

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE « Dr. TAHAR MOULAY » DE 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

DERKAOUI Bent nebi

Sur le thème

Etude des défauts induits par irradiation dans le tungstène

Soutenu le 26/06/2019 devant le jury composé de :

Mohamed MESKINE	MCA	Université Dr. Tahar Moulay de Saida	Président
Abdelkader DJAAFRI	MCB	Université Dr. Tahar Moulay de Saida	Encadreur
Tayeb DJAAFRI	MCA	Université Dr. Tahar Moulay de Saida	Co-encadreur
Fatiha SAADAOU	MAB	Université Dr. Tahar Moulay de Saida	Examineur

Année Universitaire 2018 - 2019

DEDICACE

*Je dédie ce travail à mes très chers parents qui
m'ont encouragé et soutenu durant mes études :*

ma mère et mon père ;

À mes sœurs, mes frères ;

À mes amis ;

Ainsi que les familles : Derkaoui, Ayoub

À toute la Promotion " 2018/2019 ".

Bent nebi Derkaoui

REMERCIEMENTS

Je remercie tout d'abord Allah pour son aide et sa Bénédiction et je tiens à remercier mon encadreur Mr DJAAFRI Abdelkader pour son aide, et mon co-encadreur Mr DJAAFRI Tayeb.

Je voudrais présenter un grand merci à nos chers Professeurs pour leurs conseils et assistance.

J'adresse mes sincères remerciements à Monsieur Le président de jury et aux membres de jury d'avoir Accepté juger mon travail.

Enfin, je tiens, aussi, à exprimer mes remerciements à tous ceux qui ont participé de près ou de loin à la réalisation de ce Projet.

Tables des matières

Liste des figures.....	vi
Introduction générale.....	1

Chapitre 1 - Défauts cristallins

1.1 Introduction.....	7
1.2 Défauts ponctuels.....	7
1.2.1 Lacunes.....	8
1.2.2 Auto-interstitiels.....	9
1.2.3 Défauts de Schottky et de Frenkel	10
1.2.4 Défauts extrinsèques.....	11
1.3 Dislocations.....	13
1.3.1 Dislocation coin.....	13
1.3.2 Dislocation vis.....	14
1.4 Défauts surfaciques.....	14
1.5 Défauts volumiques.....	15
1.5.1 Pores.....	15
1.5.2 Inclusions.....	15
1.5.3 Précipités.....	16

Chapitre 2 – Modèles de simulation

2.1 Introduction.....	18
2.2 Approximation des collisions binaires.....	19
2.2.1 Description de la cascade de déplacements.....	19
2.2.2 Canalisation.....	20
2.2.3 Focalisation.....	21
2.2.4 Séquences de remplacements.....	22

2.2.5	Collisions élastiques.....	22
2.2.5.1	Cinématique d'une collision binaire.....	22
2.2.5.2	Energie transférée.....	27
2.2.5.3	Angle de diffusion.....	28
2.2.6	Perte d'énergie.....	30
2.2.6.1	Perte d'énergie inélastique.....	31
2.2.6.2	Perte d'énergie élastique.....	33
2.2.6.3	Perte d'énergie totale.....	34
2.2.7	Energie seuil de déplacement.....	35
2.2.8	Nombre de déplacements.....	35
2.2.8.1	Modèle de Kinchin-Pease.....	36
2.2.8.2	Modèle de Norgett-Robinson-Torrens.....	37

Chapitre 3 – Code Marlowe

3.1	Introduction.....	40
3.2	Structure du programme.....	40
3.3	Description de la cible.....	41
3.4	Conditions d'irradiation.....	42
3.5	Sélection des atomes cibles.....	43
3.6	Potentiels interatomiques.....	44
3.6.1	Potentiel de Molière.....	45
3.6.2	Potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark.....	45
3.6.3	Potentiel moyen modifié de Lenz-Jensen.....	46
3.6.4	Potentiel de Born-Mayer.....	47
3.6.5	Potentiel de Morse.....	47
3.7	Energie inélastique perdue.....	48

3.8 Vibrations thermiques.....	49
3.9 Défauts ponctuels.....	49
3.10 Volume de la cascade.....	50

Chapitre 4 – Résultats et discussion

4.1 Introduction.....	54
4.2 Paramètres de simulation.....	55
4.3 Energie cinétique.....	56
4.4 Atomes en mouvement.....	58
4.5 Atomes déplacés.....	59
4.6 Paires de Frenkel.....	61
4.7 Séquences de remplacements.....	64
4.8 Distribution spatiale des défauts.....	65
4.9 Volume de la cascade.....	66
Conclusion générale	68
Références.....	71
Appendice.....	76

Liste des figures

Chapitre 1		
Figure	Représentation schématique d'un cristal monoatomique.....	7
1.1		
Figure 1.2	Schéma d'une lacune.....	8
Figure 1.3	Diffusion d'une lacune dans cristal.....	9
Figure 1.4	Schéma de défaut auto-interstitiel.....	9
Figure 1.5	Défaut de Schottky et de Frenkel.....	11
Figure 1.6	Défaut extrinsèque substitutionnel.....	11
Figure 1.7	Positions interstitielles dans la structure cubique centrée	12
Figure 1.8	Positions interstitielles dans la structure cubique à faces centrées	12
Figure 1.9	Schéma d'une dislocation coin.....	13
Figure 1.10	Schéma d'une dislocation vis.....	14
Figure 1.11	Représentation schématique d'un joint de grains et d'un joint de phases.....	15
Chapitre 2		
Figure 2.1	Représentation schématique d'une cascade de déplacements.....	20
Figure 2.2	Schéma d'un atome se déplaçant dans un canal dans un réseau cristallin.....	21
Figure 2.3	Schéma d'une séquence de focalisation.....	21
Figure 2.4	Schéma d'une séquence de remplacements.....	22
Figure 2.5	Schéma d'une collision binaire dans le système de référence du laboratoire.....	24
Figure 2.6	Relations entre les vitesses dans les référentiels du laboratoire et du centre de masse.....	26
Figure 2.7	Angle de diffusion ϑ dans le référentiel du centre de masse.....	29
Figure 2.8	Trajectoires de deux atomes en collision dans le référentiel du laboratoire.....	30

Figure 2.9	Représentation schématique du pouvoir d'arrêt des ions dans la matière.....	34
Figure 2.10	Nombre d'atomes déplacés dans le modèle de Kinchin-Pease.....	36

Chapitre 3

Figure 3.1	Schéma représentant les bases de la procédure de recherche des cibles.....	43
------------	--	----

Chapitre 4

Figure 4.1	Maille élémentaire du tungstène.....	55
Figure 4.2	Potentiels ZBL et Molière entre deux atomes de tungstène.....	56
Figure 4.3	Energie cinétique dans une cascade de 20 keV en fonction du temps dans le tungstène.....	57
Figure 4.4	Nombre moyen d'atomes en mouvement dans une cascade de 20 keV dans le tungstène.....	59
Figure 4.5	Histogramme d'atomes déplacés dans une cascade de 20 keV dans le tungstène.....	60
Figure 4.6	Somme cumulée d'atomes déplacés dans une cascade de 20 keV dans le tungstène.....	61
Figure 4.7	Nombre total de paires de Frenkel dans une cascade de 20 keV dans le tungstène.....	63
Figure 4.8	Distribution des RCS en fonction de la longueur dans le tungstène.....	65
Figure 4.9	Distribution spatiale des défauts permanents dans une cascade de 20 keV dans le tungstène.....	66
Figure 4.10	Distributions de volumes dans l'irradiation du tungstène par un primaire de 20 keV.....	67

Introduction générale

L'étude des dégâts causés par irradiation dans les matériaux est devenue un sujet de recherche d'une importance considérable car ces dommages nuisent grandement au bon fonctionnement des composants électroniques embarqués dans les engins spatiaux qui sont exposés aux rayonnements omniprésents dans l'espace.

Dans le domaine spatial, l'importance des dispositifs électroniques destinés aux applications dans les domaines des télécommunications, de l'observation de la terre et de l'exploration de l'espace ne cesse d'augmenter. Ces composants sont exposés de façon permanente aux rayonnements (particules chargées, neutrons et rayonnements gamma), dont les principales sources sont le vent solaire et le rayonnement cosmique. Lorsqu'une particule chargée énergétique pénètre dans un matériau semi-conducteur, elle peut générer des électrons dans la bande de conduction, augmentant ainsi le bruit électronique ou menant à des calculs erronés dans un circuit numérique [1-5].

Dans une centrale électronucléaire, les neutrons produits par les réactions nucléaires qui ont lieu au cœur du réacteur, provoquent, dans les matériaux à proximité, des processus complexes parmi lesquels les réactions de transmutation et les déplacements atomiques. Ces derniers créent un désordre structural en produisant des défauts ponctuels notamment des lacunes et des interstitiels. Ces défauts peuvent migrer et s'agglomérer pour former des amas qui évoluent en des dislocations et des cavités. Ces changements, à l'échelle atomique, affectent fortement, à long terme, les propriétés physico-chimiques et mécaniques du matériau telles les conductivités électrique et thermique, la résistance à la corrosion, la fragilisation et le gonflement. Ces dégradations menacent la sécurité des centrales nucléaires [6-11].

La compréhension des mécanismes de vieillissement des matériaux irradiés, de façon à pouvoir prédire le nombre de défauts produits, leur évolution et le volume de la zone endommagée est d'un grand intérêt technologique et économique puisqu'il permet d'estimer la durée de vie des composants électroniques destinés à l'utilisation spatiale et à la

technologie nucléaire et d'améliorer leur performance. Une motivation supplémentaire pour l'étude des dégâts produits par irradiation est apportée par des domaines tels que l'implantation ionique dans les semi-conducteurs, l'imagerie médicale et les traitements médicaux.

Notre intérêt pour le tungstène (W) vient des enjeux technologiques et économiques très importants liés à ses propriétés physiques, chimiques et mécaniques particulièrement attrayantes. Le tungstène (sous sa forme pure ou sous forme de composé) est utilisé dans des applications dans des secteurs variés notamment l'électronique et le nucléaire.

Le tungstène est un métal de transition très dur et lourd de numéro atomique 74 et de masse atomique 183.84 uma [12]. Il est cassant et difficile à travailler lorsqu'il est impur. Il a le plus haut point de fusion de tous les métaux (point de fusion à 3422 °C) ce qui en fait un métal très réfractaire [13-15]. Il a l'une des plus hautes densités (19.3 g/cm³). Il a, également, la plus grande résistance à la traction de tous les métaux à une température supérieure à 1 650 °C et la plus faible pression de vapeur. Sa résistance à la corrosion est excellente et il ne peut être que légèrement attaqué par les acides minéraux grâce à la formation d'un film protecteur [16-20].

Ces propriétés trouvent des applications dans des domaines très variés. En électricité, il est présent dans les filaments des ampoules électriques, les tubes cathodiques et les électrodes. Son point de fusion très élevé fait de lui un élément de choix dans un contexte de très hautes températures, comme la rentrée atmosphérique d'un véhicule spatial ou l'écorceur du réacteur thermonucléaire. La dureté et la densité de ce métal le rendent idéal pour faire des alliages, notamment d'aciers, utilisés dans l'armement et dans les pièces d'usure dans les outils à haute vitesse [16-20].

Les travaux antérieurs sur les défauts dans le tungstène irradié ont débuté par le calcul du coefficient d'efficacité du déplacement et le nombre de paires de Frenkel produites pour

différentes énergies d'irradiation [21]. Pour parvenir à leurs fins, Caturla et *al.* ont utilisé la dynamique moléculaire et le modèle NRT. Ils ont, également, examiné l'évolution des défauts en des amas. Broeders et Konobeyev ont analysé la section efficace de déplacement pour le tungstène irradié avec des protons à des énergies comprises entre plusieurs keV et 1 GeV [22]. Fikar et Schäublin ont utilisé la dynamique moléculaire pour calculer l'énergie de formation des défauts et leur migration dans le tungstène irradié [23].

La modélisation des interactions entre des particules énergétiques et la matière peut être réalisée par deux méthodes : l'approximation des collisions binaires (BCA pour Binary Collision Approximation) et la dynamique moléculaire (MD pour Molecular Dynamics).

Notre choix pour la méthode d'étude des dommages causés par irradiation dans le tungstène s'est porté sur la BCA car elle est mieux adaptée à notre étude. Elle permet, en un temps relativement court, l'accumulation d'une quantité importante de statistiques nécessaires à une étude adéquate des caractéristiques de la cascade qui présentent un haut degré de variabilité. La BCA est fréquemment utilisée dans la modélisation de divers phénomènes liés à l'irradiation des matériaux tels que la pulvérisation, l'implantation ionique, la canalisation, la rétrodiffusion et la production de dégâts [24-31].

L'objectif du présent travail est d'étudier, par simulation basée sur la BCA, certaines caractéristiques des cascades de déplacements dans le tungstène irradié. Nous examinons de près la production de défauts, leur configuration spatiale, la contribution des séquences de remplacements à la création des dégâts et le volume de la zone endommagée. Nous utiliserons, pour parvenir à cette fin, le code Marlowe.

Ce manuscrit est réparti en quatre chapitres. Dans le premier chapitre, nous présentons des rappels concernant les défauts cristallins : les défauts ponctuels, linéaires, surfaciques et volumiques qui peuvent apparaître et perturber l'empilement régulier d'un cristal. Le deuxième chapitre est consacré au modèle utilisé pour simuler l'irradiation du tungstène.

Nous exposons la méthode de l'approximation des collisions binaires et les phénomènes qui peuvent se produire lors du développement d'une cascade de déplacements. Dans le troisième chapitre, nous présentons le programme Marlowe utilisé dans la simulation des cascades de déplacements dans le tungstène. Dans le quatrième chapitre, nous rapportons les résultats que nous avons obtenus par simulation. Les résultats relatifs au développement temporel des cascades, le nombre de paires de Frenkel produites, la fonction de distribution des ces paires en fonction de la distance de séparation lacune-interstitiel et la distribution des volumes des cascades. Enfin, nous clôturons notre mémoire par une conclusion générale retraçant les principaux résultats obtenus et nous donnerons les perspectives envisagées pour la poursuite de ce travail.

Chapitre 1 Défauts cristallins

1.1. Introduction

Les cristaux parfaits formés par arrangement régulier et périodique des atomes, des ions ou des molécules dans les trois dimensions de l'espace sont des cristaux idéaux. Les matériaux cristallins les plus répandus, tels que les métaux et les alliages métalliques ont des structures qui s'écartent de cet assemblage périodique et comportent différents types d'imperfections. Ces défauts provoquent des distorsions locales et affectent certaines propriétés des matériaux telles que les propriétés optiques, électriques et mécaniques [32, 33]. Les défauts peuvent être sans dimension (ponctuels), à une dimension (linéaires), à deux dimensions (plans) ou à trois dimensions (volumiques).

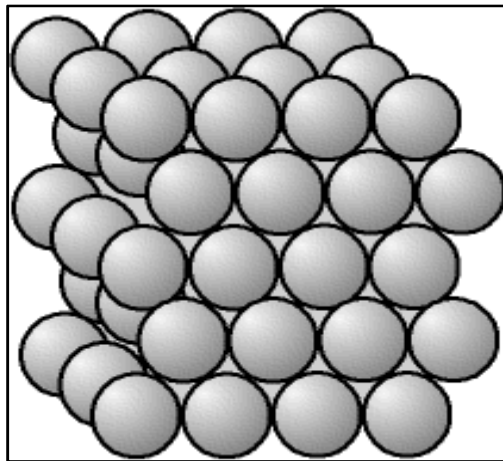


Figure 1.1. Représentation schématique d'un cristal monoatomique.

1.2. Défauts ponctuels

Les défauts ponctuels sont des imperfections présentes en des points isolés du cristal et entraînent des distorsions locales du réseau cristallin. Ils sont de plusieurs types : lacunes, auto-interstitiels et extrinsèques en insertion ou en substitution [34].

