques ont été proposés pour déterminer le nombre total d'atomes déplacés dans une cascade produite par un primaire d'énergie E . Nous citons parmi ces modèles le modèle de Kinchin-Pease (KP) [50] et le modèle de Norgett-Robinson-Torrens (NRT) [51].

II.2.11.1- Modèle de Kinchin-Pease

Le modèle de Kinchin-Pease est fondé sur les six suppositions suivantes [21, 32]:

- la cascade est générée par un ensemble de collisions binaires

Chapitre II : Modèle de Simulation

- la probabilité de déplacement d'un atome qui acquiert une énergie supérieure à E_d est égale à 1
- l'énergie E_d est négligée dans la balance énergétique des collisions binaires.
- pour une énergie E supérieure à une énergie seuil E^* , la perte d'énergie est purement électronique et pour $E \leq E^*$, les collisions sont purement élastiques.
- le modèle de la sphère dure est utilisé dans les collisions
- le matériau est considéré amorphe. Des effets tels que la canalisation et la focalisation sont ignorés.

Selon ce modèle, le nombre moyen d'atomes déplacés par un primaire d'énergie initiale E est donné par l'expression

$$N_d(E) = \begin{cases} 0 & \text{si } E < E_d \\ 1 & \text{si } E_d \leq E < 2E_d \\ \frac{E}{2E_d} & \text{si } 2E_d \leq E < E^* \\ \frac{E^*}{2E_d} & \text{si } E \geq E^* \end{cases} \quad (2.57)$$

avec l'énergie seuil E^* donnée par la relation [36]

$$E^* = \frac{M I}{4 m_e} \quad (2.58)$$

La dépendance du nombre de défauts générés à l'énergie du primaire est représentée sur la figure II.10.

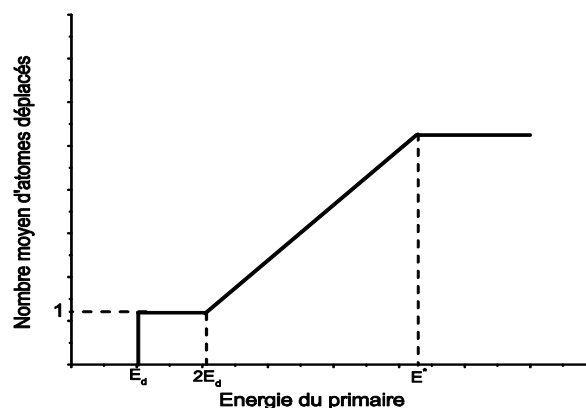


Figure II.10. Nombre moyen d'atomes déplacés dans le modèle de Kinchin-Pease.

Chapitre II : Modèle de Simulation

Les études des dégâts produits dans les métaux irradiés ont montré une surestimation du nombre de défauts calculé à partir de la relation (2.57) d'un facteur de 2 à 10 [52]. Plusieurs tentatives ont été effectuées pour améliorer le modèle de Kinchin-Pease. Citons, par exemple, celle de Snyder et Neufeld [53], de Sanders [54] et de Oen-Robinson [55].

II.2.11.2-Modèle de Norgett-Robinson-Torrens

L'utilisation du modèle de partition de l'énergie du primaire entre les deux modes de perte d'énergie (électroniques et nucléaires) développé par Lindhard et al. [46] a conduit à la correction suivante apportée au modèle de KP par Norgett, Robinson et Torrens (NRT) [21, 51]

$$N_{NRT}(E) = 0.8 \frac{E_{dam}(E)}{2E_d}, \quad (2.59)$$

où E_{dam} est l'énergie de dommage. C'est l'énergie perdue par collisions élastiques et qui conduit à la génération des dégâts. Elle est donnée par la relation

$$E_{dam}(E) = \frac{E}{1+k_N g(\varepsilon_N)}, \quad (2.60)$$

avec

$$g(\varepsilon_N) = 3.4008 \varepsilon_N^{1/6} + 0.40244 \varepsilon_N^{3/4} + \varepsilon_N, \quad (2.61)$$

$$k_N = 0.1337 Z_1^{1/6} \left(\frac{Z_1}{A_1}\right)^{1/2}, \quad (2.62)$$

$$\varepsilon_N = \left(\frac{A_2 E}{A_1 + A_2}\right) \left(\frac{a}{Z_1 Z_2 e^2}\right), \quad (2.63)$$

$$a = \left(\frac{9 \pi^2}{128}\right)^{1/3} \frac{a_B}{\sqrt{Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}}}, \quad (2.64)$$

a_B est le rayon de Bohr.

Chapitre III

Programme Marlowe

Chapitre III : Programme Marlowe

III.1- Introduction

Le programme Marlowe [56] utilisé dans nos calculs est basé sur le modèle de l'approximation des collisions binaires. Il est mis au point par M.T. Robinson du laboratoire National de Oak Ridge (Tennessee, USA) au début des années 60 et depuis il est sujet à des améliorations de temps à autre [33-35]. Il est édité en langage Fortran et conçu pour s'exécuter sur les deux systèmes d'exploitation Windows et UNIX. Il est flexible et permet la simulation d'un grand nombre de cascades en un temps relativement court.

III.2-Structure du programme

Plus de soixante procédures composent le code Marlowe. Cette structure en procédures facilite la modification du code. Les procédures eux même sont organisées en trois phases. La première phase est destinée à la lecture de données concernant le projectile (numéro atomique, masse, nombre de projectiles, énergie cinétique), le matériau cible (structure cristalline, numéro atomique, masse, énergie de liaison, température du matériau et température de Debye) et l'initialisation des paramètres liés au modèle de calcul tels que les paramètres du potentiel interatomique, de la perte d'énergie électronique, le type d'irradiation interne ou externe et l'énergie de coupure. Ces données sont organisées sous forme de listes. La deuxième phase est consacrée à la génération des cascades et à leur analyse individuellement. La dernière phase complète l'analyse de l'ensemble des cascades et transcrit les résultats obtenus dans un fichier de sortie [21, 56].

Après la lecture des données, Marlowe simule, pour chaque projectile, une cascade de déplacements. Dans le cas d'une irradiation interne, la cascade est initiée par un primaire qui est lancé d'un site du réseau. La cascade est décrite comme étant une série de collisions binaires successives et les atomes mobiles sont supposés se mouvoir le long des asymptotes de leurs trajectoires réelles. Pour chaque collision, l'intégrale de la diffusion classique est évaluée numériquement par la quadrature de Gauss-Tchébychev. Le potentiel interatomique est choisi parmi

Chapitre III : Programme Marlowe

une large variété de potentiels prédéfinis dans le package du programme. L'énergie cédée à l'atome cible ainsi que les angles de diffusion des deux atomes en collision sont évalués. Selon le choix de l'utilisateur, les pertes d'énergie inélastiques (locales et non locales) peuvent être incluses ou non. Un modèle gaussien de déplacements indépendants le long des axes des coordonnées est employé pour rendre compte des vibrations thermiques des atomes du réseau. La variance de la distribution est donnée par l'utilisateur ou calculée à partir du modèle de Debye [57]. Un atome du réseau est mis en mouvement s'il acquiert une d'énergie dépassant l'énergie de liaison E_{th} . À la fin de la cascade les paires de Frenkel sont identifiées [21]. Seules les paires avec des distances de séparation supérieures au rayon de recombinaison sont considérées comme stables.

Le module d'analyse des résultats peut être modifié aisément pour sélectionner les résultats voulus. Marlowe permet la détermination de plusieurs grandeurs caractérisant la cascade citons à titre d'exemple le nombre de paires de Frenkel et leur distribution en fonction de la distance de séparation lacune-interstitie1, le nombre de séquences de remplacements et leur distribution en longueur, le nombre d'atomes et déplacés et en mouvement en fonction du temps.

III.3- Description du matériau et du projectile

La description du cristal, dans Marlowe, se fait en donnant le type de réseau et les positions des atomes composant la maille élémentaire. Dans le cas des réseaux cubiques, Marlowe calcule automatiquement les positions des atomes à partir du site à l'origine.

Lors la cascade est au stade de développement, l'origine des coordonnées est placée au site le plus proche du projectile et le programme génère une liste des sites jusqu'à une distance DMAX. La valeur de DMAX, qui est précisée dans les données, est souvent choisie légèrement supérieure à la distance des deuxièmes proches voisins. Le partenaire de la collision est choisi parmi les atomes de cette liste. Le programme est aussi en mesure de simuler des cascades de déplacements dans des milieux polycristaux et amorphes. Le milieu polycristallin est simulé en effectuant une rotation

Chapitre III : Programme Marlowe

aléatoire des axes du système de référence au début de chaque cascade alors que pour un milieu amorphe, la rotation s'opère à la suite de chaque collision [21].

Marlowe peut simuler des cascades de déplacements dans une cible qui contient initialement des défauts tels que des interstitiels, des lacunes ou des impuretés. Les positions de ces défauts doivent être données dans le fichier d'entrée. L'irradiation, selon le choix, peut être interne ou externe. Pour l'irradiation externe, le projectile prend une direction initiale qui est fixée par l'utilisateur ou bien choisie, par le programme, aléatoirement dans un angle solide prédestinée. Pour l'irradiation interne, la direction du primaire est soit fixée en donnant les angles polaire et azimutal ou choisie isotropiquement dans tout l'espace ou l'hémisphère $z \geq 0$. Les cascades sont assemblées en groupes, si désiré. Dans ce cas, la première cascade de chaque groupe est développée dans un matériau sans dégâts. Les cascades subséquentes du groupe sont simulées dans un milieu dans lequel les défauts sont accumulés d'une cascade à l'autre.

III.4-Choix de la cible

À fin de choisir un partenaire à la collision, le code prend le site du dernier atome collisionné comme origine et génère les positions des atomes adjacents à une distance DMAX. Les atomes qui sont des cibles possibles sont ceux présent à l'intérieur du cylindre de rayon de section égal au paramètre d'impact maximum s_{max} et d'axe passant par le projectile et orienté suivant la direction de mouvement de celui-ci (figure III.1) [21].