1.2.1. Lacune

Elle est due à l'absence d'un atome ou d'un ion dans un site du réseau qui devrait en principe en contenir un (figure 1.2).

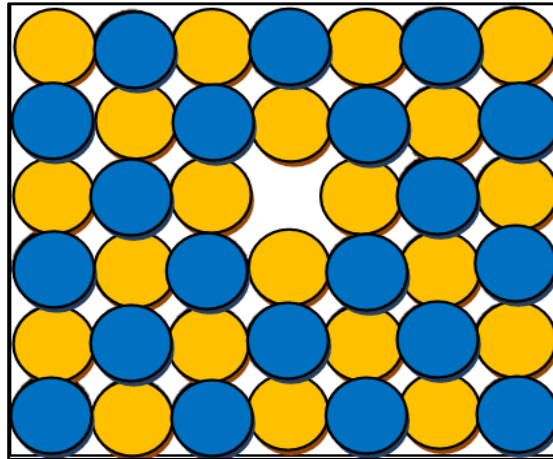


Figure 1.2. Schéma d'une lacune.

Les lacunes sont toujours présentes dans les cristaux réels. Elles augmentent la résistivité du cristal et diminuent sa densité. Leur concentration atomique n/N à l'équilibre dépend de la température, T , du matériau suivant la relation :

$$\frac{n}{N} = e^{-\left(\frac{E_V}{k_B T}\right)}, \quad (1.1)$$

où n est le nombre de lacunes se trouvant dans un ensemble contenant N atomes, E_V est l'énergie de formation d'une lacune, de l'ordre de 1 eV dans les métaux, et k_B est la constante de Boltzmann. La concentration des lacunes est de l'ordre de 10^{-15} à la température de 20°C [35].

La présence des lacunes dans les solides facilite la diffusion des atomes. Cette migration s'effectue vers des régions où leurs concentrations sont faibles. La diffusion se

produit grâce aux sauts successifs des atomes d'un site à un site libre voisin à travers le cristal comme il est montré sur la figure 1.3 [35-37].

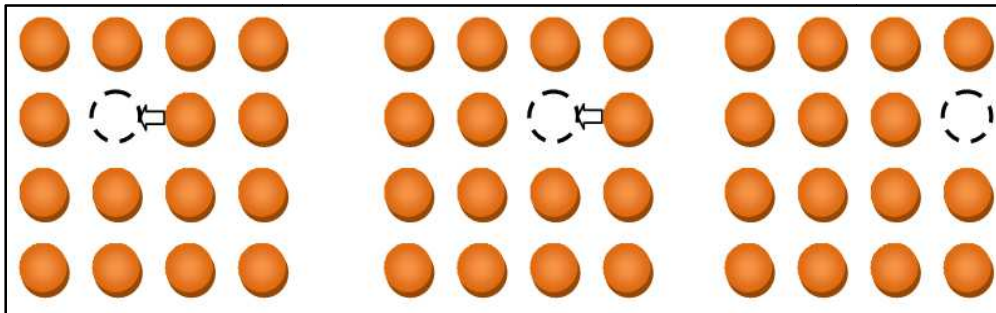


Figure 1.3. Diffusion d'une lacune dans un cristal.

1.2.2. Auto-interstitiel

C'est un atome en surnombre de même nature chimique que les atomes du cristal et qui est positionné en un emplacement normalement vide (voir figure 1.4). L'énergie de formation d'un interstitiel est plus élevée que celle de la formation d'une lacune. Dans les métaux, elle est de l'ordre de 7 eV [35]. La concentration des interstitiels dans le cristal croît avec la température. Elle obéit à une loi similaire à celle des lacunes. Elle est de l'ordre de 10^{-30} à la température 20°C [35].

La présence d'un interstitiel dans un cristal produit une forte distorsion locale et provoque l'écartement des atomes voisins de leurs positions.

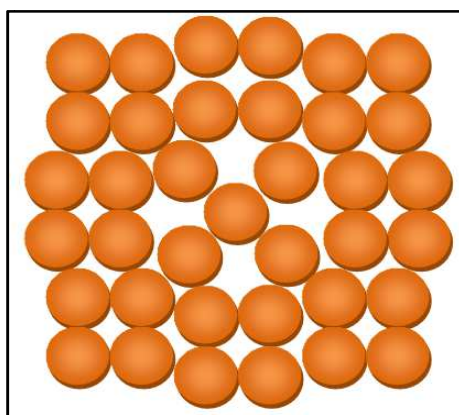


Figure 1.4. Schéma d'un auto-interstitiel.

1.2.3. Défauts de Schottky et de Frenkel

Dans les solides ioniques, les défauts ponctuels sont produits par paires afin de maintenir une charge électrique neutre du cristal. Un défaut de Schottky résulte de l'association d'une lacune cationique et une lacune anioniques au sein du cristal, comme il est illustré sur la figure 1.5. Un tel défaut on le retrouve, par exemple, dans NaCl [36, 38, 39]. Les atomes voisins se meuvent pour combler ces sites vacants, provoquant la formation de nouvelles lacunes. Les défauts de Schottky conduisent à une diminution de la densité du cristal et leur nombre est donné par l'expression [36, 38, 39] :

$$n_S \approx N e^{-(\Delta H_S^0/2k_B T)}, \quad (1.2)$$

où N est le nombre de sites du réseau et ΔH_F^0 est l'enthalpie standard de formation du défaut de Schottky.

Un défaut de Frenkel ou une paire de Frenkel correspond à l'association d'une lacune d'une espèce donnée et d'un atome de cette même espèce en position interstitielle, comme il est schématisé sur la figure 1.5. Les défauts de Frenkel peuvent être produits directement au sein du cristal sans nécessité de déplacement d'ions ou de lacunes hors de la matrice. C'est le cas, par exemple, dans l'irradiation des matériaux où la particule irradiante crée par collisions des interstitiels et des lacunes. Le nombre de défauts de Frenkel est donné par l'expression [38, 39] :

$$n_F \approx \sqrt{NN_i} e^{-(\Delta H_F^0/2k_B T)}, \quad (1.3)$$

N_i étant le nombre de sites interstitiels et ΔH_F^0 l'enthalpie standard de formation du défaut de Frenkel.

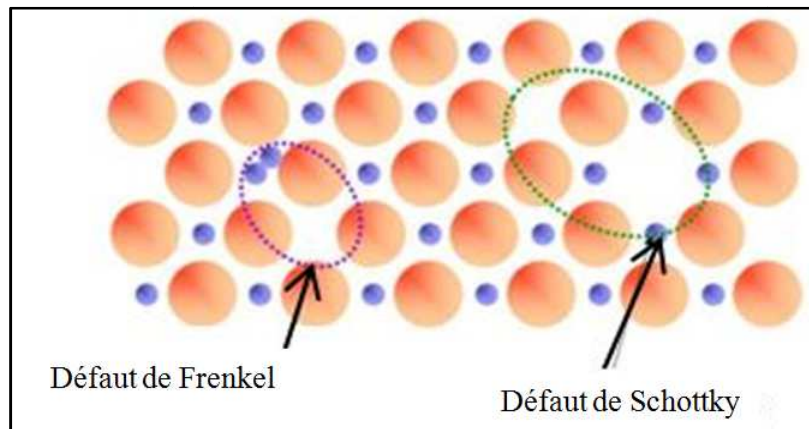


Figure 1.5. Défauts de Schottky et de Frenkel.

1.2.4. Défauts extrinsèques

Lorsqu'il y a présence d'un atome de nature chimique différente de celle des atomes composant le cristal, alors on parle de défaut extrinsèque. Dépendamment du rayon atomique de l'atome et de ses propriétés chimiques, le défaut peut être en substitution ou en insertion.

Dans le cas de la substitution, l'atome étranger remplace un atome du cristal et induit une distorsion locale du réseau (figure 1.6). Les défauts en substitution peuvent se déplacer dans le cristal et ont une influence appréciable sur les propriétés mécaniques et électriques des matériaux [35].

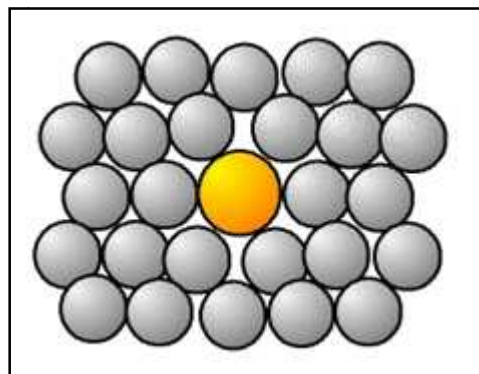


Figure 1.6. Défaut extrinsèque substitutionnel.

L'insertion en position interstitielle concerne, en général, des atomes de petites tailles devant ceux du cristal. L'insertion se fait en des sites préférentiels ; site tétraédrique où l'atome inséré se loge au centre d'un tétraèdre dont les sommets sont formés par les atomes du cristal (figure 1.7-a et figure 1.8-c) ou en site octaédrique où l'atome introduit est placé au centre d'un octaèdre (figure 1.7-b et figure 1.8-d).

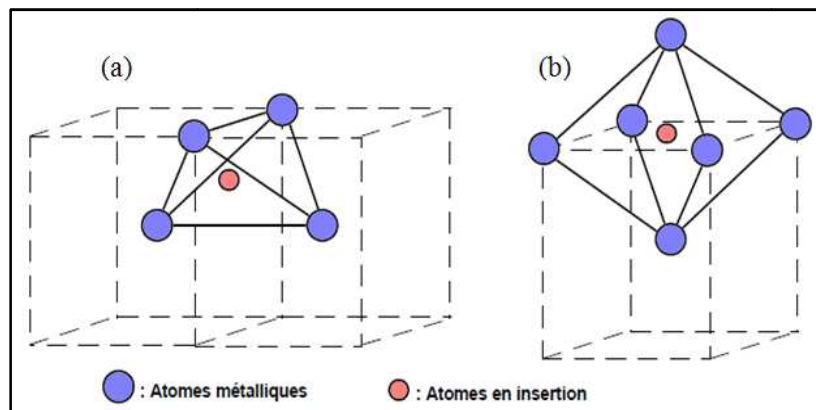


Figure 1.7. Positions interstitielles dans la structure cubique centrée.

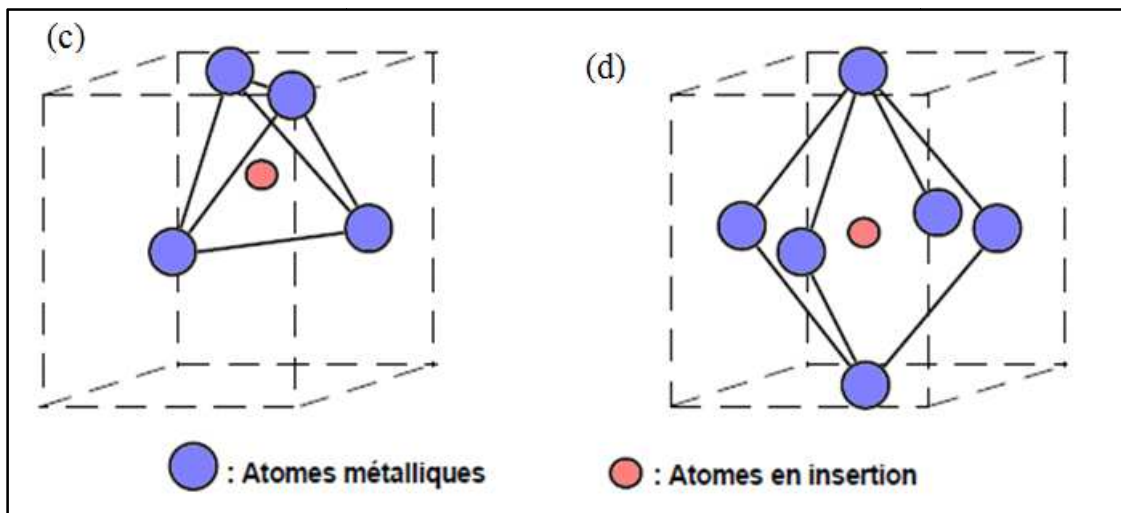


Figure 1.8. Positions interstitielles dans la structure cubique à faces centrées.

1.3. Dislocations

Les dislocations sont des défauts linéaires ou unidimensionnels. Une dislocation désigne une ligne d'imperfections séparant la partie qui a glissé relativement à une autre restée immobile [40]. Elle traduit donc une discontinuité dans l'organisation de la structure cristalline. Elle est caractérisée par un vecteur de glissement appelé vecteur de Burgers dont la norme donne l'amplitude de la déformation engendrée. Les dislocations ont un impact considérable sur les propriétés mécaniques des matériaux [33, 35]. Il existe, principalement, deux types de dislocations : les dislocations coin et les dislocations vis.

1.3.1. Dislocation coin

Ce type de défaut est caractérisé par la présence d'un demi-plan atomique supplémentaire dans le réseau cristallin comme il est illustré sur la figure 1.9. Le bord du demi-plan représente la ligne de dislocation. Le vecteur \vec{b} , perpendiculaire à cette ligne, est le vecteur de Burgers de la dislocation qui représente la grandeur et la direction du glissement.

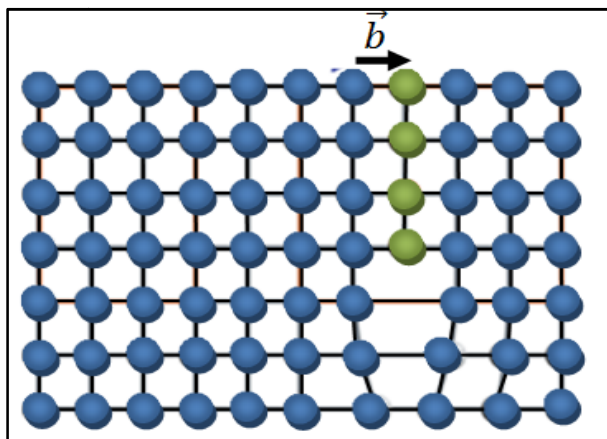


Figure 1.9. Schéma d'une dislocation coin.

1.3.2. Dislocation vis

Le deuxième modèle de déformation montré sur la figure 1.10 est la dislocation dite vis. Elle est caractérisée par un vecteur de Burgers \vec{b} parallèle à la ligne de dislocation.

Dans les cristaux réels, la ligne de dislocation n'est pas toujours rectiligne. On peut avoir des dislocations mixtes, dont la ligne fait un angle quelconque avec le vecteur de Burgers.

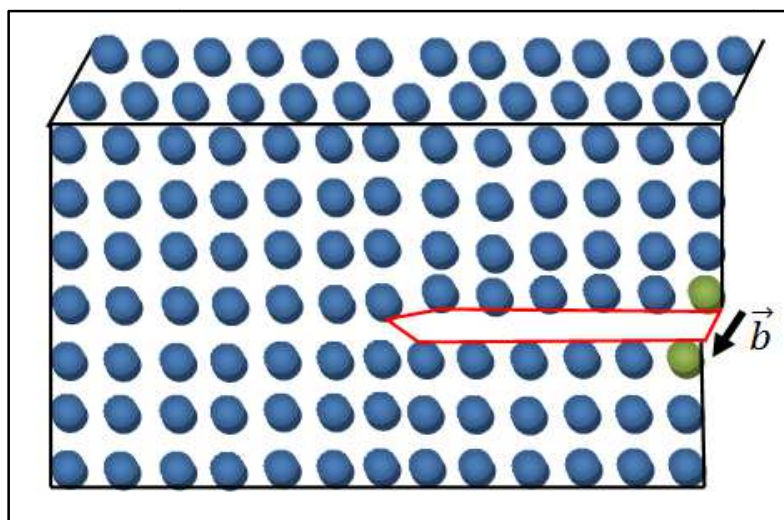


Figure 1.10. Schéma d'une dislocation vis.

1.4. Défauts surfaciques

Les matériaux cristallins les plus répandus, tels que les métaux et les alliages métalliques, se présentent sous une forme polycristalline qui est une agrégation de plusieurs petits cristaux juxtaposés de tailles et d'orientations différentes appelés grains [5, 33].

Les joints se sont les zones de raccordement entre les grains. Ce sont des surfaces et donc des défauts bidimensionnels. Ces défauts comprennent les joints de grains et les joints de phases.

Lorsque les cristaux juxtaposés sont de nature identique, leur surface d'accolement est appelée joint de grains. Pour des cristaux de nature différente, la surface d'accolement est appelée joint de phases (figure 1.11).

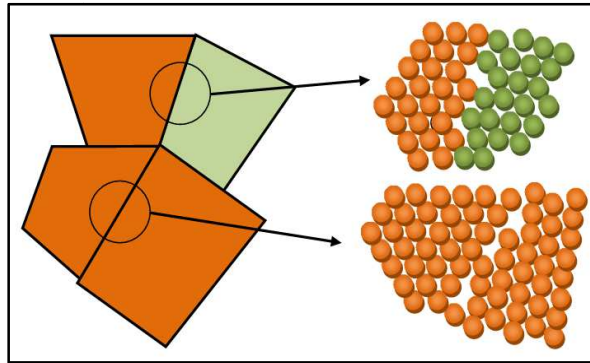


Figure 1.11. Représentation schématique d'un joint de grains et d'un joint de phases.

1.5. Défauts volumiques

Les défauts volumiques sont des agrégats tridimensionnels d'atomes ou de lacunes. Ils sont répartis en trois classes : les pores, les inclusions et les précipités [5, 41, 42].

1.5.1. Pores

Les pores sont des cavités qui se forment dans le matériau et qui résultent de la condensation de lacunes ou des gaz piégés durant la phase de solidification. Ces défauts provoquent la dégradation de certaines propriétés mécaniques des matériaux. Ils diminuent, par exemple, la résistance mécanique du matériau et favorisent, ainsi, la rupture à de faibles charges.

1.5.2. Inclusions

Les inclusions sont des impuretés enrobées dans le matériau. Elles s'infiltrent, généralement, pendant l'étape de l'élaboration du matériau. Elles constituent dans le solide

des sites préférentiels pour la rupture. Elles affectent les propriétés électriques des dispositifs microélectroniques en introduisant des effets indésirables [5].

1.5.3. Précipités

Les précipités sont de petites particules de seconde phase formées par combinaison entre les atomes du métal de base et les atomes des éléments d'alliage. Ils sont utilisés pour augmenter la résistance structurale des alliages. Leur efficacité dépend, en partie, de leur taille et de leur distribution dans le matériau [5].

Chapitre 2

Modèle de simulation

2.1. Introduction

Lors de l'irradiation d'un matériau, les particules énergétiques irradiantes interagissent avec les atomes composant le matériau provoquant l'excitation des électrons et le déplacement des atomes hors de leur position d'équilibre. Ces déplacements créent un désordre structural en générant des défauts ponctuels tels que les lacunes et les interstitiels. Ces défauts migrent dans le matériau. Le rapprochement des interstitiels et des lacunes mène à la recombinaison alors que l'agglomération des défauts ponctuels de même espèce conduit à la formation d'amas qui peuvent évoluer à leur tour en des cavités et en boucles de dislocations.

Pour comprendre comment une cascade de déplacements se développe, il faut se tourner vers la simulation par ordinateur. Les deux méthodes les plus utilisées pour simuler l'irradiation des matériaux sont ; la méthode de la dynamique moléculaire et la méthode de l'approximation des collisions binaires.

En dynamique moléculaire, les trajectoires d'un système de N particules sont générées par intégration des équations de mouvement de Newton en faisant un choix approprié du potentiel d'interaction, des conditions initiales et des conditions aux limites. Elle conduit à des simulations réalistes des phénomènes étudiés. Les inconvénients de cette méthode résident dans :

- son coût élevé en temps de calcul ;
- sa pauvreté en accumulation de statistiques.

L'approximation des collisions binaires repose essentiellement sur 2 hypothèses :

- 1) la collision se fait entre deux atomes : un projectile en mouvement et une cible immobile ;
- 2) les trajectoires réelles des atomes avant le choc et après le choc sont remplacées par leurs asymptotes.

Les avantages de la BCA se résument dans les points suivants :

- elle est plus rapide en temps de calcul ;
- elle est mieux adaptée à l'irradiation à hautes énergies
- elle permet une accumulation énorme de statistiques, ce qui la rend appropriée pour l'étude de phénomènes de nature aléatoire telle que les collisions atomiques.

L'inconvénient de cette méthode est qu'elle est moins précise que la MD à très basses énergies (les quelques eV).

2.2. Approximation des collisions binaires

Ce modèle est appliqué avec succès aux phénomènes à relation avec l'irradiation des matériaux notamment la rétrodiffusion, la pulvérisation, l'implantation d'ions et les dégâts causés par irradiation [24-31].

Dans la BCA, une cascade de déplacements est décrite comme une suite de collisions binaires entre les atomes en mouvement et les atomes immobiles du matériau. Les trajectoires réelles des atomes avant et après les collisions sont remplacées par leurs asymptotes. La perte d'énergie des particules en mouvement et la somme d'une partie due aux chocs élastiques avec les noyaux du milieu et une partie inélastique due à l'excitation des électrons atomiques.

2.2.1. Description de la cascade de déplacements

Lorsqu'une particule énergétique pénètre un matériau, elle entre en collision avec un atome du milieu et lui communique une partie de son énergie cinétique. L'atome quitte sa position d'équilibre et devient un projectile. Un tel atome est appelé primaire ou PKA (pour Primary knock-on atom). Le primaire percute 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 avalanche de collisions atomiques appelée cascade de

déplacements (figure 2.1). Les atomes collisionnés du réseau sont déplacés définitivement de leurs positions d'équilibre s'ils acquièrent une énergie supérieure à l'énergie seuil de déplacement E_d du matériau. Si l'énergie acquise est inférieure à E_d , l'atome cible oscillera autour de sa position d'équilibre et dissipera l'énergie reçue sous forme de chaleur [43]. Les pertes d'énergies élastiques et inélastiques font qu'à long terme, les atomes en mouvement ralentissent et finissent par s'immobiliser. Ceci se traduit par l'arrêt de l'expansion de la cascade.

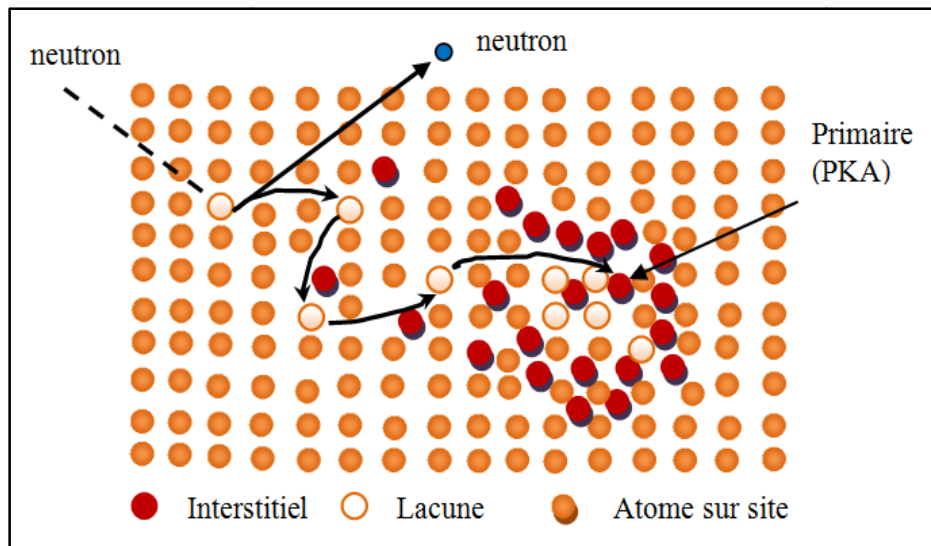


Figure 2.1. Représentation schématique d'une cascade de déplacements.

De nombreux phénomènes physiques peuvent se manifester lors du développement d'une cascade de déplacements. Parmi ces phénomènes on cite la canalisation, la focalisation et les séquences de remplacements.

2.2.2. Canalisation

Le phénomène de canalisation se produit le plus souvent dans l'irradiation à haute énergie. La particule se meut dans le matériau parallèlement à une direction cristallographique

de bas indice. Comme il est illustré sur la figure 2.2, la particule suit une trajectoire entre les atomes et parcourt une longue distance avant de subir des collisions importantes.

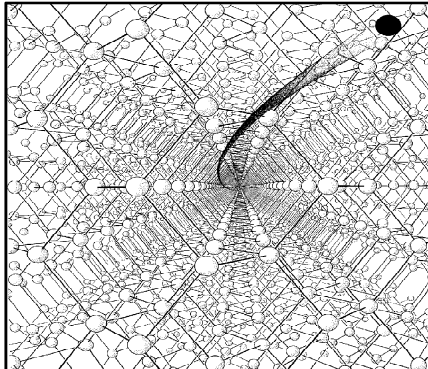


Figure 2.2. Schéma d'un atome se déplaçant dans un canal dans un réseau cristallin [44].

2.2.3. Focalisation

La focalisation consiste en une série de collisions successives d'atomes voisins le long d'une rangée atomique (figure 2.3). Ce phénomène a tendance à se manifester dans les cascades de basses énergies ou vers la fin du développement des cascades énergétiques [5, 43].

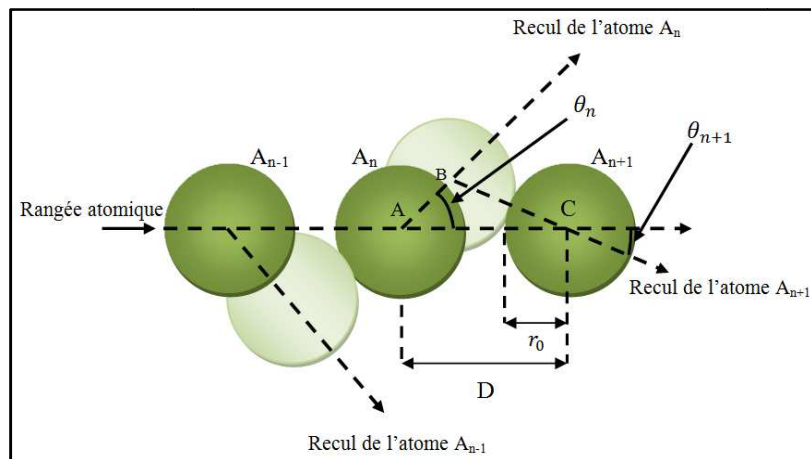


Figure 2.3. Schéma d'une séquence de focalisation [43].

2.2.4. Séquences de remplacements

On parle d'un événement de remplacement lorsque l'atome en mouvement transfère la totalité de son énergie à l'atome cible et s'immobilise à sa place. Pour une séquence, il y a un effet domino qui se crée. Le long d'une rangée atomique, le plus souvent de bas indice, un projectile évince un atome du réseau et prend sa place. L'atome éjecté déplace à son tour un atome voisin et prend sa place et ainsi de suite. Un tel mécanisme, qui est favorisé à basse énergie, est schématisé sur la figure 2.4. À la fin d'une séquence de remplacements, on se retrouve avec un atome interstitiel qui a, approximativement, la même énergie cinétique que le premier atome de la séquence [5].

Les séquences de remplacements peuvent contribuer à la création des défauts permanents en transportant les interstitiels loin des sites vacants et défavorisent ainsi la recombinaison. Plus elles sont nombreuses et longues plus la probabilité de production de défauts permanents est grande.

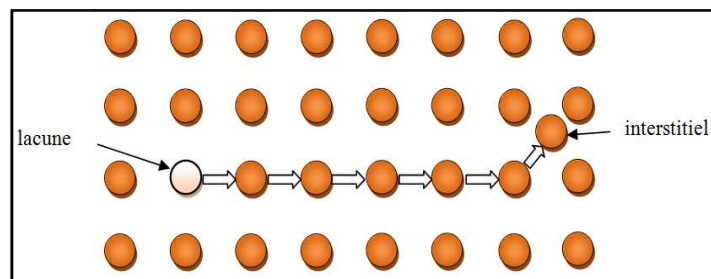


Figure 2.4. Schéma d'une séquence de remplacements.

2.2.5. Collisions élastiques

2.2.5.1. Cinématique d'une collision binaire

Dans ce qui suit, nous allons examiner de près une collision binaire. La collision est supposée être composée d'une partie élastique qui conserve l'énergie cinétique totale du

système et d'une partie inélastique causée par l'excitation ou l'ionisation des électrons atomiques.

Deux modèles sont utilisés conjointement pour calculer les grandeurs physiques d'intérêt dans une collision binaire : la mécanique des chocs et la diffusion d'une particule par un champ de force central. Les calculs sont effectués dans le référentiel du laboratoire (L) et dans le référentiel du centre de masse (CM).

L'application des lois de conservation de l'énergie, de la quantité de mouvement et du moment cinétique donne les énergies du projectile et de la cible après la collision ainsi que leurs angles de diffusion. Dans la plage d'énergie qui nous intéresse, un traitement classique du phénomène de la collision atomique suffit amplement.

Considérons, dans le système de référence du laboratoire, une collision binaire entre un atome de masse m_1 , de vitesse \vec{v}_0 et d'énergie E_0 et un atome de masse m_2 immobile. 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 (voir figure 2.5). Les lois de conservation de l'énergie totale et de la quantité de mouvement du système dans (L) permettent d'écrire [5, 45]

$$\frac{1}{2}m_1v_0^2 = \frac{1}{2}m_1v_1^2 + \frac{1}{2}m_2v_2^2 + Q \quad (2.1)$$

$$m_1\vec{v}_0 = m_1\vec{v}_1 + m_2\vec{v}_2 \quad (2.2)$$

En faisant la projection sur l'axe du mouvement Ox et un axe perpendiculaire Oy nous aurons :

$$\begin{cases} m_1v_0 = m_1v_1\cos\theta_1 + m_2v_2\cos\theta_2 \\ 0 = m_1v_1\sin\theta_1 - m_2v_2\sin\theta_2 \end{cases} \quad (2.3)$$

θ_1 et θ_2 étant, respectivement, l'angle de diffusion du projectile et l'angle de diffusion de l'atome cible par rapport à la direction d'incidence.

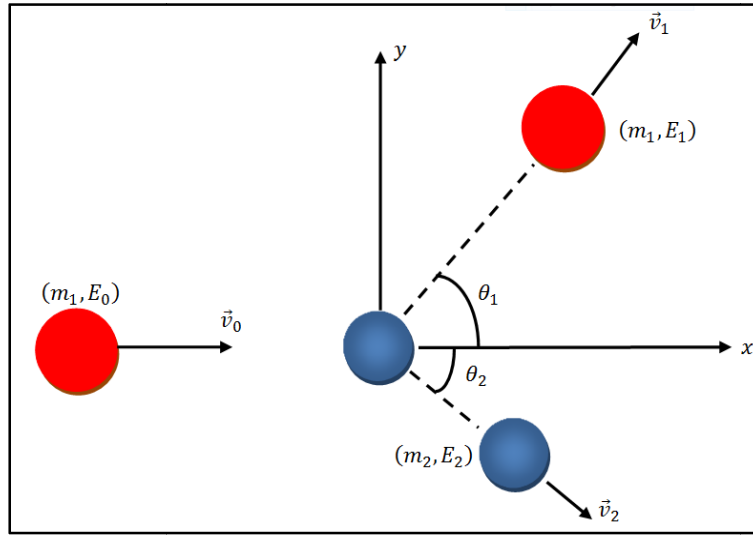


Figure 2.5. Schéma d'une collision binaire dans le système du laboratoire.