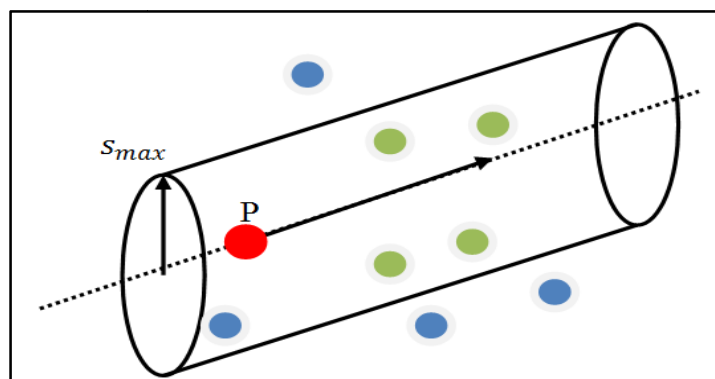


Figure III.1. Schéma de sélection des cibles dans Marlowe.

Chapitre III : Programme Marlowe

La procédure de recherche d'une cible pour la collision est schématisée sur la figure III.2. Soit $\vec{\lambda}_0$ un vecteur unitaire qui pointe dans la direction du mouvement du projectile (P) après collision avec l'atome du site R . Marlowe établit la liste des sites proches voisins de R . Les quantités suivantes sont calculées pour le site T qui est un élément de cette liste

$$\xi = \vec{\lambda}_0 \cdot \Delta\vec{x} \quad (3.1)$$

$$s^2 = |\Delta\vec{x}|^2 - \xi^2 \quad (3.2)$$

Si $\xi > \xi_{min} \geq 0$, alors le site T se trouve dans la bonne direction pour être un partenaire de la collision. Si $s > s_{max}$, alors l'atome au site T est suffisamment loin du trajet du projectile pour perturber le mouvement de celui-ci. La valeur de s_{max} est choisie de sorte qu'il y a toujours un nombre de cibles probables mais en même temps ce nombre ne doit pas être très grand pour éviter de nombreux collisions avec de très petits transferts d'énergie [21, 33].

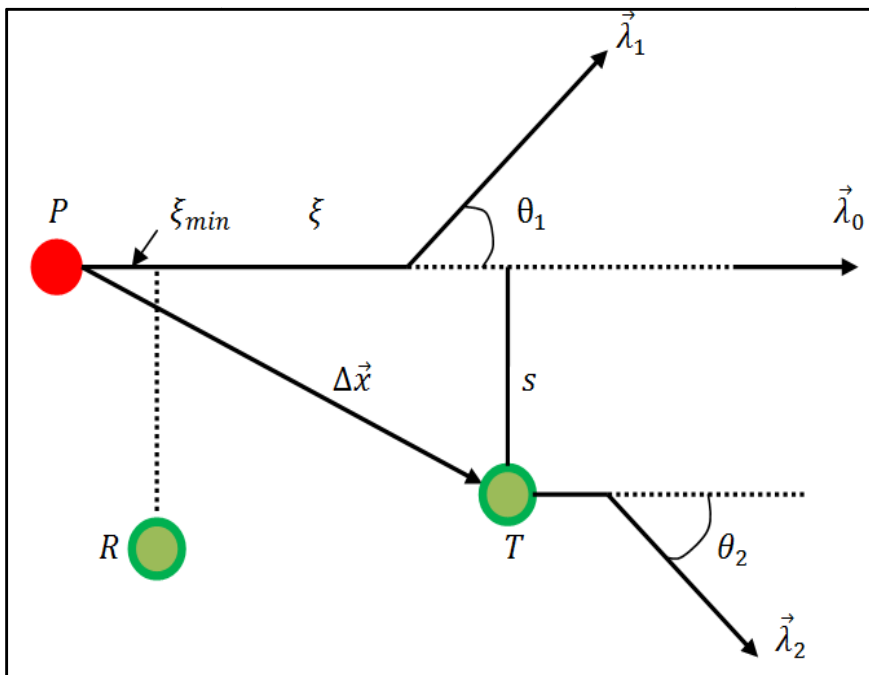


Figure III.2. Schéma montrant les bases de la procédure de recherche des cibles.

Chapitre III : Programme Marlowe

La direction du projectile après la collision est donnée par

$$\vec{\lambda}_1 = \left[\cos\theta_1 + \frac{\xi}{s} \sin\theta_1 \right] \vec{\lambda}_0 - \left[\frac{1}{s} \sin\theta_1 \right] \Delta\vec{x} \quad (3.3)$$

Le vecteur $\vec{\lambda}_2$ donne la direction de mouvement de l'atome cible

$$\vec{\lambda}_2 = \left[\cos\theta_2 - \frac{\xi}{s} \sin\theta_2 \right] \vec{\lambda}_0 + \left[\frac{1}{s} \sin\theta_2 \right] \Delta\vec{x} \quad (3.4)$$

La méthode de recherche d'un partenaire à la collision ainsi décrite est réitérée jusqu'à la fin de la cascade.

III.5-Potentiels

Le potentiel constitue un ingrédient important dans la simulation des cascades de déplacements dans les matériaux irradiés. Il présente une description de l'interaction entre les atomes en collision. Le package de Marlowe recèle six fonctions d'énergie potentielle. Si les valeurs des paramètres de ces potentiels sont omises par l'utilisateur, le programme en fournit des valeurs par défaut [21]. La structure de Marlowe rend possible la substitution de potentiel défini par l'utilisateur à la place des potentiels prédéfinis du programme.

III.5.1- Potentiel de Molière

L'approximation de Molière au potentiel de Thomas-Fermi est l'une des fonctions potentielles les plus utilisées l'étude des dommages dans les matériaux irradiés. C'est un potentiel coulombien écranté composé de trois termes en exponentiel. Il est donné par l'expression suivante [58]

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \sum_{i=1}^3 c_i e^{-(d_i r / a_M)} . \quad (3.5)$$

Les coefficients c_i et d_i sont donnés par $c_i = (0.35, 0.55, 0.1)$ et $d_i = (0.3, 1.2, 6.0)$. Sous forme explicite, il s'écrit

Chapitre III : Programme Marlowe

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \left[0.35 e^{-\left(0.3 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.55 e^{-\left(1.2 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.1 e^{-\left(6.0 \frac{r}{a_M}\right)} \right]. \quad (3.6)$$

Le paramètre d'écrantage utilisé habituellement pour cette fonction est celui de Firsov

$$a_M = \frac{0.88534 a_B}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}} \text{ \AA} . \quad (3.7)$$

III.5.2- Potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark

Ce potentiel suggéré par Ziegler, Biersack et Littmark est un potentiel moyen formulé après l'étude de potentiels interatomiques d'une large gamme de paires d'atomes (522 paires d'atomes). Il est dit potentiel universel ou potentiel ZBL. Il est composé de quatre termes en exponentiel. L'expression de ce potentiel est [42]

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r / a_{ZBL})} . \quad (3.8)$$

Les valeurs des coefficients c_i et d_i sont $c_i = (0.028171, 0.28022, 0.50986, 0.18175)$ et $d_i = (0.20162, 0.4029, 0.94229, 3.1998)$. Le rayon d'écran, a_{ZBL} , est calculé de la relation

$$a_{ZBL} = \left(\frac{9 \pi^2}{128} \right)^{1/3} \frac{a_B}{Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23}} . \quad (3.9)$$

III.5.3- Potentiel moyen modifié de Lenz-Jensen

Ce potentiel est développé par Nakagawa et Yamamura par des calculs similaire à ceux du potentiel ZBL avec des corrections relativistes. Il est utilisé extensivement dans la simulation des effets d'irradiation dans les matériaux au même titre que les potentiels de Molière et ZBL. Il est donné par [21, 59, 60]

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2}{r} e^{-\alpha_1 \left(\frac{r}{a_{AMLJ}} \right) + \alpha_2 \left(\frac{r}{a_{AMLJ}} \right)^{3/2} - \alpha_3 \left(\frac{r}{a_{AMLJ}} \right)^2} , \quad (3.10)$$

Chapitre III : Programme Marlowe

où les paramètres α_1 , α_2 et α_3 dépendent des numéros atomiques des deux atomes en interaction.

Ils sont évalués à partir des expressions

$$\begin{cases} \alpha_1 = 1.51 \\ \alpha_2 = 0.763 \left(\frac{Z_1^{0.169} + Z_2^{0.169}}{Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307}} \right) \\ \alpha_3 = 0.191 \left(\frac{Z_1^{0.0418} + Z_2^{0.0418}}{Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307}} \right)^{4/3} \end{cases} . \quad (3.11)$$

Le paramètre d'écran est estimé dans le programme de la formule

$$a_{AMLJ} = \frac{0.8853 a_B}{(Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307})^{2/3}} \quad (3.12)$$

III.5.4 Potentiel de Born–Mayer

C'est un potentiel répulsif sous forme exponentielle. Il s'écrit [40]

$$V(r) = A_{BM} e^{-r/a_{BM}} , \quad (3.13)$$

où A_{BM} est un paramètre qui a la dimension d'une énergie et a_{BM} et le paramètre d'écran. Les valeurs de ces paramètres peuvent être évaluées à partir des propriétés à l'équilibre du solide. Les valeurs les plus utilisées des paramètres du potentiel de Born-Mayer sont celles établies par Andersen et Sigmund [61]

$$\begin{cases} A_{BM} = 52 (Z_1 Z_2)^{3/4} eV \\ a_{BM} = 0.219 \text{ \AA} \end{cases} . \quad (3.14)$$

III.5.5- Potentiel de Morse

Ce potentiel proposé par Morse est constitué de deux fonctions exponentielles [21, 62]

$$V(r) = D e^{-2\alpha(r-r_0)} - 2D e^{-\alpha(r-r_0)} . \quad (3.15)$$

Le premier terme décrit un caractère répulsif. Le deuxième terme domine pour des distances de séparation entre les deux atomes larges. Le paramètre D mesuré en eV désigne la profondeur du puits et α contrôle sa largeur. Le potentiel prend sa valeur minimale pour $r = r_0$. Le potentiel

Chapitre III : Programme Marlowe

devient répulsif à $r = r_0 - \ln 2/\alpha$. Les valeurs des paramètres du potentiel de Morse pour nombreux matériaux sont données par Girifalco [63] et Harrison [64].