Les angles de diffusion θ_i peuvent être obtenus par un calcul direct des relations (2.1) et (2.3) :

$$\cos\theta_1 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_1}{E_0}} (1 + A) + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_0}{E_1}} \left[1 - A \left(1 - \frac{Q}{E_0} \right) \right] \quad (2.4)$$

$$\cos\theta_2 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_2}{E_0}} \frac{1+A}{\sqrt{A}} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_0}{E_2}} \frac{1}{\sqrt{A}} \frac{Q}{E_0} \quad (2.5)$$

où A est le rapport entre les masses des deux atomes en collision : $A = m_2/m_1$.

Soit \vec{v} la vitesse du centre de masse dans le référentiel du laboratoire, \vec{v}_{1c} et \vec{v}_{2c} les vitesses du projectile et de l'atome cible avant la collision dans (CM) et \vec{v}'_{1c} et \vec{v}'_{2c} leur vitesse après la collision dans le même référentiel. La loi de composition des vitesses donne [5, 45] :

$$\begin{cases} \vec{v}_{1c} = \vec{v}_0 - \vec{v} \\ \vec{v}_{2c} = -\vec{v} \end{cases} \quad (2.6)$$

D'autre part, étant donné que la quantité du mouvement du système dans (CM) est nulle, alors nous avons :

$$m_1 \vec{v}_{1c} + m_2 \vec{v}_{2c} = m_1 \vec{v}'_{1c} + m_2 \vec{v}'_{2c} = 0 \quad (2.7)$$

Tirons des relations (2.6) et (2.7) la vitesse du centre de masse et les vitesses des deux atomes en collision :

$$\vec{v} = \frac{1}{1+A} \vec{v}_0 \quad (2.8)$$

$$\vec{v}_{1c} = \frac{A}{1+A} \vec{v}_0 \quad (2.9)$$

$$\vec{v}_{2c} = -\frac{1}{1+A} \vec{v}_0 \quad (2.10)$$

Dans le référentiel (CM), la conservation de l'énergie totale se traduit par l'équation :

$$\frac{1}{2} m_1 v_{1c}^2 + \frac{1}{2} m_2 v_{2c}^2 = \frac{1}{2} m_1 v'_{1c}{}^2 + \frac{1}{2} m_2 v'_{2c}{}^2 + Q \quad (2.11)$$

À partir des relations (2.9), (2.10) et (2.11), l'énergie totale dans le système (CM) prend la forme :

$$E_r = E_{1c} + E_{2c} = \frac{A}{1+A} E_0 \quad (2.12)$$

Nous avons les relations entre les vitesses dans les deux référentiels (voir figure 2.6) :

$$\vec{v}_1 = \vec{v}'_{1c} + \vec{v} \quad (2.13)$$

La projection sur les axes Ox et Oy donne les expressions suivantes :

$$\begin{cases} v'_{1c} \sin \vartheta = v_1 \sin \theta_1 \\ v'_{1c} \cos \vartheta + v = v_1 \cos \theta_1 \end{cases} \quad (2.14)$$

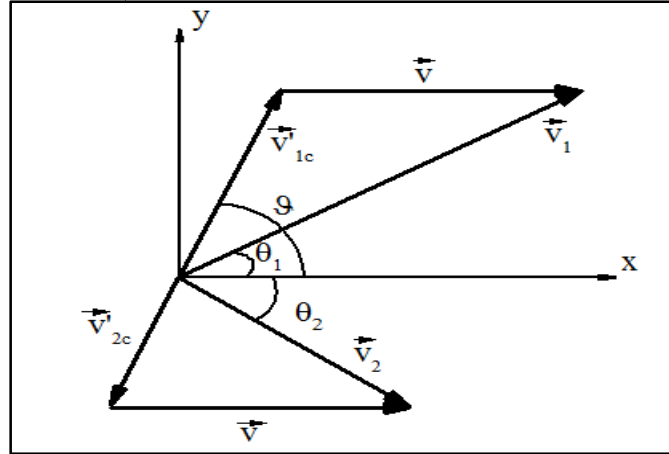


Figure 2.6. Relations entre les vitesses dans les référentiels du laboratoire et du centre de masse.

Les deux relations de (2.14) permettent de tirer l'angle de diffusion θ_1 :

$$\tan\theta_1 = \frac{\sin\vartheta}{\cos\vartheta + v/v'_{1c}} \quad (2.15)$$

Afin d'établir une relation directe entre les angles θ_1 et ϑ , utilisons, dans un premier temps, les relations (2.7), (2.9) et (2.11) :

$$\left(\frac{v'_{1c}}{v_{1c}}\right)^2 = 1 - \frac{1+A}{A} \frac{Q}{E_0} = 1 - \frac{Q}{E_r} = f^2 \quad (2.16)$$

où $f = \sqrt{1 - \frac{Q}{E_r}}$ puis les relations (2.8), (2.9) et (2.16) :

$$\frac{v}{v'_{1c}} = (fA)^{-1} \quad (2.17)$$

pour écrire (2.15) sous la forme finale :

$$\tan\theta_1 = \frac{Af\sin\vartheta}{1+Af\cos\vartheta} \quad (2.18)$$

pour l'angle de diffusion de l'atome cible θ_2 , nous obtenons par un calcul similaire :

$$\tan\theta_2 = \frac{\sin\vartheta}{1-f\cos\vartheta} \quad (2.19)$$

ou encore sous la forme \cos en utilisant la relation trigonométrique

$$\cos\theta_i = 1/\sqrt{1 + \tan^2(\theta_i)} :$$

$$\cos\theta_1 = \frac{1+Af\cos\vartheta}{\sqrt{1+2Af\cos\vartheta+A^2f^2}} \quad (2.20)$$

et

$$\cos\theta_2 = \frac{1-f\cos\vartheta}{\sqrt{2-2f\cos\vartheta-(1-f^2)\cos^2\vartheta}} \quad (2.21)$$

Ainsi, nous avons calculé les angles de diffusion du projectile et de l'atome cible après la collision dans (L) en fonction de l'angle de diffusion ϑ .

2.2.5.2. Energie transférée

Calculons, maintenant, l'énergie cinétique du projectile après la collision et l'énergie transférée à l'atome cible en fonction de l'angle de diffusion dans le système (CM). Pour se faire, calculons tout d'abord les rapports E_1/E_0 et E_2/E_0 à partir des expressions (2.4) et (2.5)

$$\frac{E_1}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} (\cos\theta_1 \pm \sqrt{A^2f^2 - \sin^2\theta_1})^2 = \left(\frac{v_1}{v_0}\right)^2 \quad (2.22)$$

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{A}{(1+A)^2} (\cos\theta_2 \pm \sqrt{f^2 - \sin^2\theta_2})^2 = A \left(\frac{v_2}{v_0}\right)^2 \quad (2.23)$$

Utilisons ensuite les expressions (2.20) et (2.21) :

$$\frac{E_1}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} \left((1+Af)^2 - 4Af\sin^2\frac{\vartheta}{2} \right) \quad (2.24)$$

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{A}{(1+A)^2} \left((1-f)^2 + 4f\sin^2\frac{\vartheta}{2} \right) \quad (2.25)$$

Donc, l'énergie transférée à l'atome cible a de (2.12) et (2.25) pour expression :

$$E_2 = T = \frac{E_r}{(1+A)} \left((1-f)^2 + 4f\sin^2\frac{\vartheta}{2} \right) \quad (2.26)$$

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

$$T_{max} = \frac{4}{1+A} E_r = \frac{4 A}{(1+A)^2} E_0 \quad (2.27)$$

Il est clair de (2.27) que plus la masse du noyau cible est grande par rapport à celle du projectile ($A = m_2/m_1$) plus la fraction maximale de l'énergie transmise diminue.

2.2.5.3. Angle de diffusion

Les grandeurs physiques qui nous intéressent dans une collision binaire telles que les angles de diffusion donnés par (2.20) et (2.21) et l'énergie transférée à l'atome cible donnée par (2.26) sont toutes exprimées en fonction de l'angle de diffusion ϑ . Nous allons, maintenant, essayer de calculer cet angle en fonction des données initiales. Désignons par $V(r)$ le potentiel d'interaction atomique qui décrit l'interaction entre le projectile et l'atome cible. Il n'est fonction que de la distance r entre les deux atomes. Écrivons l'énergie cinétique totale dans le système (CM) :

$$E_c = \frac{1}{2} m_1 v_{1c}^2 + \frac{1}{2} m_2 v_{2c}^2 \quad (2.28)$$

À l'aide des relations (2.9) et (2.10), l'expression de E_c se transforme à la forme :

$$E_c = \frac{1}{2} \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2} v_0^2 = E_r \quad (2.29)$$

L'énergie donnée par (2.29) peut être considérée comme l'énergie cinétique d'une particule de masse $\mu = m_1 m_2 / (m_1 + m_2)$ et de vitesse v_0 qui se déplace dans un champ de force central $V(r)$. En coordonnées polaires (figure 2.7), l'énergie totale d'une telle particule est donnée par :

$$\frac{\mu}{2} (\dot{r}^2 + r^2 \dot{\varphi}^2) + V(r) = E_r \quad (2.30)$$

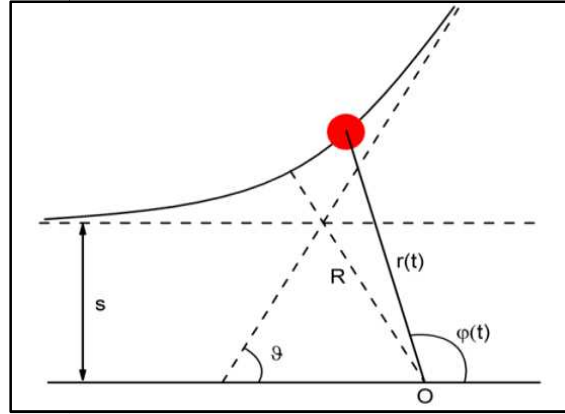


Figure 2.7. Angle de diffusion ϑ dans le référentiel du centre de masse.

La loi de conservation du moment cinétique permet d'écrire :

$$r^2 \dot{\varphi} = -v_0 s \quad (2.31)$$

où s est le paramètre d'impact qui est la distance perpendiculaire entre la trajectoire initiale du projectile et la position initiale de l'atome cible. En éliminant $\dot{\varphi}$ entre (2.31) et (2.30), nous obtenons pour la vitesse radiale l'expression:

$$\dot{r} = \pm \sqrt{\frac{2}{\mu} [E_r - V(r)] - \frac{v_0^2 s^2}{r^2}} = \pm v_0 \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_r} - \frac{s^2}{r^2}} \quad (2.32)$$

Posons :

$$g(r) = \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_r} - \frac{s^2}{r^2}} \quad (2.33)$$

La distance R pour laquelle la vitesse radiale et la fonction $g(r)$ s'annulent ($g(R) = 0$ et $\dot{r} = 0$) est appelée distance minimale d'approche.

Pour le calcul de l'angle de diffusion ϑ , nous avons de (2.31) et (2.32) :

$$\frac{d\varphi}{dr} = \frac{\dot{\varphi}}{\dot{r}} = \pm \frac{s}{g(r)r^2} \quad (2.34)$$

soit encore :

$$\int_{\pi}^{\vartheta} d\varphi = \int_{\infty}^R \frac{s dr}{r^2 g(r)} - \int_R^{\infty} \frac{s dr}{r^2 g(r)} = 2 s \int_{\infty}^R \frac{dr}{r^2 g(r)} \quad (2.35)$$

ce qui donne pour l'angle de diffusion :

$$\vartheta = \pi - 2s \int_R^\infty \frac{dr}{r^2 g(r)} \quad (2.36)$$

L'intégrale du temps est donnée par la relation [45, 46] :

$$\tau = \sqrt{R^2 - s^2} - \int_R^\infty dr \left[\frac{1}{g(r)} - \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{s^2}{r^2}}} \right] \quad (2.37)$$

Les intégrales présentes dans les relations (2.36) et (2.37) sont évaluées numériquement. Les points d'intersection des asymptotes du projectile et de l'atome cible ont pour abscisses x_1 et x_2 [46] :

$$x_1 = \frac{[(1+f)\tau + (fA-1)stan\frac{\vartheta}{2}]}{f(1+A)} \quad (2.38)$$

$$x_2 = stan\frac{\vartheta}{2} - x_1 \quad (2.39)$$

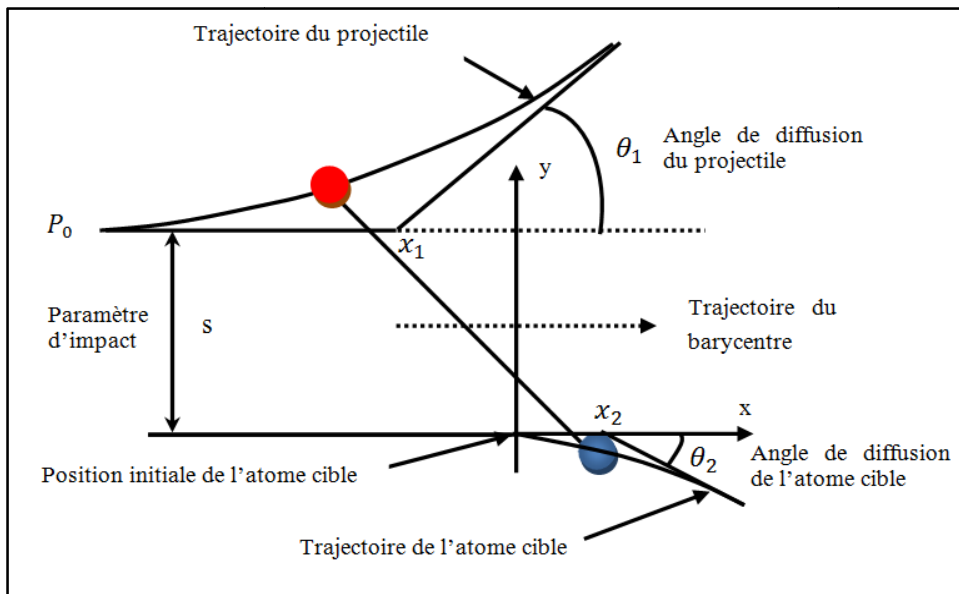


Figure 2.8. Trajectoires de deux atomes en collision dans le référentiel du laboratoire.

2.2.6. Perte d'énergie

La perte d'énergie d'une particule en mouvement dans un milieu se fait, principalement, par deux mécanismes : les collisions élastiques et les collisions inélastiques.

Les collisions élastiques ou nucléaires se rapportent aux chocs avec les noyaux du milieu alors que les collisions inélastiques traduisent l'interaction entre le projectile et les électrons atomiques du milieu conduisant à l'excitation et l'ionisation de ceux-ci.

Le pouvoir d'arrêt linéaire 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. Il est dénoté par $(-dE/dx)$. Lorsqu'on rapporte le pouvoir d'arrêt linéaire à la densité atomique N du milieu, on parle de pouvoir d'arrêt atomique :

$$S = \frac{1}{N} \left(-\frac{dE}{dx} \right) [MeV \cdot cm^2 / atome] \quad (2.40)$$

Le pouvoir d'arrêt massique est obtenu en divisant le pouvoir d'arrêt linéaire par la masse volumique ρ du milieu :

$$\left(-\frac{dE}{dx} \right)_m = \frac{1}{\rho} \left(-\frac{dE}{dx} \right) [MeV \cdot cm^2 g^{-1}] \quad (2.41)$$

2.2.6.1. Pertes d'énergie inélastiques

Le pouvoir d'arrêt, $(-dE/dx)_e$, dépend de la vitesse v du projectile et de sa charge $Z_1 e$. Trois domaines de vitesse sont à distinguer, définis par rapport à la quantité $V_B Z_1^{2/3}$ où V_B est la vitesse orbitale de Bohr donnée par $V_B = e^2 / (4\pi\epsilon_0 \hbar)$ avec e la charge élémentaire, ϵ_0 la permittivité du vide et \hbar la constante de Planck réduite.

➤ Pour des vitesses $v \gg V_B Z_1^{2/3}$, le pouvoir d'arrêt linéaire d'un milieu de numéro atomique Z_2 et de poids atomique A pour une particule chargée lourde est donné avec une bonne approximation par la formule de Bethe et Bloch établie dans le contexte de la mécanique quantique relativiste [5, 47] :

$$\left(-\frac{dE}{dx} \right)_e = NS_{BB} = \frac{e^4}{4\pi\epsilon_0^2 m_e C^2} \frac{Z_1^2 N_a \rho Z_2}{\beta^2 A} \left[\ln \left(\frac{2 m_e C^2 \beta^2}{I} \right) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 - \frac{C_K}{Z} - \frac{\delta}{2} \right] \quad (2.42)$$

où m_e est la masse au repos de l'électron, I est le potentiel moyen d'excitation de l'atome cible, N_a est le nombre d'Avogadro et $\beta = v/C$ avec C la vitesse de la lumière dans le vide,

C_K est une correction introduite pour tenir compte du fait que les électrons de la couche K sont bien liés pour pouvoir être éjectés facilement et δ est une constante de correction de la densité de charge due au fait que le champ électrique de la particule incidente polarise les atomes près de sa trajectoire et mène à la réduction de la perte d'énergie.

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

➤ Pour des vitesses $v \ll V_B Z_1^{2/3}$, la formule (2.42) n'est plus valable. Deux modèles basés sur les collisions binaires sont, habituellement, utilisés pour évaluer le pouvoir d'arrêt dans ce domaine de vitesses : le modèle de Firsov et le modèle développé par Lindhard, Scharff et Schiott (LSS).

Dans le modèle de Firsov, le projectile et l'atome-cible sont supposés composer une quasi-molécule pendant la période d'interaction. L'interaction entre les deux corps donne lieu à des échanges électroniques qui nécessitent l'acquisition d'impulsion provenant de la collision. Le pouvoir d'arrêt linéaire obtenu par Firsov est donné par [5] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = 5.15 \cdot 10^{-15} N (Z_1 + Z_2) \frac{v}{V_B} \quad (2.43)$$

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 traduisent par un transfert d'énergie au nuage électronique provoquant des vibrations thermiques au sein de celui-ci. Le pouvoir d'arrêt électronique dans ce modèle est donné par l'expression [5, 48] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = NS_{LS} = \frac{2 e^2 N a_B Z_1^{7/6} Z_2}{\epsilon_0 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2} V_B} \quad (2.44)$$

où $a_B = 0.529 \text{ \AA}$ est le rayon de Bohr. Si l'on tient compte de la relation entre l'énergie cinétique d'une particule et sa vitesse on peut réécrire la formule précédente comme suit :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = k\sqrt{E} \quad (2.45)$$

où k est une constante. Dans ce domaine de vitesses, le taux de perte d'énergie croit avec l'énergie de la particule. La relation (2.45) montre que la perte d'énergie inélastique a un caractère non local puisqu'elle est indépendante de la position relative du projectile par rapport aux atomes cibles.

➤ Dans la région des vitesses intermédiaires $v \approx V_B Z_1^{2/3}$, il est difficile d'établir une expression théorique pour le pouvoir d'arrêt. Des phénomènes d'échange d'électrons entre le projectile et les atomes du milieu se produisent. Selon Varelas et Biersack, le pouvoir d'arrêt dans cette région peut être déduit à partir de ceux des deux autres régions par une interpolation de la forme [45] :

$$\frac{1}{S} = \frac{1}{S_{BB}} + \frac{1}{S_{LS}} \quad (3.74)$$

2.2.6.2. Pertes d'énergie élastiques

Le pouvoir d'arrêt nucléaire d'un milieu pour une particule est donné par [5, 43] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T \sigma(T) dT \quad (2.46)$$

où T est l'énergie transférée à l'atome cible donnée par (2.26) et qui est susceptible de le déplacer pour créer une lacune, σ est la section efficace de diffusion et T_{min} et T_{max} sont, respectivement, l'énergie minimale et l'énergie maximale qui peuvent être transférées à l'atome cible. Lorsqu'un potentiel coulombien est utilisé pour modéliser l'interaction entre les atomes en collision, le pouvoir d'arrêt nucléaire obtenu est donné par l'expression :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = \frac{2\pi N m_1 Z_1^2 Z_2^2 e^4}{m_2 E} \ln\left(\frac{T_{max}}{T_{min}}\right) \quad (2.47)$$

Biersack, en se basant sur un potentiel écranté de type Thomas-Fermi développa pour le pouvoir d'arrêt nucléaire la relation suivante [5] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = 4\pi N Z_1 Z_2 e^2 a_{12} \frac{m_1}{(m_1+m_2)} \frac{\ln \epsilon}{2\epsilon(1-\epsilon^{-1.49})} \quad (2.48)$$

où ϵ est l'énergie réduite et a_{12} est le paramètre d'écrantage de Thomas-Fermi. Les deux grandeurs sont données par :

$$\epsilon = \frac{m_2 a_{12}}{(m_1+m_2)} \frac{E}{Z_1 Z_2 e^2} \quad (2.49)$$

$$a_{12} = \frac{0.4685}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}} \quad (2.50)$$

2.2.6.3. Perte d'énergie totale

Le pouvoir d'arrêt total d'un milieu pour une particule est la somme des pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right) = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_N + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_e \quad (2.51)$$

Les deux mécanismes de la perte d'énergie élastique et inélastique sont en compétition et leur importance relative dépend des caractéristiques du projectile et de la cible. Le ralentissement est essentiellement de nature électronique à haute énergie et il est presque exclusivement nucléaire à très basse énergie (figure 2.9) [5].

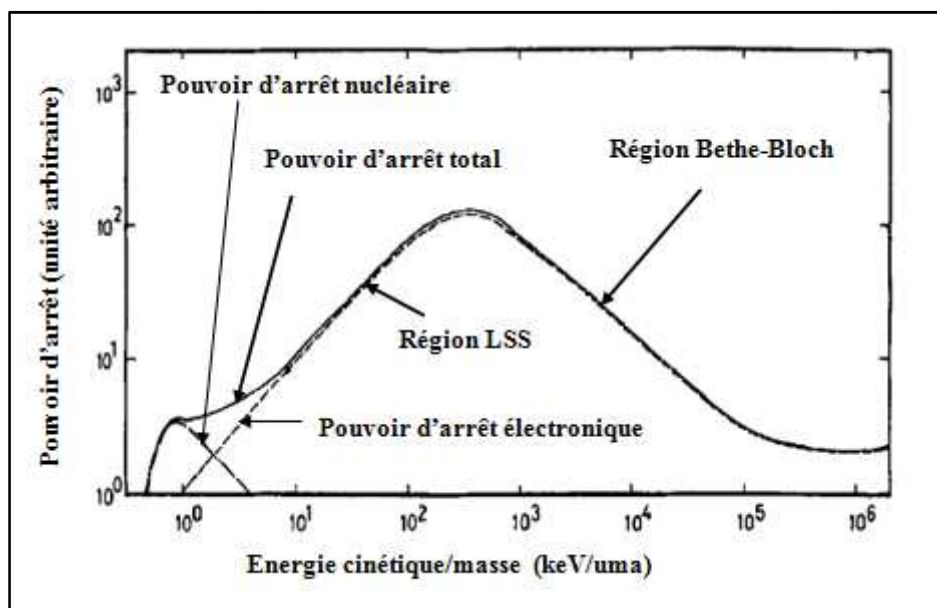


Figure 2.9. Représentation schématique du pouvoir d'arrêt des ions dans la matière.

2.2.7. *Energie seuil de déplacement*

Dans le modèle de l'approximation des collisions binaires, pour qu'un déplacement atomique donne lieu à une paire de Frenkel stable, il faut que l'énergie transmise à l'atome cible soit supérieure à une valeur, E_d , appelée énergie seuil de déplacement. La valeur de cette énergie est difficile à déterminer vu sa forte dépendance des directions cristallographiques. Pour les simulations, les valeurs moyennes de E_d tabulées par la société américaine de test des matériaux (ASTM) (pour *American Society for Testing of Materials*) sont fréquemment utilisées [49].

2.2.8. *Nombre de déplacements*

Les déplacements atomiques causés par un primaire produisent 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 balistique. Dans les simulations utilisant la BCA, une paire de Frenkel est considérée comme stable si la distance entre la lacune et l'interstitiel qui lui est associé est supérieure à une certaine distance appelée rayon de recombinaison [50, 51]. Ainsi, les positions relatives des défauts influent considérablement sur le nombre final de paires de Frenkel qui survivent à la fin de la cascade de déplacements.

Des efforts considérables ont été consentis pour développer des modèles théoriques capables de prédire avec justesse le nombre de paires de Frenkel produites dans une cascade par un primaire d'énergie initiale E . Parmi les modèles les plus connus développés à cet égard, nous citons le modèle de Kinchin-Pease (KP) et le modèle de Norgett-Robinson-Torrens (NRT).

2.2.8.1. Modèle de Kinchin-Pease

Le modèle de Kinchin-Pease est le modèle le plus simple établi sur la base de l'approximation des collisions binaires qui permet d'estimer le nombre de déplacements dans un matériau à partir de l'énergie cinétique du primaire et l'énergie seuil de déplacement. Selon ce modèle, le nombre moyen d'atomes déplacés par un primaire d'énergie initiale E est donné par l'expression [5] :

$$N_d(E) = \begin{cases} 0 & \text{si } E < E_d \\ 1 & \text{si } E_d \leq E < 2E_d \\ \frac{E}{2E_d} & \text{si } 2E_d \leq E < E^* \\ \frac{E^*}{2E_d} & \text{si } E \geq E^* \end{cases} \quad (2.52)$$

où E^* est l'énergie seuil qui délimite deux zones ; pour $E \geq E^*$ la perte d'énergie est purement électronique et pour $E < E^*$, la perte d'énergie se fait exclusivement par collisions élastiques. La dépendance du nombre de défauts générés à l'énergie du primaire est montrée sur la figure 2.10.

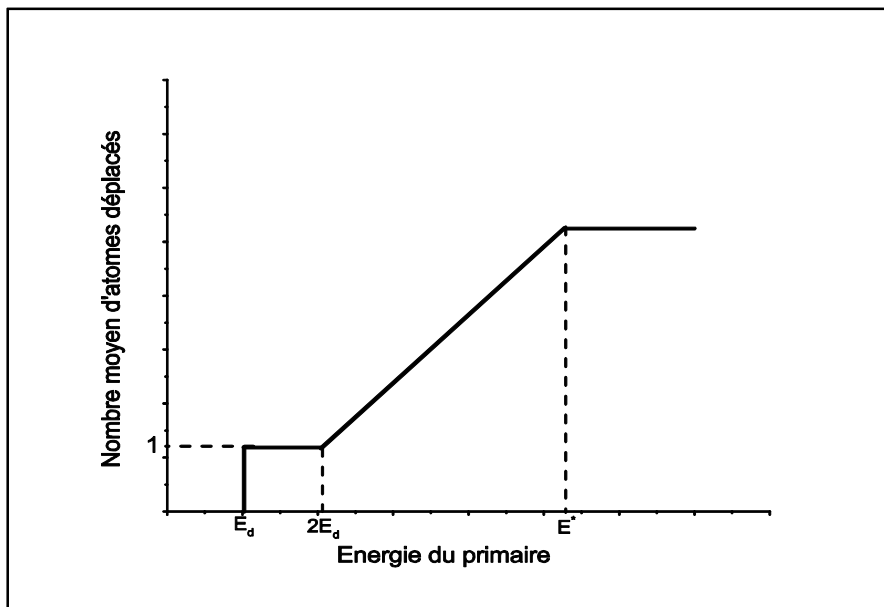


Figure 2.10. Nombre d'atomes déplacés dans le modèle de Kinchin-Pease.

Les études effectuées sur les métaux irradiés ont montré qu'il y a une surestimation du nombre de paires de Frenkel calculé à partir de la relation de Kinchin-Pease d'un facteur de 2 à 10 [5]. Des améliorations successives ont été apportées au modèle de Kinchin-Pease citons parmi elles le modèle de Norgett-Robinson-Torrens.

2.2.8.2. Modèle de Norgett-Robinson-Torrens

Le modèle de partition de l'énergie du primaire entre les pertes d'énergie électroniques et nucléaires établi par Lindhard *et al.* a permis un passage en douceur entre les deux régimes de perte d'énergie et a conduit à l'élaboration d'un modèle plus raffiné que celui de KP. C'est le modèle proposé par Norgett, Robinson et Torrens [5, 52] :

$$N_{NRT}(E) = 0.8 \frac{E_{dam}(E)}{2E_d} \quad (2.53)$$

où E_{dam} est l'énergie disponible pour le déplacement atomique. C'est l'énergie dissipée par collisions nucléaires et qui mène à la production des défauts. Elle est donnée par l'expression [52] :

$$E_{dam}(E) = \frac{E}{1+k_N g(\varepsilon_N)} \quad (2.54)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} g(\varepsilon_N) = 3.4008 \varepsilon_N^{1/6} + 0.40244 \varepsilon_N^{3/4} + \varepsilon_N \\ k_N = 0.1337 Z_1^{1/6} \left(\frac{Z_1}{A_1}\right)^{1/2} \\ \varepsilon_N = \left(\frac{A_2 E}{A_1 + A_2}\right) \left(\frac{a}{Z_1 Z_2 e^2}\right) \\ a = \left(\frac{9 \pi^2}{128}\right)^{1/3} \frac{a_B}{\sqrt{Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}}} \end{array} \right. \quad (2.55)$$

où A_1 et A_2 sont, respectivement, les nombres de masse du primaire et de l'atome cible. Une amélioration est apportée au modèle NRT en introduisant le coefficient d'efficacité du déplacement η qui peut être déterminé expérimentalement à partir de la mesure de la

résistivité du matériau. Dans ce modèle, le nombre de paires de Frenkel créées dans une cascade de déplacements initiée par un primaire d'énergie E est donné par la relation [52] :

$$N(E) = \eta N_{NRT} \quad (2.56)$$

Chapitre 3 Programme Marlowe

3.1. Introduction

Pour simuler les cascades de déplacements dans le tungstène, nous avons utilisé le programme Marlowe [53]. Ce code est basé sur le modèle de l'approximation des collisions binaires [46, 54-57]. Mis au point par M. T. Robinson au *Laboratoire National de Oak Ridge* (ORNL pour *Oak Ridge National Laboratory*, Tennessee, USA), le code a permis, en 1963, la prédiction du phénomène de canalisation dans le cuivre [58]. Il est écrit en langage Fortran et conçu pour s'exécuter sur les deux systèmes d'exploitation Windows et UNIX. Il est flexible et permet de simuler l'irradiation des matériaux à hautes énergies. En outre, son coût réduit en temps de calcul facilite l'accumulation de très grandes quantités de statistiques.

3.2. Structure du programme

Le code Marlowe recèle plus de 60 procédures. Cette structure facilite la modification, l'ajout ou l'omission de certaines parties du code. L'exécution de Marlowe comporte trois phases [53] :

- Première phase : Elle est destinée à la lecture de données qui se rapportent au matériau irradié (structure cristalline, masse atomique, numéro atomique, énergie de liaison, température du matériau et température de Debye,...) et au projectile (masse, numéro atomique, énergie cinétique, nombre de projectiles,...). L'initialisation des paramètres du modèle de calcul (paramètres du potentiel interatomique, modèle de la perte d'énergie inélastique, irradiation interne ou externe, énergie de coupure) se fait, également, dans cette phase. Ces données sont organisées dans des « NAMELIST », dans un fichier de données qui est lu par le code.
- Deuxième phase : Elle a pour but de générer les cascades, les analyser individuellement et débiter l'analyse statistique de l'ensemble des cascades.

Après la lecture des données, une cascade de déplacements est initiée par un primaire lancé à partir d'un site du réseau ou par une particule irradiante externe. Les collisions atomiques qui se produisent sont traitées dans le cadre de l'approximation des collisions binaires. Pour chaque collision binaire, le programme calcule l'angle de diffusion dans (CM) et l'intégrale du temps à l'aide de la quadrature de Gauss-Mehler, puis les angles de diffusion des deux atomes en collision dans le système (L), l'énergie transférée à l'atome cible ainsi que les abscisses x_1 et x_2 données par (2.38) et (2.39). Le nombre de collisions subies par un atome est contrôlé par une valeur maximale du paramètre d'impact spécifiée par l'utilisateur.