III.6- Angle de diffusion et intégrale du temps

L'angle de diffusion dans le système du centre de masse et l'intégrale du temps sont calculés par des méthodes numériques. Si on effectue le changement de variable $r = R/X$, alors les deux intégrales (2.41) et (2.42) s'écrivent [21, 40]

$$\vartheta = \pi - \frac{2s}{R} \int_0^1 \frac{K(X)}{\sqrt{1-X^2}} dX, \quad (3.16)$$

et

$$\tau = \sqrt{R^2 - s^2} - R \int_0^1 \frac{[K(X) - J(X)]}{X^2 \sqrt{1-X^2}} dX, \quad (3.17)$$

avec

$$K(X) = \frac{\sqrt{1-X^2}}{\sqrt{1 - \frac{s^2 X^2}{R^2} - \frac{V(R/X)}{E_r}}}, \quad (3.18)$$

et

$$J(u) = \frac{\sqrt{1-X^2}}{\sqrt{1 - \frac{s^2 X^2}{R^2}}}. \quad (3.19)$$

Les intégrales dans (3.16) et (3.17) sont approchées par la quadrature de Gauss-Mehler suivante

$$\int_{-1}^1 \frac{f(x)}{\sqrt{1-x^2}} dx = \sum_{i=1}^n b_i f(\alpha_i), \quad (3.20)$$

où les poids w_i et les abscisses a_i sont donnés par les relations

$$\begin{cases} \alpha_i = \cos\left(\frac{2i-1}{2n} \pi\right) \\ b_i = \frac{\pi}{n} \end{cases}. \quad (3.21)$$

Le nombre de points de la quadrature qui est par défaut dans Marlowe $n = 4$ peut être augmenté pour avoir plus de précision dans le calcul de la quadrature.

III.7-Energie inélastique perdue

La perte d'énergie inélastique d'un projectile est scindée en deux parties locale et non-locale. Dans la partie non-local, la perte d'énergie est fonction de l'énergie cinétique du projectile, E , et indépendante du paramètre d'impact. Cette partie est évaluée, dans Marlowe, à partir de la théorie LSS [65, 66]. Son expression est donnée par [21]

$$-\frac{dE}{dx} = k\sqrt{E}, \quad (3.22)$$

avec

$$k = 8\pi\sqrt{2}a_B\hbar \frac{Z_1^{7/6}Z_2}{(Z_1^{2/3}+Z_2^{2/3})^{3/2}} \frac{1}{\sqrt{m_1}}. \quad (3.23)$$

Dans la partie locale, la perte d'énergie inélastique est caractérisée par sa dépendance de l'énergie du projectile et de la distance de séparation entre le projectile et l'atome cible. Marlowe propose deux modèles pour évaluer cette partie : le modèle de Firsov amélioré par Robinson-Torrens [33] et le modèle de Oen-Robinson [67]. Pour la première approche, la perte d'énergie dans une seule collision se calcule de l'expression [21, 40]

$$Q_F(s, E) = \frac{\alpha_{12}\sqrt{E}}{[1+\beta_{12}R(s, E)]^5} [eV], \quad (3.24)$$

avec

$$\alpha_{12} = 0.61 \left(\frac{2\hbar}{\pi a_B}\right) \left(\frac{2}{m_1}\right)^{1/2} \left(\frac{9\pi^2}{128}\right)^{1/3} (Z_1 + Z_2)^{1/3} [eV^{1/2}], \quad (3.25)$$

et

$$\beta_{12} = \left(\frac{0.285}{2a_B}\right) \left(\frac{128}{9\pi^2}\right)^{1/3} (Z_1 + Z_2)^{1/3} [\text{\AA}^{-1}], \quad (3.26)$$

La validité de la relation (3.24) est contrôlée par la condition $E < (e^4/2\hbar^2)m_1Z_1^{4/3} = 24.97 m_1Z_1^{4/3} [keV]$.

Chapitre III : Programme Marlowe

Pour la deuxième approche, la dépendance à R est en exponentielle [40]

$$Q_{OR}(s, E) = k\sqrt{E} \left(\frac{\gamma^2}{2\pi a_M^2} \right) e^{-\frac{\gamma R(s,E)}{a_M}}, \quad (3.27)$$

a_M étant le rayon d'écran du potentiel utilisé et le paramètre γ est égal à 0.3.

III.8- Vibrations thermiques

Marlowe peut tenir compte des effets de la température sur le réseau en permettant le déplacement des atomes autour de leurs positions d'équilibres. Les déplacements sont effectués le long des trois axes du système de coordonnées. Ils sont non corrélés et choisis aléatoirement suivant une distribution gaussienne [21]. Selon cette distribution, la probabilité pour qu'un atome soit à une distance u dans un intervalle du de sa position d'équilibre se calcule de [40]

$$P(u) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2}u^2}. \quad (3.28)$$

La largeur de la distribution peut être donnée par l'utilisateur ou laisser Marlowe l'évaluer en se basant sur le modèle de Debye [89]. Dans ce modèle, la moyenne des carrés des déplacements dans la direction i se calcule de la relation [57]

$$\langle u_i^2 \rangle = \frac{3 \hbar^2}{m_2 K_B T_D} \left[\frac{T^2}{T_D^2} \int_0^{T_D/T} \frac{x dx}{e^x - 1} + \frac{1}{4} \right], \quad (3.29)$$

K_B étant la constante de Boltzmann et $\hbar = h/2\pi$ avec h la constante de Planck. L'intégrale dans (3.29) est estimée, dans Marlowe, numériquement en utilisant des formes en séries [68].

III.9- Dynamique de la collision binaire

Un projectile d'énergie cinétique initiale E_0 qui transfère une énergie T à l'atome cible il sort de la collision avec une énergie E_1 égale à

$$E_1 = E_0 - T - Q, \quad (3.30)$$

Chapitre III : Programme Marlowe

Q étant l'énergie inélastique perdue. Le potentiel interatomique étant choisi, l'angle de diffusion dans le système de centre de masse (2.41) et l'intégrale du temps (2.42) sont calculés par la quadrature de Gauss-Mehler présentée précédemment. Les angles de diffusion des deux atomes en collision dans le système (L) ainsi que les abscisses de collision x_1 et x_2 sont ensuite évalués à partir des relations (2.25), (2.26), (2.43) et (2.44). L'énergie cinétique de l'atome cible est $E_2 = T - E_b$ où E_b est l'énergie de liaison. Dans le cas du déplacement d'un atome de réseau, la valeur de E_b , dans les simulations par Marlowe, est généralement prise égale à l'énergie de cohésion du matériau. Dans le cas d'un remplacement, la valeur de E_b est de quelques dixièmes d'électron-volt. L'énergie de coupure, E_c , est prise égale à l'énergie de cohésion [21, 69-72].

III.10- Les défauts produits

À la fin d'une cascade de déplacement Marlowe regroupe les interstitiels et les lacunes en paires. Pour se faire, il cherche la plus courte distance de séparation interstitiel-lacune dans la cascade, puis la distance suivante et ainsi de suite jusqu'à ce que tous les interstitiels et les lacunes soient appariés. Seules les paires dont la distance de séparation est supérieure au rayon de recombinaison sont considérées comme étant stables. Lorsque l'interstitiel est éjecté du site avec lequel est apparié, la paire est dite corrélée, autrement, elle est dite non-corrélée [21, 56].

Chapitre IV

Résultats et Discussions

Chapitre IV : Résultats et Discussions

IV.1-Introduction

Nous présentons dans ce chapitre les résultats de simulations de l'irradiation du pentoxyde de tantale. Nous avons examiné l'évolution temporelle de la cascade de déplacements en étudiant la variation du nombre d'atomes en mouvement et du nombre d'atomes déplacés en fonction du temps. Les résultats de l'étude de la fonction de distribution du nombre de paires de Frenkel en fonction de la distance de séparation lacune-interstitiel et du volume de la cascade sont donnés.

IV.2-Paramètres de simulation

Dans nos simulations, des échantillons de 1000 cascades ont été générés. Le matériau qui le pentoxyde du tantale est considéré de dimensions infinies et l'irradiation est interne. Les primaires qui sont choisis d'être des atomes de tantale sont lancés avec une énergie cinétique de 20 keV. La direction des primaires est distribuée isotropiquement dans tout l'espace.

Pour les énergies de liaison, lorsqu'il s'agit du déplacement d'un atome de son site, l'énergie que doit surmonter l'atome est égale à l'énergie de cohésion du matériau $E_b = 7.41 \text{ eV}$ [73]. Dans un événement de remplacement, l'énergie de liaison de l'atome heurté est prise égale à $E'_b = 0.2 \text{ eV}$ comme c'est le cas dans les simulations d'irradiation par Marlowe [21, 69-71, 74-78]. Lorsque l'atome cible est un atome qui était déjà éjecté et se trouve arrêté au moment de la collision, alors l'énergie de liaison associée à cet événement de redéplacement est nulle $E''_b = 0.0 \text{ eV}$. L'énergie de coupure au dessous de laquelle un atome est considéré comme arrêté est $E_c = E_b$.

Le pentoxyde de tantale est un composé dont la structure cristalline était sujet de débat pendant plusieurs années [15-17, 79, 80]. Il est bien établi expérimentalement qu'il cristallise dans différentes structure dépendamment des conditions reliées à la pression et la température. À la température ambiante, la structure du pentoxyde de tantale est orthorhombique avec des paramètres

Chapitre IV : Résultats et Discussions

de maille $a=6.425 \text{ \AA}$, $b=3.769 \text{ \AA}$ and $c=7.706 \text{ \AA}$ [15]. Les positions des atomes du tantale et de l'oxygène sont données par Hollerweger et al [15] (voir tableau IV.1).

Tableau IV.1. Positions des atomes du pentoxyde de tantale Réf [15].

Ion	x	y	z
Ta	0.00	0.00	0.00
Ta	0.45	0.41	0.00
Ta	0.00	0.91	0.50
Ta	0.45	0.50	0.50
O	0.98	0.95	0.25
O	0.46	0.45	0.25
O	0.11	0.47	0.00
O	0.34	0.94	0.00
O	0.72	0.20	0.00
O	0.98	0.95	0.75
O	0.47	0.45	0.75
O	0.11	0.44	0.50
O	0.34	0.97	0.50
O	0.72	0.70	0.50

Les calculs sont faits pour une température du cristal de 300 K. Les vibrations thermiques des atomes du réseau sont décrites par le modèle de Debye [57] avec des températures de Debye 225 K et 500 K pour le tantale et l'oxygène respectivement [81]. Les collisions avec un paramètre d'impact maximal de $0.45 a$ sont évaluées.

Les potentiels interatomiques utilisés pour modéliser les interactions entre les atomes en collision sont l'approximation de Molière au potentiel de Thomas-Fermi et le potentiel de Coulomb écranté dit potentiel universel ZBL. L'expression du potentiel de Molière est donnée par (3.6) avec un paramètre d'écran estimé de la relation de Firsov donnée par (3.7). Les valeurs de ce paramètre pour les différentes interactions possibles dans le matériau étudié sont rapportées au tableau IV.2.

Tableau IV.2. Le paramètre d'écran du potentiel de Molière pour les différentes interactions entre les atomes de Ta_2O_5 .

Interaction	Ta-Ta	Ta-O	O-O
$a_M(\text{\AA})$	0.706170E-01	0.926406E-01	0.147566

Chapitre IV : Résultats et Discussions

L'expression du potentiel ZBL est donnée par (3.8) et son paramètre d'écran a_{ZBL} par (3.9). Le tableau IV.3 résume les valeurs trouvées pour les différentes interactions dans Ta₂O₅.

Tableau IV.3. Le paramètre d'écran du potentiel ZBL pour les différentes interactions entre les atomes de Ta₂O₅.

Interaction	Ta-Ta	Ta-O	O-O
$a_{ZBL}(\text{Å})$	0.873191E-01	0.109055	0.145199

Pour la perte d'énergie due à l'excitation électronique, la partie locale basée sur la théorie LSS est évaluée. Puisque le matériau est diatomique, nous avons imposé dans le processus d'appariement que l'interstitiel et le site vacant soient de type approprié. Toutes les paires de Frenkel dont la distance de séparation interstitiel-lacune est inférieure ou égale à la distance des deuxièmes proches voisins sont considérées comme instables et ne sont pas comptées parmi les défauts permanents.

IV.3-Atomes en mouvement

La figure IV.1 illustre la variation du nombre moyen d'atomes en mouvement de tantale et d'oxygène en fonction du temps pour l'énergie du primaire de 20 keV, pour les potentiels de Molière et ZBL. Les résultats des simulations sont donnés dans le tableau IV.4.

Dans Marlowe, les trajectoires des atomes en mouvement sont suivis jusqu'à ce que leur énergie cinétique devient inférieure à l'énergie de coupure E_c . Par la suite ils sont considérés comme arrêtés. Au début du développement de la cascade, les atomes de reculs sont énergétiques et mettent en mouvement d'autres atomes du réseau ou des atomes de cascade arrêtés. Ceci entraîne une augmentation du nombre d'atomes en mouvement des deux types d'atomes le tantale et l'oxygène. Ce nombre atteint son maximum à environ 120 fs et 140 fs pour les atomes d'oxygène et

Chapitre IV : Résultats et Discussions

de tantale respectivement. L'augmentation rapide du nombre d'atomes d'oxygène mobiles par rapport à celui du tantale peut être attribuée à l'abondance des atomes d'oxygène dans le matériau et à la facilité de déplacer les atomes d'oxygène qui sont légers par rapport à ceux du tantale. À long terme, l'énergie cinétique des atomes mobiles s'affaiblit étant dissipée dans des collisions générant de nouveaux atomes de reculs et dans l'excitation du système électronique. Par conséquent, le nombre d'atomes en mouvement diminue rapidement. L'abondance et la mobilité des atomes d'oxygène leur permettent de subir un plus grand nombre de collisions et de perdre beaucoup plus d'énergie inélastique que ceux du tantale. Nos simulations montrent que pour les deux modèles de potentiels considérés, les atomes d'oxygène sont impliqués dans environ 79% du nombre total de collisions dans la cascade et la perte d'énergie inélastique pour ce type d'atomes est plus grande que celle du tantale. En conséquence, le nombre d'atomes d'oxygène en mouvement diminue plus rapidement que celui des atomes de tantale. Il est à noter que le temps d'expansion de la cascade est de l'ordre de quelques dixièmes de picoseconde [21].

Chapitre IV : Résultats et Discussions

Tableau IV.4. Nombre d'atomes en mouvement en fonction du temps dans le pentoxyde de tantale pour l'énergie du primaire de 20 keV.

t (fs)	Ta(Molière)	O(Molière)	Ta(ZBL)	O(ZBL)
0	0	0	0	0
20	4.68	11.124	4.417	9.143
40	12.319	35.517	11.522	28.617
60	22.575	67.104	21.442	55.789
80	33.098	92.854	32.233	83.147
100	41.569	102.751	41.47	102.441
120	46.507	95.273	47.283	108.613
140	47.817	75.593	48.741	100.099
160	46.066	53.199	46.292	82.214
180	42.028	33.748	41.096	60.486
200	36.933	19.904	34.423	41.052
220	31.055	11.073	26.955	25.331
240	25.064	6.155	19.982	14.763
260	19.592	3.423	13.974	8.186
280	14.624	2.007	9.182	4.546
300	10.466	1.156	5.778	2.508
320	7.304	0.745	3.584	1.441
340	4.965	0.498	2.156	0.927
360	3.232	0.309	1.28	0.574
380	2.08	0.215	0.769	0.362
400	1.351	0.154	0.467	0.232
420	0.857	0.115	0.296	0.169
440	0.551	0.096	0.189	0.137
460	0.365	0.07	0.13	0.122
480	0.252	0.059	0.084	0.095
500	0.182	0.052	0.051	0.089
520	0.124	0.045	0.039	0.085
540	0.095	0.037	0.034	0.08
560	0.069	0.035	0.023	0.074
580	0.056	0.035	0.015	0.075
600	0.042	0.029	0.013	0.074

Chapitre IV : Résultats et Discussions

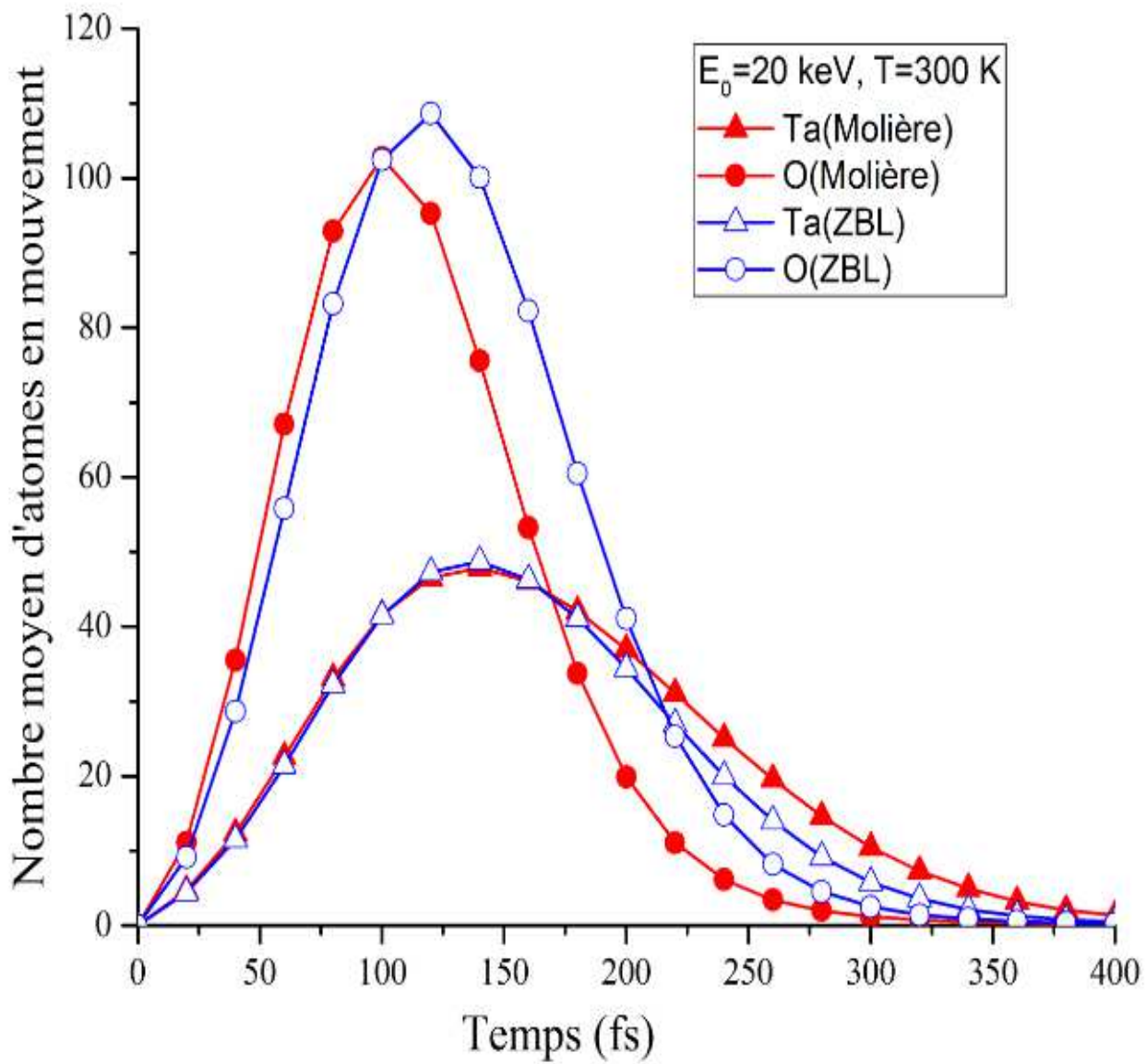


Figure IV.1. Nombre moyen d'atomes en mouvement en fonction du temps dans le pentoxyde de tantale dans une cascade de 20 keV.