➤ Troisième phase : L'analyse statistique de l'ensemble des cascades est complétée et les résultats sont transcrits dans un fichier de sortie.

Les résultats comportent, entre autres, le nombre moyen de paires de Frenkel, leur distribution en fonction de la distance de séparation lacune-interstitiel, le nombre moyen de séquences de remplacements et leur distribution en longueur, l'évolution temporelle du nombre d'atomes déplacés et du nombre d'atomes en mouvement.

3.3. Description de la cible

La description du cristal est faite en donnant le type de réseau et les coordonnées cartésiennes d'un nombre réduit de sites atomiques de la maille élémentaire. Dans le cas des structures cristallines simples ; cubique, cubique centrée ou à faces centrées, les positions des sites atomiques sont générées automatiquement à partir du site à l'origine [53].

La recherche d'un partenaire pour la collision pendant le mouvement du projectile nécessite la régénération des sites du cristal de temps à autre. Ceci est fait en plaçant l'origine des coordonnées au site le plus proche du projectile et en générant une liste des sites atomiques voisins jusqu'à une distance, DMAX, appropriée et précisée dans les données. Le cristal peut être de dimensions infinies, ou finies avec une épaisseur donnée séparant deux

surfaces parallèles. Dans le cas d'irradiation par une particule externe, la surface d'incidence est définie par un système d'axes dont l'un d'eux est perpendiculaire à cette surface et pointe vers l'intérieur du cristal.

Marlowe permet de simuler des cascades de déplacements dans des milieux cristallins ou dans des milieux amorphes. La simulation d'un milieu amorphe se fait par rotation aléatoire des axes du système de référence après chaque collision. Le cristal peut inclure initialement des défauts (lacunes, interstitiels ou des impuretés). Les coordonnées de ces défauts doivent être données dans le fichier d'entrée. Les simulations peuvent être effectuées pour un cristal monoatomique, polyatomique, avec une seule couche ou plusieurs couches avec chacune sa propre structure cristalline.

3.4. Conditions d'irradiation

Pour simuler l'irradiation d'un matériau, nous avons le choix entre une irradiation interne et une irradiation externe [53] :

- Cas d'une irradiation interne : la cascade de déplacements est initiée par un primaire lancé à partir d'un site du réseau. La direction initiale du primaire soit elle est fixée par l'utilisateur en précisant les angles polaire et azimutal, soit elle est sélectionnée isotropiquement dans tout l'espace.
- Cas d'une irradiation externe : l'utilisateur peut fixer la direction initiale du projectile ou peut laisser le code la choisir aléatoirement dans un angle solide prédéterminé. Il a à choisir entre un parallélogramme ou un triangle déterminé par deux axes du plan de la surface pour désigner la zone d'impact des particules irradiantes.

Dans tous les cas de figure, le nombre de cascades à simuler, l'énergie cinétique initiale des particules irradiantes ou des primaires, leur numéro atomique et leur masse sont donnés.

3.5. Sélection des atomes cibles

À fin de sélectionner un atome pour la collision, Marlowe opère de la manière suivante : il génère les positions des atomes adjacents au site, R, du dernier atome heurté à une distance DMAX. Puis, pour chacun de ces atomes les quantités suivantes sont évaluées (voir figure 3.1) [46] :

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

$$s^2 = (\overrightarrow{\Delta x} \times \vec{\lambda}_0)^2 \quad (3.2)$$

où $\vec{\lambda}_0$ est un vecteur unitaire qui donne la direction du mouvement du projectile.

Si pour un atome $\xi > \xi_{min} \geq 0$, alors cet atome se trouve dans la bonne direction pour être un partenaire de la collision. Les atomes avec un paramètre d'impact s supérieur au paramètre d'impact maximum s_{max} précisé dans les données, sont supposés suffisamment loin de la trajectoire du projectile pour influencer son mouvement. La valeur de s_{max} est choisie de sorte à remplir les deux critères :

- il n'y a pas trop de collisions impliquant de très petits transferts d'énergie
- le projectile ne soit pas, dans aucune partie du cristal, libre de toute influence des atomes l'entourant.

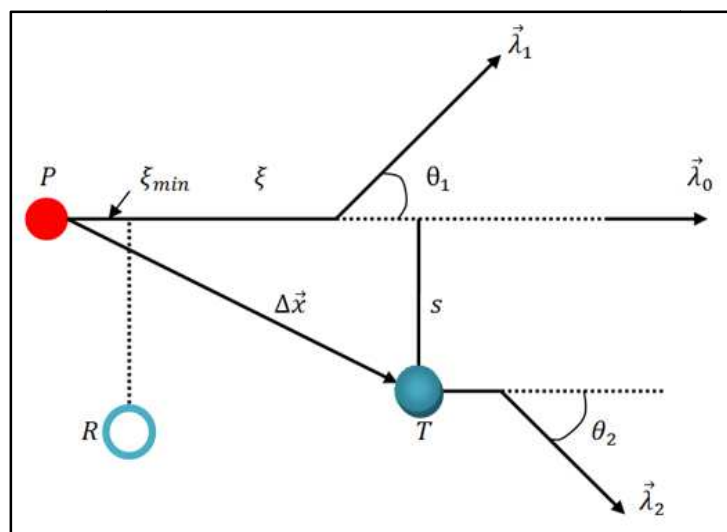


Figure 3.1. Schéma représentant les bases de la procédure de recherche des cibles.

Après la collision, le projectile est diffusé dans une direction donnée par le vecteur unitaire :

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

quant à la direction de l'atome cible elle est donnée par le vecteur unitaire :

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

La procédure de recherche d'un atome cible décrite précédemment est répétée perpétuellement jusqu'à la fin de la cascade.

3.6. Potentiels interatomiques

La simulation de l'irradiation des matériaux nécessite la connaissance des forces agissant entre les atomes de la cascade. La collision entre deux atomes est régie par des interactions entre les nuages électroniques et les noyaux des atomes. Ces interactions sont modélisées par ce que nous appelons le potentiel interatomique. Il est représenté par une fonction qui dépend, généralement, de la distance entre les deux noyaux en interaction, r , et leur charge. Des efforts considérables ont été fournis pour développer des potentiels qui peuvent décrire convenablement les interactions atomiques. A cet effet, nous trouvons dans la littérature un grand nombre de potentiels de paires qui ont été suggérés au cours des années. La justesse et la complexité du potentiel déterminent la qualité des résultats des simulations et le temps de calcul nécessaire à leur obtention.

Le package de Marlowe recèle six fonctions d'énergie potentielle. Des valeurs par défaut pour les paramètres de ces potentiels peuvent être fournies par le code si l'utilisateur le désire. La structure du programme permet à l'utilisateur d'introduire son propre potentiel, pourvu qu'il soit représenté par une fonction analytique continue et dérivable.

3.6.1. Potentiel de Molière

C'est un potentiel coulombien écranté qui reflète la diminution de la répulsion coulombienne entre les deux noyaux en interaction due à l'écrantage des charges positives par les nuages électroniques. Il est très utilisé dans la simulation de l'irradiation des matériaux. Il a pour expression [45] :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi \left(\frac{r}{a_M} \right) \quad (3.5)$$

où a_M est le rayon d'écran lié au rayon de Bohr a_B et aux numéros atomiques Z_1 et Z_2 des deux noyaux en collision et Φ est la fonction d'écran composée de trois termes en exponentielle [45] :

$$\Phi \left(\frac{r}{a_M} \right) = \sum_{i=1}^3 c_i e^{-(d_i r/a_M)} \quad (3.6)$$

avec

$$\sum_{i=1}^3 c_i = \Phi(0) = 1 \quad (3.7)$$

Les coefficients c_i et d_i sont donnés par $c_i = (0.35, 0.55, 0.1)$ et $d_i = (0.3, 1.2, 6.0)$. Ainsi le Potentiel de Molière s'écrit :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \left[0.35 e^{-\left(0.3 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.55 e^{-\left(1.2 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.1 e^{-\left(6.0 \frac{r}{a_M}\right)} \right] \quad (3.8)$$

Le paramètre d'écran utilisé habituellement pour cette fonction est celui de Firsov donné par la relation [45] :

$$a_{\text{Firsov}} = \frac{0.88534 a_B}{\left(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2}\right)^{2/3}} (\text{\AA}) \quad (3.9)$$

3.6.2. Potentiel de Ziegler, Biersack et Littmark

C'est un potentiel coulombien écranté qui était proposé par Ziegler, Biersack et Littmark. Ils ont effectué des calculs approfondis sur une large gamme de paires d'atomes

(522 paires d'atomes), et ont pu extraire une expression analytique approximative pour un potentiel moyen dit potentiel universel ou potentiel ZBL. La fonction d'écran Φ est la somme de quatre exponentielles [45] :

$$\Phi\left(\frac{r}{a_{ZBL}}\right) = \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r/a_{ZBL})} \quad (3.10)$$

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} , a pour expression [45] :

$$a_{ZBL} = \frac{0.8853 a_B}{Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23}} \quad (3.11)$$

Le potentiel ZBL s'écrit donc :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r/a_{ZBL})} \quad (3.12)$$

3.6.3. Potentiel moyen modifié de Lenz-Jensen

Le potentiel moyen modifié de Lenz-Jensen est un potentiel utilisé extensivement dans la simulation des cascades de déplacements, au même titre que les potentiels de Molière et ZBL. Il a été développé par Nakagawa et Yamamura par des calculs similaires à ceux du potentiel ZBL avec des corrections relativistes. Il a pour expression [59-63] :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2}{r} e^{-\alpha_1 \left(\frac{r}{a_{AMLJ}}\right) + \alpha_2 \left(\frac{r}{a_{AMLJ}}\right)^{3/2} - \alpha_3 \left(\frac{r}{a_{AMLJ}}\right)^2} \quad (3.13)$$

où a_{AMLJ} est le paramètre d'écran qui est fonction des numéros atomiques Z_1 et Z_2 et estimé dans le programme de la relation :

$$a_{AMLJ} = \frac{0.8853 a_B}{(Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307})^{2/3}}, \quad (3.14)$$

et les paramètres α_1 , α_2 et α_3 ont pour expressions :

$$\begin{cases} \alpha_1 = 1.51 \\ \alpha_2 = 0.763 \left(\frac{Z_1^{0.169} + Z_2^{0.169}}{Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307}} \right) \\ \alpha_3 = 0.191 \left(\frac{Z_1^{0.0418} + Z_2^{0.0418}}{Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307}} \right)^{4/3} \end{cases} . \quad (3.15)$$

Contrairement aux coefficients c_i et d_i du potentiel ZBL, les α_i du potentiel AMLJ dépendent des numéros atomiques des deux atomes en interaction.

3.6.4. Potentiel de Born-Mayer

C'est un potentiel répulsif, de forme exponentielle. Les paramètres de ce potentiel utilisés par Marlowe se basent sur les relations données par Anderson et Sigmund [45] :

$$V(r) = A_{BM} e^{-r/a_{BM}}, \quad (3.16)$$

avec

$$\begin{cases} A_{BM} = 52 (Z_1 Z_2)^{3/4} \text{ eV} \\ a_{BM} = 0.219 \text{ \AA} \end{cases} . \quad (3.17)$$

3.6.5. Potentiel de Morse

Il est composé de deux fonctions exponentielles [45] :

$$V(r) = D e^{-2\alpha(r-r_0)} - 2D e^{-\alpha(r-r_0)}. \quad (3.18)$$

Le premier terme représente la partie répulsive du potentiel, alors que le second terme domine pour les grandes valeurs de r . Le paramètre α contrôle la largeur du puits de potentiel alors que D (exprimé en eV) mesure sa profondeur. Le paramètre r_0 est la distance de séparation entre les deux atomes pour laquelle le potentiel atteint son minimum. Le potentiel devient répulsif à $r = r_0 - \ln 2/\alpha$. Les paramètres de ce potentiel pour certains matériaux sont donnés par Girifalco et Weizer [64] et Harrison [65].

3.7. Energie inélastique perdue

La perte d'énergie inélastique due à l'excitation des électrons du projectile et des atomes du milieu se divise en deux parties :

➤ Partie non locale : dans ce cas, la perte d'énergie électronique dépend uniquement de l'énergie cinétique du projectile, E . Elle est estimée, dans Marlowe, à partir de l'expression donnée par la théorie LSS [53, 66, 67] :

$$-\frac{dE}{dx} = k\sqrt{E}, \quad (3.19)$$

avec

$$k = 8\pi\sqrt{2}a_B\hbar \frac{Z_1^{7/6}Z_2}{(Z_1^{2/3}+Z_2^{2/3})^{3/2}\sqrt{m_1}} \quad (3.20)$$

➤ Partie locale : la perte d'énergie électronique dépend non seulement de l'énergie de la particule mais aussi de la distance de séparation entre le projectile et l'atome cible. Marlowe met à la disposition de l'utilisateur deux modèles pour l'évaluer. le modèle de Firsov [68] avec la correction de Robinson-Torrens [46] et le modèle de Oen-Robinson [69]. Pour la première approche, la perte d'énergie dans une seule collision est donnée par [45] :

$$Q_F(s, E) = \frac{\alpha_{12}\sqrt{E}}{[1+\beta_{12}R(s, E)]^5} (eV), \quad (3.21)$$

avec

$$\alpha_{12} = 0.61 \left(\frac{2\hbar}{\pi a_B}\right) \left(\frac{2}{m_1}\right)^{1/2} \left(\frac{9\pi^2}{128}\right)^{1/3} (Z_1 + Z_2)^{1/3} (eV^{1/2}), \quad (3.22)$$

et

$$\beta_{12} = \left(\frac{0.285}{2a_B}\right) \left(\frac{128}{9\pi^2}\right)^{1/3} (Z_1 + Z_2)^{1/3} (\text{Å}^{-1}). \quad (3.23)$$

La validité de la relation (3.21) est dictée par la condition $E < 24.97m_1Z_1^{4/3} [keV]$.

Dans le deuxième modèle, la dépendance à la distance minimale d'approche R est en exponentielle suivant la relation [45] :

$$Q_{OR}(s, E) = k\sqrt{E} \left(\frac{\gamma^2}{2\pi a_M^2} \right) e^{-\frac{\gamma R(s,E)}{a_{12}}}, \quad (3.24)$$

où a_{12} est le rayon d'écran du potentiel utilisé et $\gamma = 0.3$.

Marlowe offre la possibilité d'inclure dans la simulation les deux parties locale et non-locale de la perte d'énergie, de tenir compte de l'une d'elles seulement ou de les omettre toutes les deux.

3.8. Vibrations thermiques

Marlowe dispose d'une procédure qui traite les vibrations thermiques des atomes du réseau si désiré. Des déplacements non corrélés sont choisis aléatoirement le long des axes de coordonnées, suivant une distribution normale. Aucune corrélation n'existe entre les déplacements des atomes voisins. La variance de la distribution peut être fixée par l'utilisateur ou évaluée par Marlowe à partir du modèle de Debye [70]. Dans ce dernier cas, la donnée de la température de Debye et la température du cristal est nécessaire.

3.9. Défauts ponctuels

Dans les simulations par Marlowe, la valeur affectée à l'énergie de liaison d'un atome diffère suivant le phénomène de collision traité. Lorsqu'il s'agit d'un déplacement d'un atome du réseau, l'énergie de liaison est prise égale à l'énergie de cohésion du matériau. Sa valeur est de quelques électron-volt. Pour un phénomène de remplacement, l'énergie de liaison est de

quelques dixièmes d'électron-volt. Lorsqu'il s'agit d'un redéplacement, l'énergie de liaison est supposée être nulle. L'énergie de coupure, E_c , est prise égale à l'énergie de cohésion.

Lorsqu'il ne reste dans la cascade aucun atome avec une énergie cinétique supérieure à l'énergie de coupure E_c , le programme construit une fonction de distribution qui donne le nombre de paires de Frenkel en fonction de la distance de séparation interstitiel-lacune. 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 produits soient appariés. Lorsque l'interstitiel est issu du site avec lequel il est apparié, la paire est dite « corrélée ». Autrement, elle est dite « non-corrélée » [53].

3.10. Volume de la cascade

Il est important dans l'étude des dommages causés par irradiation, de faire une estimation du volume de la région endommagée. La méthode la plus utilisée pour estimer l'étendue spatiale des dommages consiste à substituer à la cascade un ellipsoïde défini par les longueurs de ses trois axes principaux. Le volume de la zone endommagée ou de la cascade est alors approché par le volume de l'ellipsoïde.

La méthode statistique d'analyse en composantes principales permet, à partir des positions des défauts ponctuels, de trouver la longueur et l'orientation spatiale des axes principaux de l'ellipsoïde [5, 45, 71]. Désignons par n le nombre de défauts permanents produits (assimilés à des points), par G le barycentre de ces points et par \vec{r}_k le vecteur position reliant G au point k . Soit \vec{u} un vecteur unitaire ($\vec{u} \cdot \vec{u} = 1$). La projection de \vec{r}_k sur \vec{u} est donnée par $\vec{u} \cdot \vec{r}_k$. La variance de la distribution des défauts est donnée par :

$$S^2 = \sum_{k=1}^n (\vec{u} \cdot \vec{r}_k)^2. \quad (3.25)$$

On cherche l'orientation du vecteur \vec{u} de sorte à maximiser la grandeur S^2 . En introduisant la matrice :

$$R = \sum_{k=1}^n r_{ki} r_{kj} \text{ avec } i, j = 1, 3 \quad (3.26)$$

où i, j désignent les coordonnées x, y et z du $k^{\text{ème}}$ point, l'expression peut s'écrire sous la forme :

$$S^2 = \vec{u} R \vec{u} \quad (3.27)$$

où R est une matrice 3x3 réelle, symétrique et proportionnelle à la matrice des covariances des défauts ponctuels. Pour maximiser S^2 , nous annulons les dérivées de S^2 par rapport aux composantes de \vec{u} . Ceci conduit à la relation :

$$R\vec{u} = \alpha^2 \vec{u} \quad (3.28)$$

Cette relation montre que le vecteur \vec{u} est un vecteur propre de la matrice R associé à la valeur propre α^2 (ou S^2). Les vecteurs \vec{v} et \vec{w} (qui définissent avec \vec{u} un trièdre orthogonal) sont aussi des vecteurs propres de R associés aux valeurs propres β^2 et γ^2 . La forme de la cascade de déplacement (ou de la zone endommagée) est décrite par l'ellipsoïde dont les directions des axes principaux sont données par \vec{u}, \vec{v} et \vec{w} et les longueurs de ses demi-axes sont α, β et γ . Le volume de l'ellipsoïde, et donc le volume approché de la cascade, est calculé aisément à partir des longueurs de ses demi-axes :

$$V = \frac{4}{3} \pi \alpha \beta \gamma \quad (3.29)$$

et l'anisotropie est évaluée à partir des rapports $\alpha/\gamma, \beta/\gamma$ et α/β .

L'application de l'analyse en composantes principales sur chaque cascade permet de construire une distribution des volumes et d'en tirer des conclusions concernant l'étendue des dommages causé par l'irradiation.

Chapitre 4

Résultats et Discussion

4.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous exposons les résultats de la simulation de l'irradiation du tungstène en utilisant le code Marlowe qui est basé sur le modèle de l'approximation des collisions binaires. Notre étude des dommages induits par irradiation dans le tungstène comporte le calcul du nombre d'atomes déplacés, le nombre de paires de Frenkel qui subsistent à la fin de la cascade, leur distribution spatiale, la distribution spatiale des lacunes et des interstitiels. Elle comporte, également, l'estimation de l'étendue du dégât dans le matériau en calculant le volume de la zone endommagée.

Dans la simulation de l'irradiation du tungstène, 5000 cascades ont été générées. Ce nombre important d'échantillons nous permettra d'accumuler une quantité importante de statistiques nécessaire à une étude adéquate des caractéristiques de la cascade de déplacements. Chaque cascade est initiée par un primaire (qui est un atome du réseau) lancé avec une énergie cinétique de 20 keV. L'irradiation est donc interne. La direction initiale de mouvement du primaire est sélectionnée de façon isotrope dans tout l'espace. Les potentiels utilisés dans la simulation sont des potentiels de paires de type répulsifs. Les déplacements thermiques des atomes du réseau autour de leurs positions d'équilibre sont décrits par le modèle de Debye. Toutes les collisions avec un paramètre d'impact inférieur ou égal au paramètre d'impact maximum s_{\max} sont évaluées. Pour qu'un atome du réseau heurté soit considéré en mouvement, il doit surmonter une énergie de liaison égale à l'énergie de cohésion du matériau notée E_{th} . Les énergies de liaison des atomes cibles dans les événements de remplacement et redéplacement sont dénotées, respectivement par E_r et E_b . L'énergie de coupure au-dessous de laquelle un atome est considéré immobile est désignée par E_c .

4.2. Paramètres de simulation

Le tungstène est un métal de transition lourd qui appartient à la classe des métaux réfractaires. Sa température de fusion est 3422 °C [13-15]. Il a un numéro atomique $Z = 74$ et une masse atomique $m = 183.84$ uma [12]. Il a une structure cristalline cubique centrée avec une constante du réseau $a_0 = 3.1652$ Å [72] (voir figure 4.1).

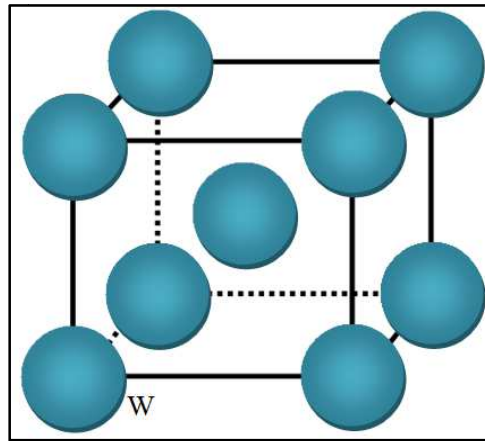


Figure 4.1. Maille élémentaire du tungstène.

Les potentiels de paires utilisés dans la simulation pour modéliser les interactions entre les atomes du tungstène sont l'approximation de Molière au potentiel de Thomas-Fermi et le potentiel universel ou ZBL. Ils sont de type répulsif et leurs expressions sont données par (3.8) et (3.12). La variation de ces potentiels en fonction de la distance interatomique est illustrée sur la figure 4.2. Il apparaît que le potentiel ZBL, pour une valeur donnée de séparation entre deux atomes, est plus répulsif que le potentiel de Molière. Les paramètres d'écran de ces potentiels sont $a_{\text{ZBL}} = 0.0870463$ Å et $a_{\text{M}} = 0.0702975$ Å. Ils sont évalués par le programme à partir des relations (3.9) et (3.11). Le nombre de collisions qu'un projectile peut faire est réglé par le paramètre d'impact maximum qui est fixé à $s_{\text{max}} = 0.71 a_0$. Les énergies de liaison utilisées sont $E_{\text{th}} = 8.9$ eV [36], $E_{\text{b}} = 0$ eV et $E_{\text{r}} = 0.2$ eV alors que l'énergie de coupure est $E_{\text{c}} = E_{\text{th}}$. Les simulations sont effectuées pour une température du

matériau de 300 K. La température de Debye du tungstène à la température ambiante est $T_D = 312$ K [73].

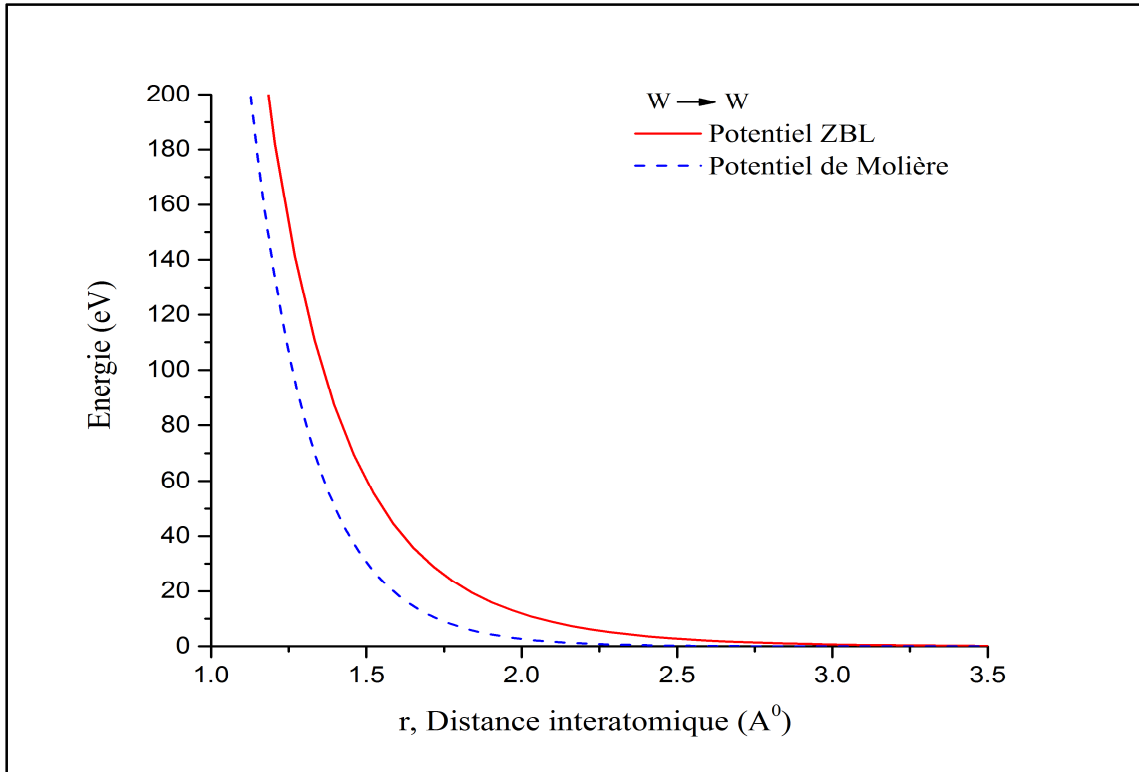


Figure 4.2. Potentiels ZBL et Molière entre deux atomes de tungstène.

4.3. Energie cinétique

La cascade de déplacements dans le tungstène est initiée par un primaire d'énergie cinétique de 20 keV lancé d'un site du cristal. Cette énergie est dissipée durant le développement de la cascade par plusieurs mécanismes. L'évolution temporelle de cette énergie en fonction du temps est montrée sur la figure 4.3. Les collisions élastiques que font le primaire et les atomes déplacés avec le reste des atomes du réseau constituent le mécanisme le plus important de la perte d'énergie. Dans chaque déplacement atomique une énergie de 8.9 eV est consommée. Une partie de l'énergie cinétique disponible dans la cascade est perdue dans les collisions inélastiques qui se traduisent par l'excitation des électrons des atomes

impliqués dans les chocs atomiques. Une dernière partie de l'énergie est dissipée dans des collisions où l'énergie transmise aux atomes cibles est inférieure à l'énergie de liaison de déplacement. Dans ce cas, l'énergie acquise est dissipée sous forme de chaleur. Tous ces mécanismes de perte d'énergie font que l'énergie cinétique initiale du primaire (20 keV) apportée à la cascade décroît avec le temps jusqu'à son épuisement. Il apparaît de la figure 4.3 que la dissipation de l'énergie dans des cascades de déplacements simulées avec le potentiel ZBL se fait plus rapidement que dans celles simulées avec le potentiel de Molière.

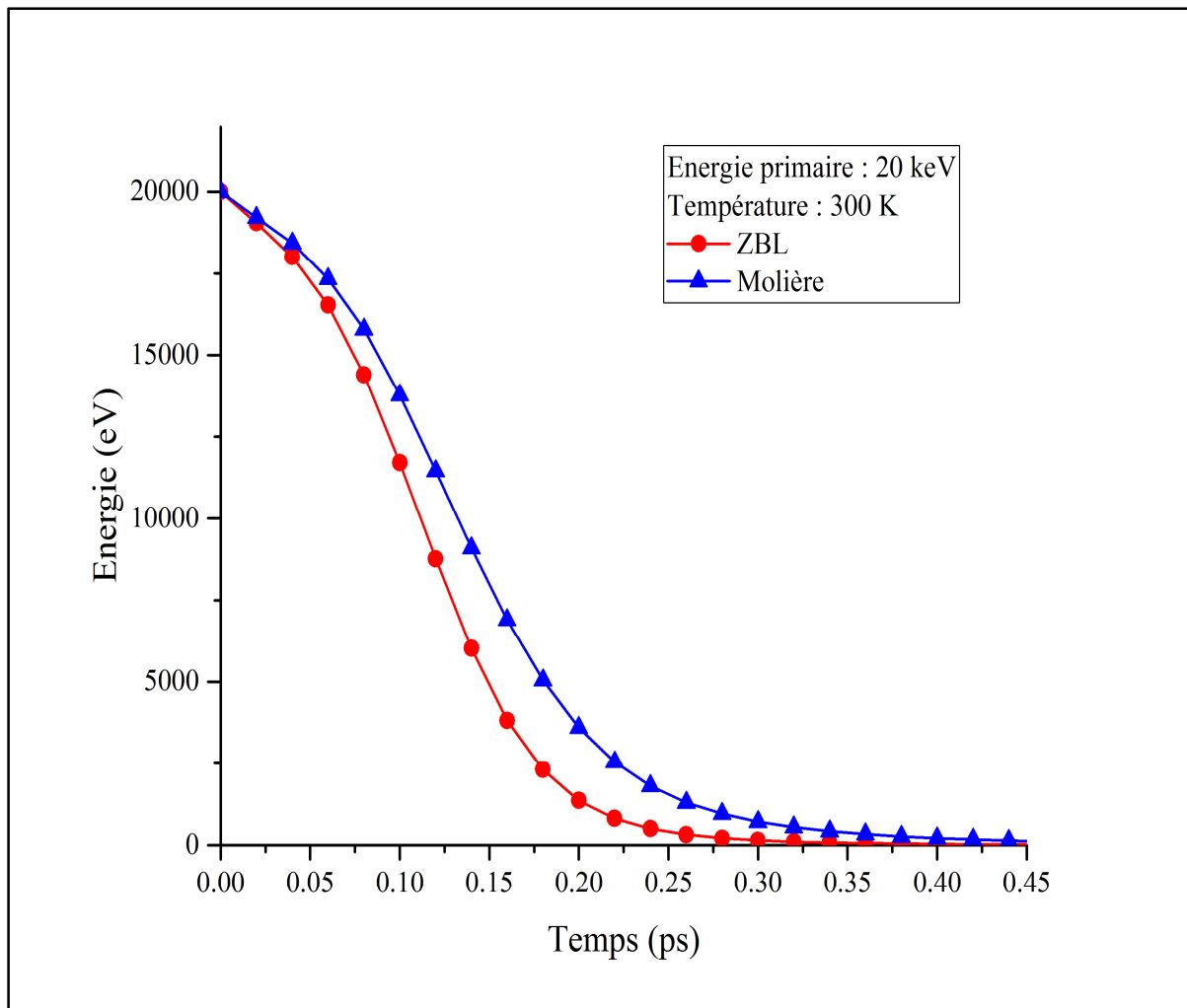


Figure 4.3. Energie cinétique d'une cascade de 20 keV en fonction du temps dans le tungstène.