IV.4-Nombre de déplacements

L'estimation du nombre d'atomes déplacés est une tâche incontournable dans l'étude des dégâts occasionnés par l'irradiation des matériaux vu qu'une fraction de ces atomes formera des défauts permanents. La figure IV.2 représente le nombre moyen d'atomes de tantale et d'oxygène déplacés, $\langle N_d \rangle$, en fonction du temps pour une énergie du primaire de 20 keV pour les potentiels de Molière et ZBL. Les premiers instants de la cascade de déplacements sont caractérisés par le nombre très faible des atomes arrêtés de la cascade. C'est pour cette raison que les collisions avec les atomes du réseau constituent les événements dominants et provoquent l'augmentation de $\langle N_d \rangle$ avec le temps. Cette tendance se maintiendra tant que les atomes de recul ont suffisamment d'énergie pour déloger d'autres atomes du réseau de leurs sites. Lorsque les atomes mobiles ne seront plus en mesure de transmettre aux atomes du réseau une énergie supérieure à l'énergie de liaison E_b , aucun nouveau déplacement ne sera produit et $\langle N_d \rangle$ restera constant (voir figure IV.3). À la fin de la cascade, nous remarquons un déficit significatif des atomes de tantale déplacés parmi le nombre total de déplacements. Le nombre moyen d'atomes d'oxygène déplacés est environ 2.5 fois plus élevé que celui du tantale pour le potentiel ZBL alors qu'il est d'environ 3 fois plus élevé pour un modèle avec le potentiel de Molière [21].

Chapitre IV : Résultats et Discussions

Tableau IV.5. Nombre total d'atomes déplacés de tantale et d'oxygène en fonction du temps pour une énergie du primaire de 20 keV.

t(fs)	Ta(Molière)	O (Molière)	Ta(ZBL)	O(ZBL)
0	0	0	0	0
20	5.072	11.463	4.777	9.352
40	13.891	39.277	13.059	30.495
60	26.217	82.762	25.015	63.366
80	39.61	134.385	39.286	103.885
100	52.063	184.499	53.982	146.007
120	62.472	225.967	67.149	184.204
140	70.509	256.02	77.9	214.253
160	76.398	275.666	86.038	235.603
180	80.517	287.603	91.956	249.406
200	83.54	294.565	95.871	257.839
220	85.526	298.516	98.401	262.652
240	86.748	300.811	99.876	265.242
260	87.485	302.115	100.745	266.624
280	87.917	302.873	101.202	267.395
300	88.151	303.294	101.428	267.832
320	88.293	303.58	101.556	268.097
340	88.364	303.769	101.63	268.254
360	88.399	303.868	101.678	268.336
380	88.419	303.962	101.701	268.384
400	88.431	304.012	101.715	268.418
420	88.438	304.045	101.723	268.445
440	88.448	304.071	101.731	268.458
460	88.45	304.094	101.735	268.478
480	88.454	304.108	101.736	268.488
500	88.457	304.121	101.736	268.494
520	88.458	304.13	101.737	268.501

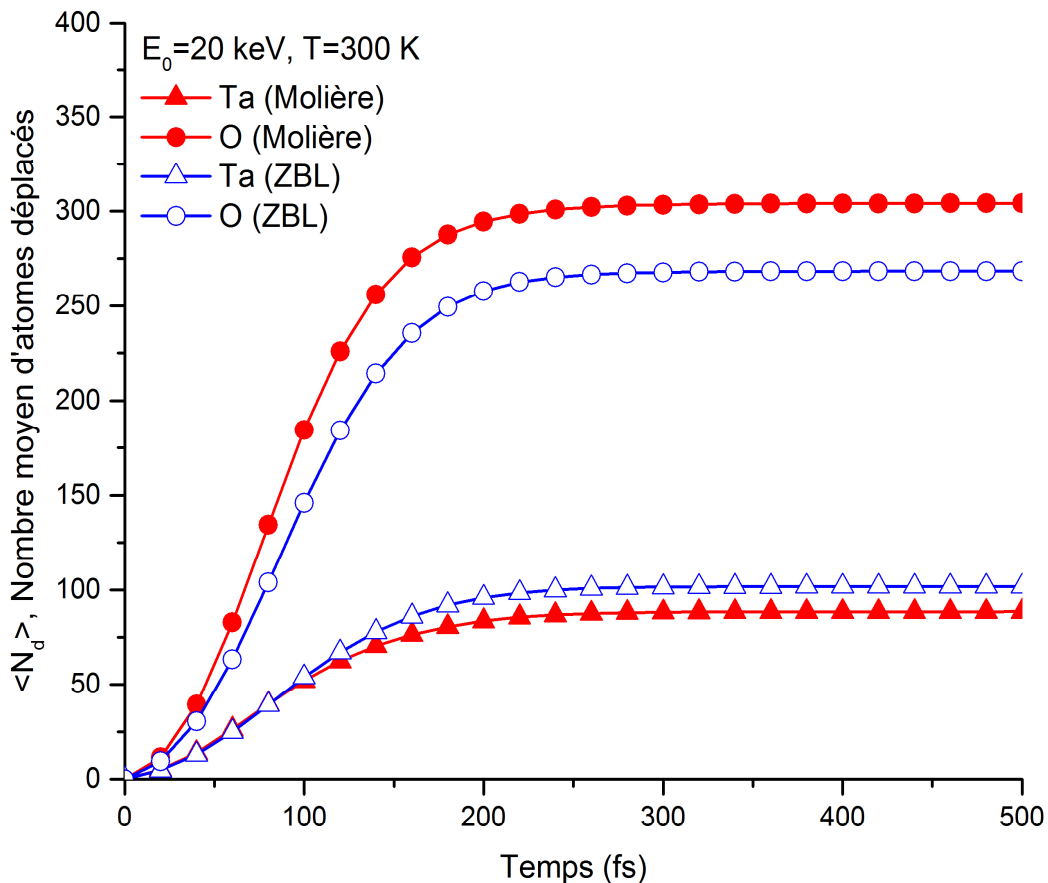


Figure IV.2. Nombre d'atomes déplacés en fonction du temps dans une cascade de déplacements de Ta_2O_5 de 20 keV.

IV.5-Défauts de Frenkel

Il est important dans l'étude des dommages induits par l'irradiation de connaître non seulement le nombre total de défauts ponctuels créés mais aussi leur distribution spatiale. Le nombre de paires de Frenkel permanentes dépend des positions relatives des lacunes et des interstitiels. Les atomes déplacés qui viennent s'immobiliser à proximité des lacunes se recombinent avec celles-ci spontanément. Le processus de recombinaison qui suit la phase balistique a pour conséquence que le nombre de défauts final est beaucoup plus petit que le nombre

Chapitre IV : Résultats et Discussions

de déplacements. Puisque Marlowe n'inclus aucune recombinaison activée thermiquement entre lacunes et interstitiels, nous utilisons la notion de volume de recombinaison. Dans cette méthode, largement appliquée à l'étude des dommages induits par irradiation dans de nombreux matériaux [13, 21, 39], on suppose qu'une paire de Frenkel reste stable si la distance de séparation interstitiel-lacune est plus grande qu'un rayon de recombinaison r_V .

Une étude pertinente des positions relatives des défauts ponctuels est faite en construisant la fonction de distribution des paires de Frenkel en fonction de la distance de séparation interstitiel-lacune, r_{VI} . Elle donne le nombre moyen de paires de Frenkel de séparation dépassant r_{VI} . Lorsque dans une paire l'atome interstitiel vient du site avec lequel est parié, la paire est dite corrélée, autrement elle dite non-corrélée. La figure IV.3 donne la distribution de telles paires dans Ta_2O_5 irradié avec un primaire de 20 keV.

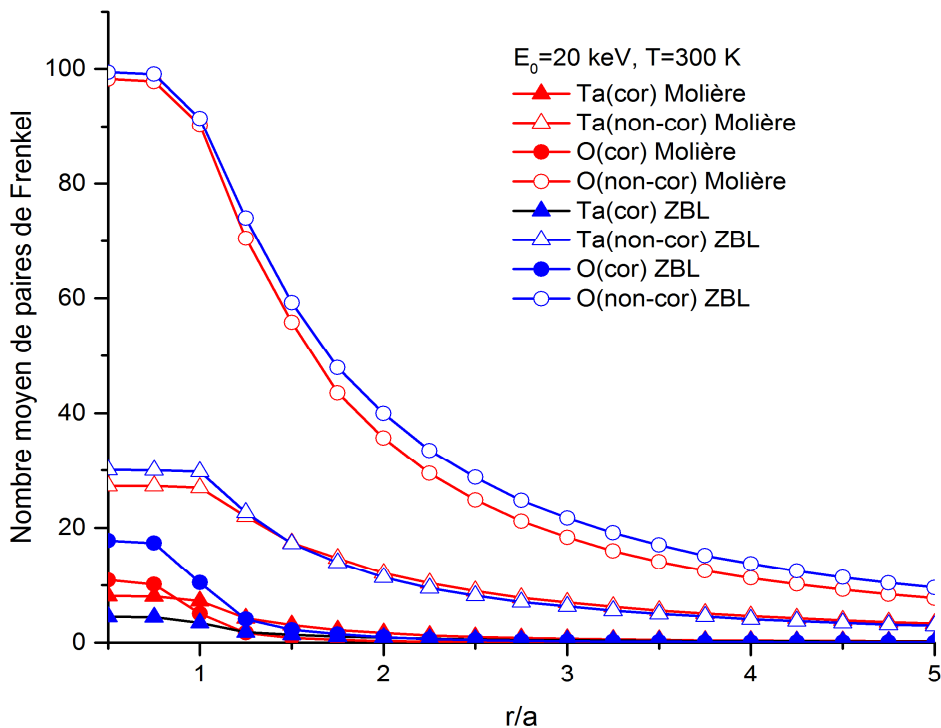


Figure IV.3. Distribution de paires de Frenkel corrélées et non-corrélées.

Chapitre IV : Résultats et Discussions

Il est clair des simulations que les paires de Frenkel non-corrélées constituent la majorité des défauts produits. Ceci signifie que les atomes déplacés du tantale et d'oxygène ne s'immobilisent pas au voisinage de leur site de départ. La fonction de distribution du nombre total de paires de Frenkel (corrélées et non-corrélées) est montrée à la figure IV.4 (voir aussi le tableau IV.6).

Tableau IV.6. Nombre total de PF en fonction de la distance de séparation interstitiel-lacune pour une cascade de 20 keV dans Ta₂O₅.

r/a	Ta (Molière)	O (Molière)	Ta (ZBL)	O (ZBL)
0.50	35.426	109.119	34.578	117.182
0.75	35.333	107.931	34.476	116.421
1.00	34.249	95.262	33.175	101.759
1.25	26.256	72.163	24.504	78.062
1.50	20.446	56.679	18.666	61.498
1.75	16.906	44.016	15.068	49.38
2.00	13.789	35.918	12.261	40.895
2.25	11.587	29.674	10.183	34.124
2.50	9.971	24.986	8.732	29.259
2.75	8.607	21.277	7.532	25.109
3.00	7.666	18.441	6.707	22.008
3.25	6.779	16.033	5.925	19.352
3.50	6.059	14.149	5.317	17.201
3.75	5.492	12.544	4.825	15.291
4.00	5.005	11.273	4.348	13.872
4.25	4.579	10.215	3.988	12.588
4.50	4.162	9.278	3.635	11.465
4.75	3.858	8.434	3.348	10.485
5.00	3.584	7.739	3.096	9.665
5.25	3.328	7.13	2.886	8.896
5.50	3.101	6.593	2.711	8.231
5.75	2.914	6.06	2.522	7.637
6.00	2.735	5.617	2.366	7.073

La première chose à noter est que même avec de faibles valeurs de la distance de séparation interstitiel-lacune, un grand nombre de défauts sont éliminés. Ceci indique que la plupart des atomes déplacés s'immobilisent non loin des sites vacants. Le rapport du nombre de paires de Frenkel stables au nombre total d'atomes déplacés est nettement différent pour les deux types

Chapitre IV : Résultats et Discussions

d'atomes. Pour une distance de séparation quelconque, il y a toujours plus de paires de Frenkel d'oxygène que du tantale. Avec r_V égal à la distance des seconds proches voisins, 39% des atomes déplacés de tantale constituent des paires de Frenkel permanentes alors que ce rapport est d'environ 45% pour les atomes d'oxygène avec le potentiel ZBL. Dans un modèle avec le potentiel de Molière, les rapports sont respectivement 46% et 38% pour les atomes Ta et O. Pour tous les potentiels utilisés, le nombre moyen de paires de Frenkel d'oxygène est approximativement 3 fois plus grand que celui du tantale qui est d'environ 35 [21].

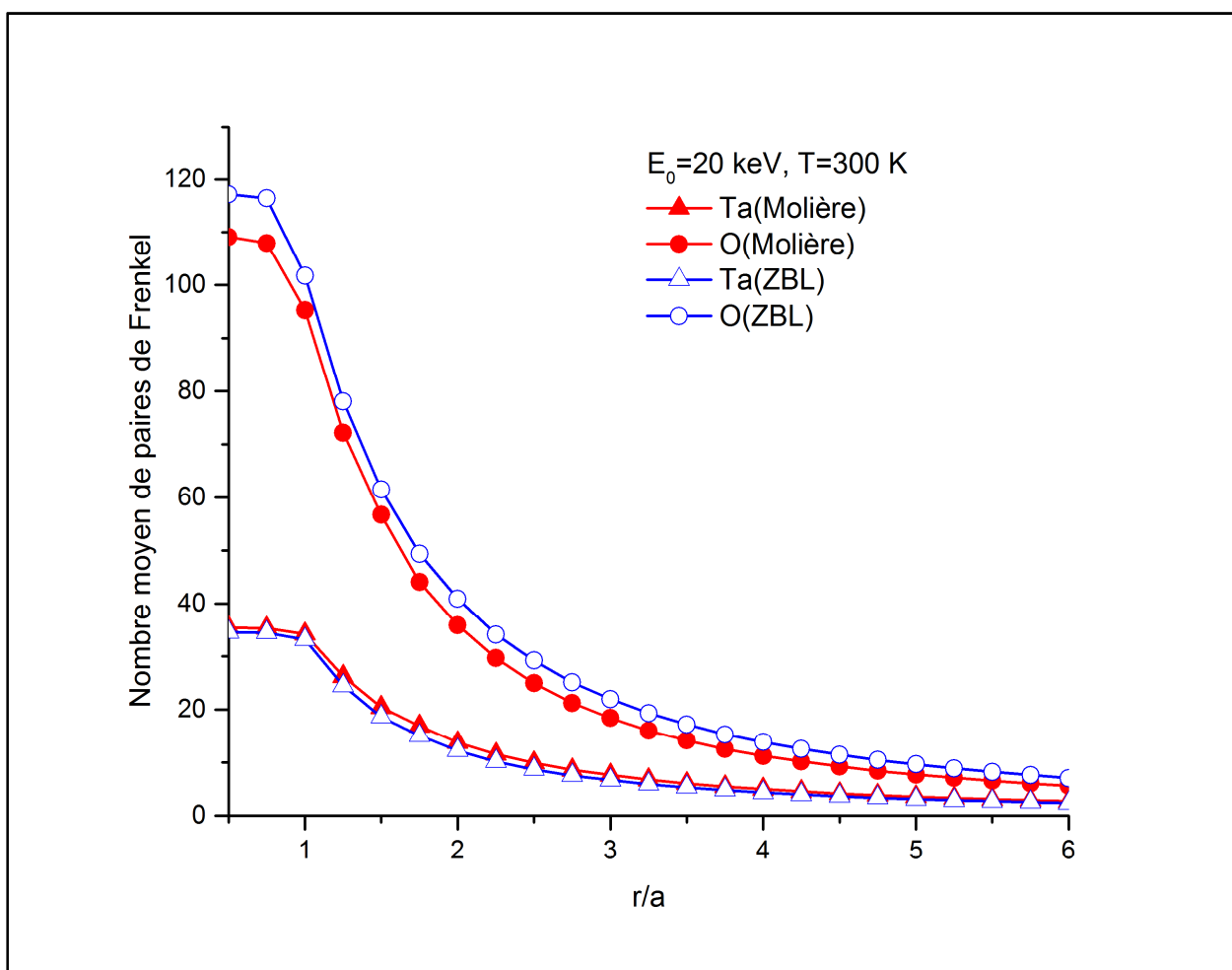


Figure IV.4. Nombre total de paires de Frenkel en fonction de la distance de séparation interstitiel-lacune.

Il est connu que les séquences de collision de remplacement (RCS) peuvent contribuer de façon significative à la production de dommages en transportant des atomes à de grandes distances des sites dont ils sont issus. Les RCS sont favorisés à basse énergie dans des matériaux à structure

Chapitre IV : Résultats et Discussions

cristalline ordonnée et ont tendance à se développer suivant des directions cristallographiques à faible indice. Leur nombre moyen et leurs longueurs sont déterminants dans cette contribution. Nos calculs montrent que les longueurs des RCS dans le pentoxyde de tantale sont extrêmement courtes. En effet, les séquences de remplacement de longueur trois constituent seulement 1.4% et 1.5% du nombre total de RCS générés pour les potentiels ZBL et Molière respectivement. Il ressort de ces résultats que les RCS sont très vite coupées dans les cascades de déplacements pour qu'elles puissent influencer la création de défauts dans le Ta₂O₅ [21].

IV.6-Distributions de Volumes

Pour estimer l'étendu des dégâts induits par irradiation de Ta₂O₅, nous considérons que les défauts ponctuels générés forment un nuage de points dans l'espace tridimensionnel. Nous utilisons la méthode statistique d'analyse en composantes principales [40, 82] pour estimer les dimensions et le volume de la cascade. Cette méthode permet d'associer à chaque cascade de déplacements un ellipsoïde dont les directions des axes principaux sont données par les vecteurs propres u_1 , u_2 et u_3 d'une matrice, M , proportionnelle à la matrice des covariances centrée construite à partir des positions des défauts ponctuels dans l'espace. Le vecteur propre u_1 est associé à la plus grande valeur propre de M et u_3 à la plus petite. Les valeurs propres de M sont les variances de la distribution des points le long des axes principaux et leurs racines carrées, représentent les longueurs des demi-axes. Le volume de l'ellipsoïde qui représente le volume de la cascade peut être, facilement, calculé à partir des valeurs propres. L'utilisation de cette procédure pour chaque cascade permet de construire une distribution des volumes [21].

La figure IV.5 illustre les distributions de volumes des cascades de déplacements obtenues avec des primaires d'énergie de 20 keV. Pour examiner la forme des distributions de volumes, nous avons calculé l'asymétrie, s , et le coefficient d'aplatissement, k [83]. Pour le potentiel ZBL, nous avons trouvé $s = 2.9$ et $k = 19.08$, alors qu'avec le potentiel de Molière nous avons trouvé $s = 4.19$ et $k = 39.1$. Le coefficient de variation qui décrit la dispersion a pour valeurs 49,11 % et 48.18 %

Chapitre IV : Résultats et Discussions

pour les potentiels ZBL et Molière respectivement [21]. Ces valeurs montrent que les distributions de volumes s'écartent nettement d'une distribution gaussienne montrant un degré de variabilité élevé entre les cascades individuelles. Les distributions sont asymétriques avec des queues étirées vers les volumes les plus élevés. Nos résultats montrent également que l'étendue spatiale des dégâts est faiblement influencée par le modèle du potentiel. Le volume moyen et le volume le plus probable ont des valeurs proches pour les deux potentiels. Les cascades de déplacements dans Ta_2O_5 semblent avoir des caractéristiques différentes de celles produites dans les métaux [21, 77, 84]. Dans ces derniers cas, il existe une forte dépendance du volume de la cascade au potentiel interatomique utilisé.

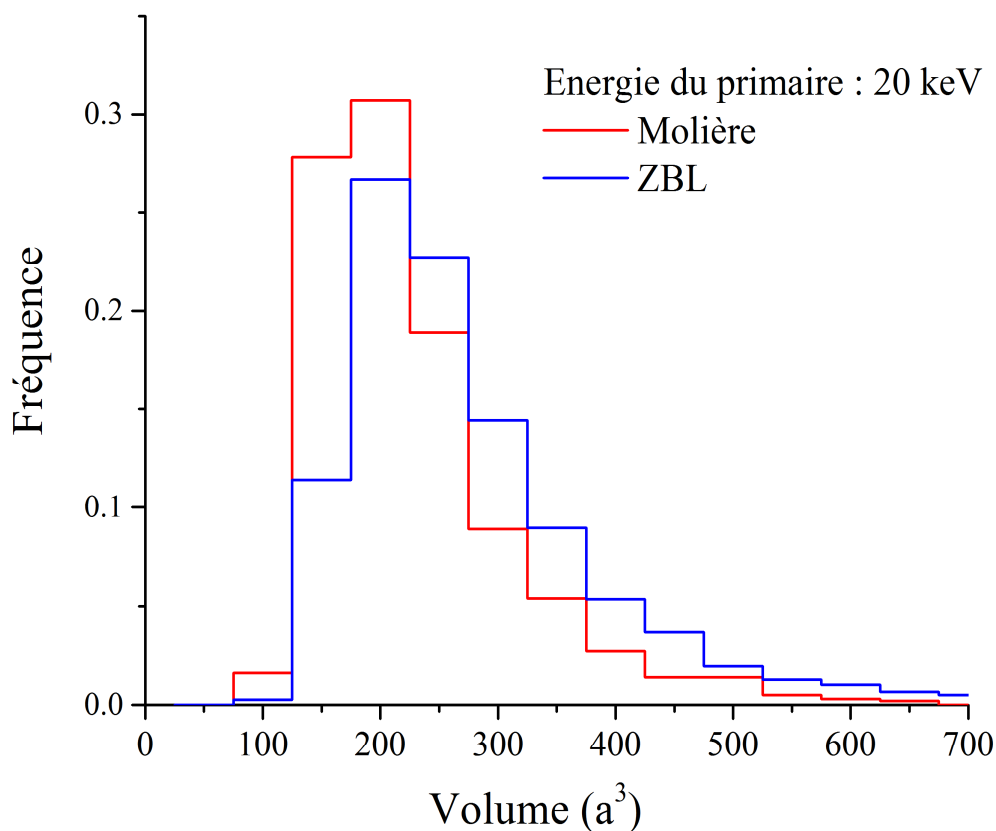


Figure IV.5. Distributions des volumes dans Ta_2O_5 irradié. Les primaires ont une énergie de 20 keV.

Conclusion Générale

Conclusion Générale

Dans cette étude, nous avons simulé des cascades de déplacements dans le pentoxyde de tantale qui est un matériau doté d'intéressantes propriétés physiques et chimiques qui font de lui un matériau de choix pour des applications variées en industrie et en technologie de pointe. La simulation a été faite en utilisant le code Marlowe basé sur l'approximation des collisions binaires. Les interactions entre les atomes de la cascade ont été modélisées par les potentiels de Molière et le potentiel universel de Ziegler-Biersack-Littmark. Tout d'abord, nous avons examiné le développement temporel des cascades en étudiant le nombre d'atomes en mouvement en fonction du temps. Puis dans le but d'estimer le nombre de paires de Frenkel produits, nous avons calculé le nombre d'atomes déplacés dans les cascades initiées par un primaire de 20 keV. Ensuite, nous avons étudié la distribution spatiale des paires de Frenkel en fonction de la distance de séparation interstitiel-lacune. Enfin, nous avons essayé d'évaluer le volume de la zone endommagée dans le matériau irradié.

Nos résultats montrent clairement que le nombre de paires de Frenkel de l'oxygène est approximativement 3 fois plus grand que celui du tantale. La configuration spatiale des défauts indique que la plupart des atomes déplacés s'immobilisent au voisinage des sites vacants du même type. Les distributions des volumes, pour les deux potentiels, sont asymétriques et ont tendances à s'étaler vers les valeurs élevées des volumes. Les distributions montrent une haute variabilité. La structure cristalline à basse symétrie du matériau, ne favorise pas le développement des séquences de remplacement et le développement des cascades volumineuses. Les potentiels interatomiques influencent peu les différentes caractéristiques étudiées des cascades.

Nous espérons que cette étude a contribué à la compréhension de la formation des dommages induits par irradiation du pentoxyde. Pour progresser d'avantage dans ce champ de

Conclusion Générale

travail, il serait intéressant d'étudier l'évolution des défauts générés en des cavités et dislocations et voir leur effets sur le matériau.

Bibliographie

Références

- [1] M. T. Robinson, *Radiation Induced Voids in Metals*, edited by J. W. Corbett, U. S. Atomic Energy Commission, CONF-710601 (U. S.GPO, Washington, DC.),1972 .
- [2] Y. Piccin, *Durcissement par conception d'ASIC analogiques*, Thèse de Doctorat, Université de Bordeaux, France, 2014.
- [3] R. Durand, *Modélisation des effets de dose dans les circuits intégrés en environnement spatial*, Thèse de Doctorat, Université de Toulouse, France, 2007.
- [4] V.A. Ivchenko, *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.* **110**, 012003 (2016).
- [5] A. Bhandari, M.K. Agarwal, A.S. Kandari, V. Lingwal, N.S. Panwar, *IJIRST-Int. J. Innov. Res. Sci. Technol* **1**, 102 (2015).
- [6] C. Lu, K. Jin, L.K. Béland, F. Zhang, T. Yang, L. Qiao, Y. Zhang, H. Bei, H.M. Christen, R.E. Stoller, L. Wang, *Sci. Rep.* **6**, 19994 (2016).
- [7] S. Park, Y. Baek, J. Lee, C. Park, H. Im, *J. Electron. Mater* **21**, 635 (1992).
- [8] E. Atanassova, D. Spasov, *Microelectron. Reliab.* **42**, 1171 (2002).
- [9] C. Chaneliere, J.L. Autran, R.A.B. Devine, B. Balland, *Mater. Sci. Eng., R.* **22**, 269 (1998).
- [10] S. Pérez-Walton, C. Valencia-Balvin, A.C.M. Padilha, G.M. Dalpian, J.M. Osorio-Guillén, *J. Phys.: Condens. Matter* **28**, 035801 (2016).
- [11] H. Terui, M. Kobayashi, *Appl. Phys. Lett.* **32**, 666 (1978).
- [12] S. Maeng, L. Axe, T. Tyson, L. Gladczuk, M. Sosnowski, *Corros. Sci.* **48**, 2154 (2006).
- [13] G.M. Choi, H.L. Tuller, J.S. Haggerty, *J. Electrochem. Soc.* **136**, 835 (1989).
- [14] Y.R. Denny, T. Firmansyah, S.K. Oh, H.J. Kang, D. Yang, S. Heo, J. Chung, J. Lee, *Mater. Res. Bull.* **82**, 1 (2016).
- [15] R. Hollerweger, D. Holec, J. Paulitsch, M. Bartosik, R. Daniel, R. Rachbauer, P. Polcik, J. Keckes, C. Krywka, H. Euchner, P.H. Mayrhofer, *Acta Materialia* **83**, 276 (2015).
- [16] L. Zhu, J. Zhou, Z. Guo, Z. Sun, *J. Phys. Chem. C* **120**, 2456 (2016).

- [17] R. Simpson, R.G. White, J.F. Watts, M.A. Baker, *Appl. Surf. Sci.* **405**, 79 (2017).
- [18] C.P. Race, *The Modeling of Radiation Damage in Metals using Ehrenfest Dynamics*, Springer Theses, Springer-Verlag, Berlin 2010.
- [19] A. Kuzmichev, V. Perevertaylo, L. Tsybulsky, O. Volpian, *J. Phys. Conf. Ser.* **729**, 012005 (2016).
- [20] A. De Backer, A. Sand, C. Ortiz, C. Domain, P. Olsson, E. Berthod, C.S. Becquart, *Phys. Scr.* **T167**, 014018 (2016).
- [21] A. Djaafri, *Etude des dommages créés dans le tantale (Ta) et les composés TaC et Ta₂O₅ par l'approximation des collisions binaires (BCA)*, Etude effectuée dans le cadre de préparation de la thèse d'état à l'université Djillali Liabes, Sidi-Bel-Abbes.
- [22] L. Bukonte, F. Djurabekova, J. Samela, K. Nordlund, S.A. Norris, M.J. Aziz, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **B 297**, 23 (2013).
- [23] M. Dupeux, *Aide-mémoire science des matériaux*, Dunod, Paris, 2008.
- [24] P. Pavlov, A. khokhlov, *Physique du solide*, Ed. Mir, Moscow, 1989.
- [25] J. Frenkel, *Z. Physik.* **35**, 652 (1926).
- [26] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 8th edition, John Willey & Sons, Inc, 2005.
- [27] J.P. Baïlon, J.M. Dorlot, *Des Matériaux*, Ed. Presses Internationales Polytechnique, 2002.
- [28] C. Wagner, M. Schottky, *Z. Physik. Chem.* **B 11**, 163 (1930).
- [29] R. Collongues, *Le solide Cristtalin*, Presse Universitaire de France, 1973.
- [30] J.W.Jr Morris, *Defects in Crystals*, In: *Materials Science and Engineering: An Introduction*. Ed. Wiley, 2013, pp. 76–107.
- [31] J. Besson, N. Billon, S. Cantournet, Y. Chastel, A.F. Gourgues-Lorenzon, J.M. Haudin, B. Monasse, L. Nazé, *Matériaux pour l'ingénieur*, Ed. Presses de l'école des mines, Paris, France, 2010.
- [32] G.S. Was, *Fundamentals of Radiation Materials Science*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2007.
- [33] M.T. Robinson, I. Torrens, *Phys. Rev.* **B 9**, 5008 (1974).

- [34] M.T. Robinson, *Phys. Rev.* **B 40**, 10717 (1989).
- [35] M.T. Robinson, *Rad. Effects* **141**, 1 (1997).
- [36] D.R. Olander, *Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements*, Ed. Technical Information Center, Office of Public Affairs and Energy Research and Development Administration, Oak Ridge, Tennessee, USA, 1976.
- [37] J.A. Brinkman, *J. Appl. Phys.* **25**, 961(1954).
- [38] A. Scholtz, C. Lehmann, *Phys. Rev.* **B 6**, 813 (1972).
- [39] G. Vizkelently, S.M. Foiles, *Nucl. Instrum. Methods* **B 371**, 111 (2015).
- [40] W. Eckstein, *Computer simulation of Ion-Solid Interactions*, Springer Series in Materials Science, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1991.
- [41] P.L. Grande, F.C. Zawislak, D. Fink, M. Behar, *Nucl. Instrum. Methods* **B 61**, 282 (1991).
- [42] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, *The stopping and range of ions in solids*, Pergamon Press, 1985.
- [43] H. Bethe, *Z. Physic* **14**, 531 (1938).
- [44] F. Block, *Z. Phys.* **81**, 363 (1933).
- [45] O. B. Firsov, *Soviet Physics JETP* **36**, 1076 (1959).
- [46] J. Lindhard, M. Scharff, H.E. Schiott, *Physics Medd.* **33**, 54 (1963).
- [47] P. Salou, *Interaction ion-surface: simulation de l'interaction plasma-paroi (ITER)*, Thèse de Doctorat, l'Université de Caen Basse-Normandie, France, 2013.
- [48] J.P. Biersack, *Zeitschrift A Hadrons and Nuclei* **211**, 495 (1968).
- [49] S.M. Bruemmer, E.P. Simonen, P.M. Scott, P.L. Andresen, G.S. Was, J.L. Nelson, *J. Nucl. Mater.* **274**, 299 (1999).
- [50] G.H. Kinchin, R.S. Pease, *Rep. Prog. Phys.* **18**, 1 (1955).
- [51] M.J. Norgett, M.T. Robinson, I.M. Torrens, *Nucl. Eng. Des.* **33**, 50 (1975).
- [52] R.H. Jones, *Stress Corrosion Cracking in: ASM Handbook*, Vol **13**, 9th ed. ASM International, Metals Park, OH, 1987, p. 145.
- [53] W.S. Snyder, J. Neufeld, *Phys. Rev.* **97**, 1636 (1955).

- [54] J.B Sanders, *On penetration depths and collision cascades in solid materials*, Thèse Doctorat, University of Leiden, Pays-Bas, 1968.
- [55] O.S. Oen, M.T. Robinson, *Appl. Phys. Lett.* **2**, 83 (1963).
- [56] M.T. Robinson, *MARLOWE: computer simulation of atomic collisions in crystalline solids*, (Version 15a), RSICC Code Package PSR-137 (Report).
- [57] M. Blackman, *Handbuch der Physik*, **Vol. VII**, Part.1, Springer-Verlag, Berlin,1955.
- [58] G. Molière, *Z. Naturforsch* **A2**, 133 (1947).
- [59] S.T. Nakagawa, Y. Yamamura, *Rad. Effects* **105**, 239 (1988).
- [60] S.T. Nakagawa, *Rad. Effects* **116**, 21(1991).
- [61] H.H. Andersen, P. Sigmund, *Nucl. Instrum. Methods* **38**, 238 (1965).
- [62] P.M. Morse, *Phys. Rev.* **34**, 57 (1929).
- [63] L.A. Girifalco, V.G. Weizer, *Phys. Rev.* **114**, 687 (1959).
- [64] D.E. Harrison, Jr., *CRC Crit. Rev. Solid. State Sci.* **14**, 1 (1988).
- [65] J. Lindhard, M. Scharff, H.E. Schiott, *Danske Vidensk. Selsk., Math. Fys. Medd.* **33**, 1 (1963).
- [66] J. Lindhard, M. Scharff, *Phys. Rev.* **124**, 128 (1961).
- [67] O.S. Oen, M.T. Robinson, *Nucl. Instrum. Methods* **132**, 647 (1976).
- [69] L.A. Stegun, In: *Handbook of Mathematical Functions*, Ed. M. Abramowitz, L.A. Stegun, Dover, New York, 1965, p. 998.
- [70] M.T. Robinson, *Phys. Rev.* **B 27**, 5347 (1983).
- [71] M.T. Robinson, *Nucl. Instrum. Methods* **B 48**, 408 (1990).
- [72] M.T. Robinson, *Nucl. Instrum. Methods* **B 67**, 396 (1992).
- [73] M. Hou, A. Souidi, C.S. Becquart, *J. Phys.: Condens. Matter* **13**, 5365 (2001).
- [73] A.B. Cusick, “*High Energy Heavy Ion-Induced Structural Modifications in Binary Oxides*”, Thèse PhD, University of Michigan, USA, 2015.
- [74] A. Souidi, M. Hou, C.S. Becquart, C. Domain, *Journal of Nuclear Materials* **295**, 179 (2001).
- [75] M. Hou, A. Souidi, C.S. Becquart, *J. Phys.: Condens. Matter* **13**, 5365 (2001).

- [76] A. Djaafri, T. Djaafri, A. Elias, M. Driss-Khodja, *The African Review of Physics*, **8:0051**, 365 (2013).
- [77] A. Djaafri, A. Kadoun, M. Driss-Khodja, A. Elias, T. Djaafri, *Acta Physica Polonica A* **133**, 39 (2018).
- [78] A. Djaafri, A. Kadoun, M. Driss-Khodja, *Arab. J. Sci. Eng.* **43**, 3837 (2018).
- [79] E. Pehlivan, K. Koc, F.Z. Tepehan, G.G. Tepehan, *J. Sol-Gel. Sci. Technol* **77**, 172 (2016).
- [80] W. Yi, S.E. Savel'ev, G. Medeiros-Ribeiro, F. Miao, M.X. Zhang, J.J. Yang, A.M. Bratkovsky, R.S. Williams, *Nat. Commun.* **7**, 11142 (2016).
- [81] C.Y. Ho, R.W. Powell, P.E. Liley: "Thermal Conductivity of the Elements: A Comprehensive Review", *J. Phys. Chem. Ref. Data.* **3**, I-10 (1974).
- [82] M. Hou: *Nucl. Insuum. Methods* **182/183**, 153 (1981).
- [83] G. Bohm, G. Zech: "*Introduction to Statistics and Data Analysis for Physicists*", (Deutsches Elektronen-Synchrotron), 2010.
- [84] C.S. Becquart, M. Hou, A. Souidi, *Materials Research Society (MRS)* **650**, R4.3 (2000).

Simulation des cascades de déplacements dans le pentoxyde de tantale.

Résumé

Nous avons utilisé le code Marlowe basé sur le modèle de l'approximation des collisions binaires afin de simuler des cascades de déplacements dans le pentoxyde de tantale. Nous avons examiné la production des défauts, leur distribution spatiale et le volume de la zone endommagée. Nous avons accumulé des statistiques de 1000 cascades initiées par des primaires avec des énergies de 20 keV. Les collisions élastiques entre les atomes sont gouvernées par les potentiels de Molière et le potentiel universel de Ziegler-Biersack-Littmark. Le modèle de Lindhard–Scharff–Schiott est utilisé pour tenir compte de la perte d'énergie inélastique. Le volume de la région endommagée est estimé par la méthode statistique de l'analyse en composantes principales. Nos résultats montrent qu'il y a un déficit dans le nombre de paires de Frenkel du tantale. Il est 3 fois plus petit que celui de l'oxygène. La majorité des atomes déplacés terminent leurs trajectoires dans le voisinage d'un site vacant approprié. Les distributions des volumes sont asymétriques et montrent une haute dispersion. Le potentiel interatomique influe faiblement sur les caractéristiques étudiées de la cascade.

Mots clés : Approximation des collisions binaires, simulation, paire de Frenkel, potentiel, cascade

Simulation of displacement cascades in tantalum pentoxide

Abstract

We used the binary collision approximation code Marlowe to simulate displacement cascades in tantalum pentoxide. We investigated the damage production, the spatial configurations of the resulting defects, and the volume of the damaged zone. Statistics over 1000 cascades were accumulated, and primaries with kinetic of 20 keV were launched from lattice sites. Elastic collisions between atoms were modelled by the universal Ziegler–Biersack–Littmark potential and the Molière approximation to the Thomas-Fermi potential. The Lindhard–Scharff–Schjøtt theory was used to account for the inelastic energy losses. Principal components analysis was utilized to evaluate the volume of the damaged zone. Analysis of the simulation results shows that the number of oxygen Frenkel pairs is nearly 3 times higher than the tantalum one. Most of the displaced lattice atoms terminate their trajectories in vicinity of vacancies of the proper type. The cascade volume distributions deviate from a Gaussian distribution showing high degree of dispersion. The interatomic potential influences weakly the studied cascade features.

Keywords: Binary collision approximation, simulation, Frenkel pair, potential, cascade

محاكاة شلالات التنقلات في خماسي اكسيد التنتاليوم

الملخص

قمنا بمحاكاة الإصطدامات الذرية في خماسي اكسيد التنتاليوم باستخدام البرنامج Marlowe الذي يعتمد على نموذج تقريب التصادم الثنائي. قمنا بدراسة إنتاج أزواج فرانكل، توزيعهم في الفضاء و كذا حجم المنطقة المخربة من الجسم الصلب. قمنا بتجميع الإحصاءات من 1000 محاكات تم بدأ كل واحدة منها بقذيفة صدم أولية طاقتها 20 كيلو إلكترون فولط. التأثير المتبادل بين الذرات تم نمذجته بواسطة كموني موليير و زيغلر-بيرساك-لتمارك و أخذ نظرية لينهارد-شارف-شيوت لحساب الطاقة المفقودة إثر التصادمات غير المرنة. اعتمدنا على طريقة الإحصاء "تحليل المركبات الأساسية" لحساب حجم المنطقة المخربة من الجسم. تشير النتائج المحصل عليها بوضوح أن عدد أزواج فرانكل للأكسجين هي 3 أضعاف مثيلاتها من التنتاليوم و أن معظم الذرات المزاحة ينتهي بها المطاف بالقرب من المواقع الشاغرة من نفس النوع. توزيع الأحجام لكلي الكمونين غير متناظر و على درجة عالية من التشتت. تأثير الكمون على الخصائص المدروسة للشلال ضعيف.

الكلمات المفتاحية: تقريب التصادم الثنائي، محاكاة ،زوج فرانكل ، كمون ، شلال