4.4. Atomes en mouvement

La figure 4.4 illustre le nombre moyen d'atomes en mouvement dans le tungstène irradié en fonction du temps. On présente les résultats pour les potentiels ZBL et Molière. Durant les premiers instants du développement de la cascade, le primaire déplace les atomes du réseau se trouvant le long de son passage. Ce qui se traduit par un début d'augmentation du nombre d'atomes en mouvement. Cet accroissement s'accélère lorsque les atomes secondaires déplacent leurs adjacents et les atomes arrêtés de la cascade sont heurtés et mis en mouvement. Cette tendance se maintiendra jusqu'à atteindre un maximum à environ 0.12 ps pour les deux potentiels. Mais à cause de la dissipation de l'énergie des atomes mobiles, essentiellement, dans les collisions élastiques et l'excitation électronique, leur énergie cinétique décroît continuellement jusqu'à atteindre l'énergie de coupure au dessous de laquelle l'atome est considéré comme arrêté. On enregistre, alors, une baisse du nombre d'atomes en mouvement. On constate à partir des résultats que le développement temporel d'une cascade de déplacements dépend fortement du potentiel. Il est clair qu'un modèle de simulation avec le potentiel de Molière prédit un temps d'expansion des cascades plus long que celui avec le potentiel ZBL. Dans tous les cas, le temps d'expansion d'une cascade de déplacements ne dure que quelques dixièmes de picoseconde. Ce qui est en parfait accord avec le résultat trouvé pour la dissipation d'énergie dans la section 4.3.

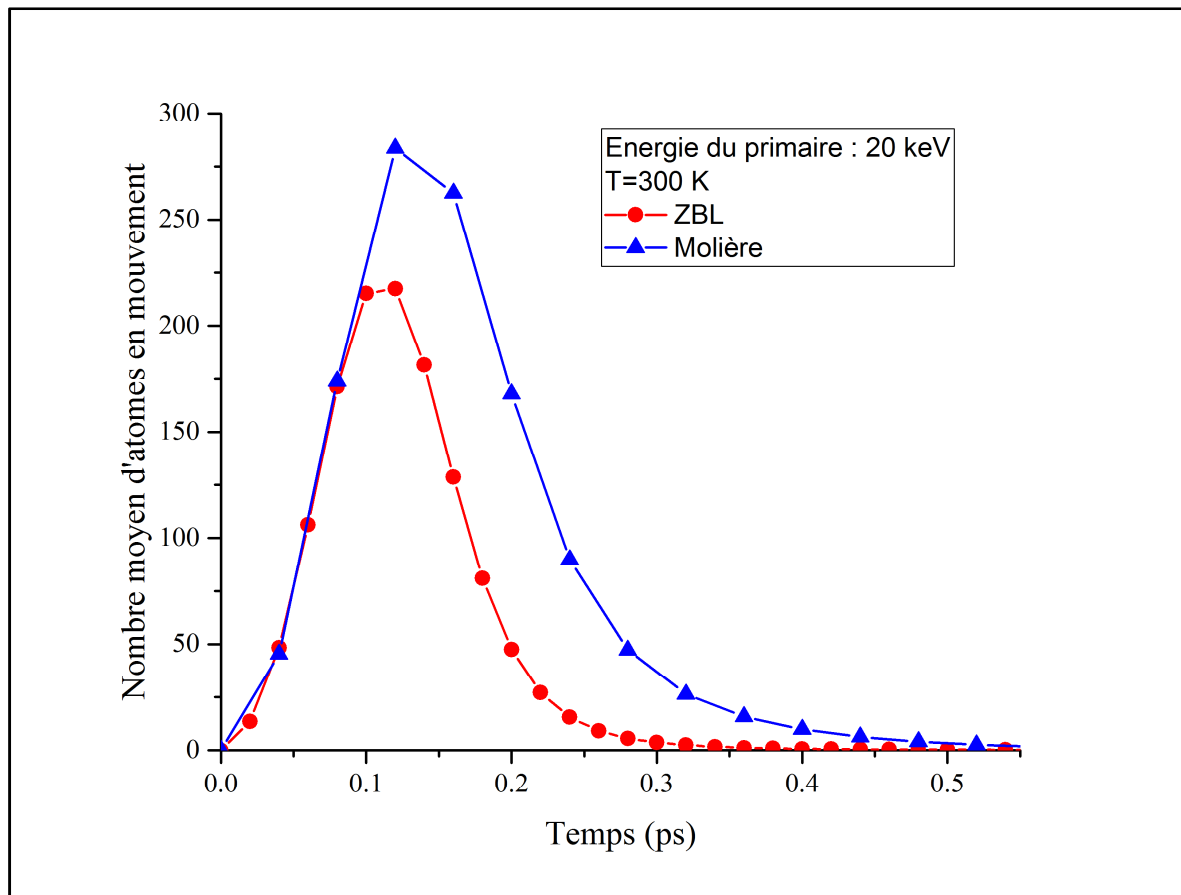


Figure 4.4. Nombre moyen d'atomes en mouvement dans une cascade de 20 keV dans le tungstène.

4.5. Atomes déplacés

Dans l'étude des défauts induits par irradiation, il est primordial de calculer le nombre d'atomes du réseau déplacés dans une cascade car ceux-ci sont à la base de la création des interstitiels et des lacunes. La figure 4.5 montre le nombre d'atomes du tungstène déplacés dans des intervalles de temps réguliers de 20 fs pour le potentiel ZBL et 40 fs pour le potentiel de Molière. Deux phases sont à distinguer dans ces histogrammes : dans la première phase, il y a une augmentation du nombre d'atomes déplacés. Ceci reflète le fait que les atomes en mouvement qui sont de plus en plus nombreux ont suffisamment d'énergie pour déloger les atomes de leurs sites du réseau. Le maximum du nombre d'atomes déplacés est atteint pour le potentiel ZBL entre les instants 0.06 ps et 0.08 ps et pour le potentiel de Molière entre 0.08 et 0.12 ps à compter du début de la cascade. À chaque collision, les projectiles perdent de leur

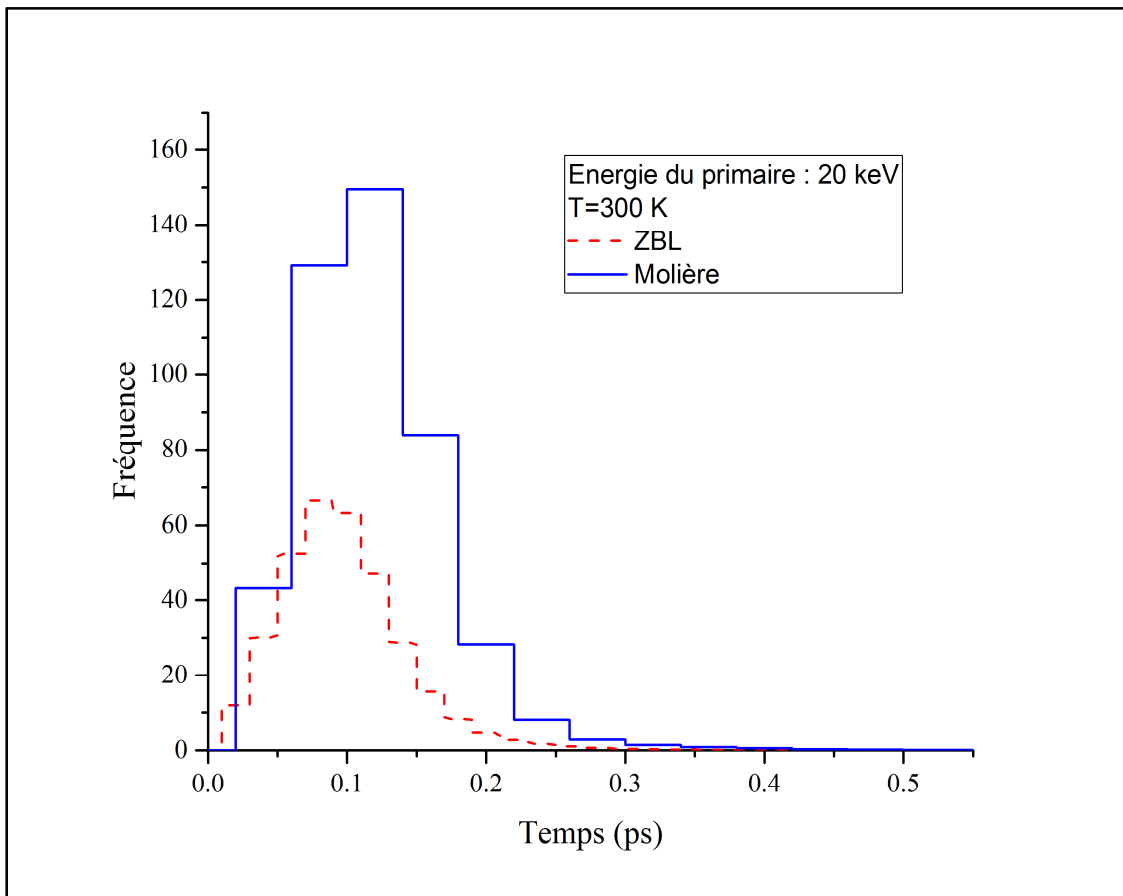


Figure 4.5. Histogramme d'atomes déplacés dans une cascade de 20 keV dans le tungstène.

énergie, ce qui fait qu'avec le temps, il y aura affaiblissement de l'énergie transmise aux atomes cibles. La deuxième phase est caractérisée par une diminution de ce nombre. À long terme, les projectiles ne seront plus en mesure de transmettre aux atomes du réseau l'énergie nécessaire pour leur déplacement. Les atomes déplacés deviendront de plus en plus rares et leur somme cumulée qui est illustrée sur la figure 4.6 finira par devenir constante dans le temps.

Les résultats de la simulation indiquent que le nombre d'atomes déplacés est notablement sensible au potentiel utilisé. En effet, à la fin de la cascade, ce nombre pour le potentiel ZBL est plus faible d'environ 25% que celui pour le potentiel de Molière.

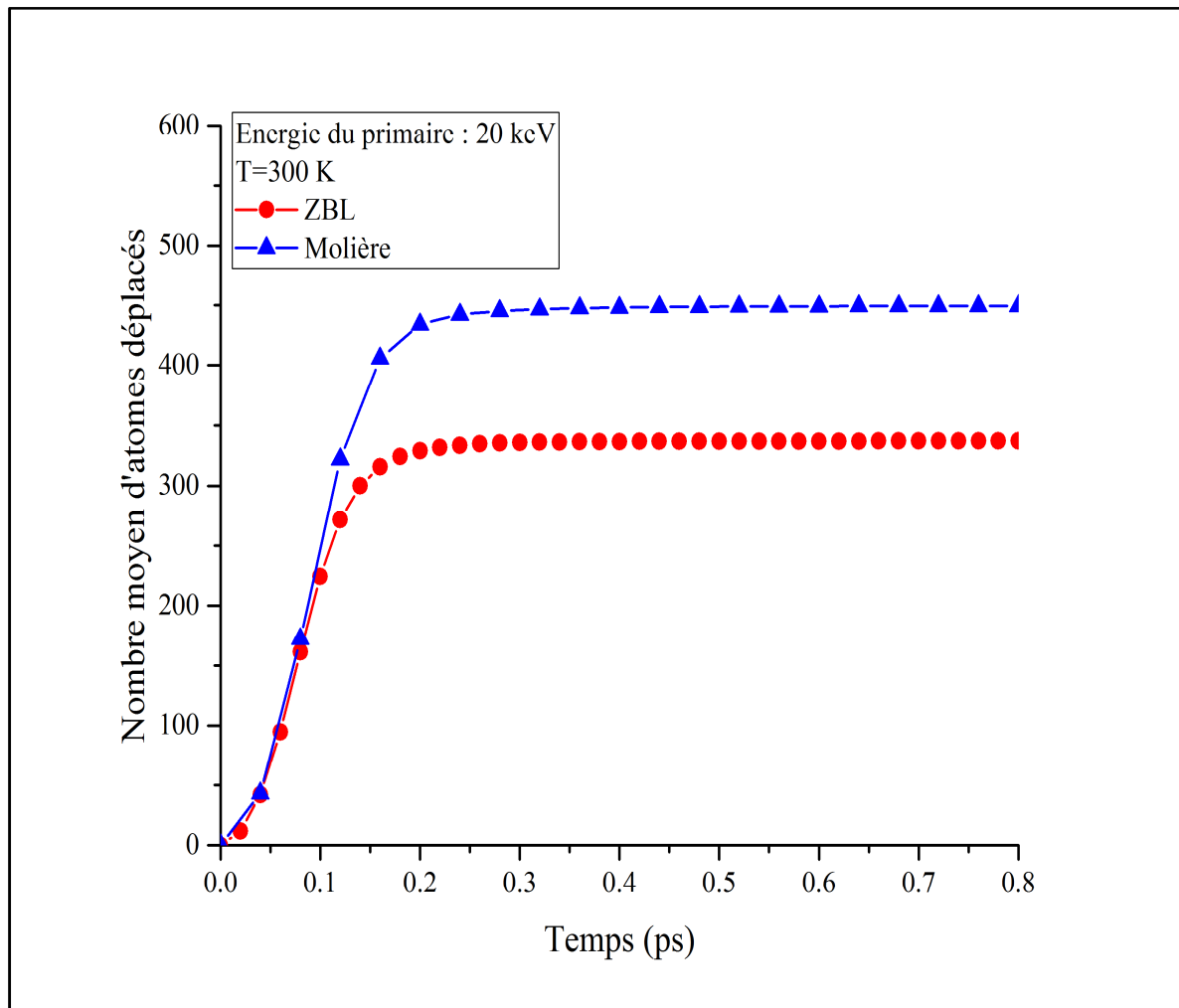


Figure 4.6. Somme cumulée d'atomes déplacés dans une cascade de 20 keV dans le tungstène.

4.6. Paires de Frenkel

À la fin de la cascade, des lacunes et des interstitiels sont produits. Ces défauts ponctuels ne constituent pas tous des défauts permanents. En effet, le destin final d'une paire de Frenkel dépend de la distance de séparation entre la lacune et l'interstitiel. Les atomes déplacés pendant la phase balistique qui s'immobilisent à proximité immédiate des lacunes se recombinent avec celles-ci. La diffusion thermique des lacunes et des interstitiels dans le matériau joue, également, un rôle important dans le processus de guérison qui se produit à la fin de la cascade. Il est bien établi dans les études des dommages induits par irradiation que

les défauts de Frenkel permanents sont beaucoup moins nombreux que les déplacements initiaux. La BCA n'intègre pas la diffusion thermique des défauts dans son modèle. Pour prendre en considération le phénomène de recombinaison, on introduit un volume d'instabilité [5, 9, 50, 51]. On considère alors qu'une paire de Frenkel est stable si la distance de séparation interstitiel-lacune, r_{VI} , est supérieure au rayon r_V de ce volume d'instabilité (appelé aussi rayon de recombinaison). Autrement, il y a recombinaison entre les membres de la paire et elle ne sera pas comptée parmi les défauts permanents. La recombinaison ainsi définie est athermique et isotrope.

À partir des positions des défauts, Marlowe construit une fonction de distribution des paires de Frenkel en fonction de la distance de séparation r_{VI} . Elle représente, pour une valeur donnée de r_{VI} , le nombre de paires de Frenkel de distance de séparation supérieure à r_{VI} . Une telle fonction est construite pour les paires corrélées et les paires non corrélées. Les résultats montrent clairement que les paires de Frenkel corrélées sont en nombre négligeables par rapport aux paires non corrélées. Ceci traduit le fait que la plupart des atomes déplacés ont terminé leurs parcours loin de leurs sites d'origine.

La figure 4.7 montre le nombre total de paires de Frenkel (corrélées et non corrélées) en fonction de la distance de séparation r_{VI} pour les potentiels ZBL et Molière. On constate une diminution rapide du nombre total de paires de Frenkel lorsque r_{VI} augmente. Ainsi, un nombre conséquent de défauts est éliminé pour des valeurs faibles de r_{VI} . Ceci indique qu'un grand nombre d'interstitiels sont immobilisés très proches des lacunes.

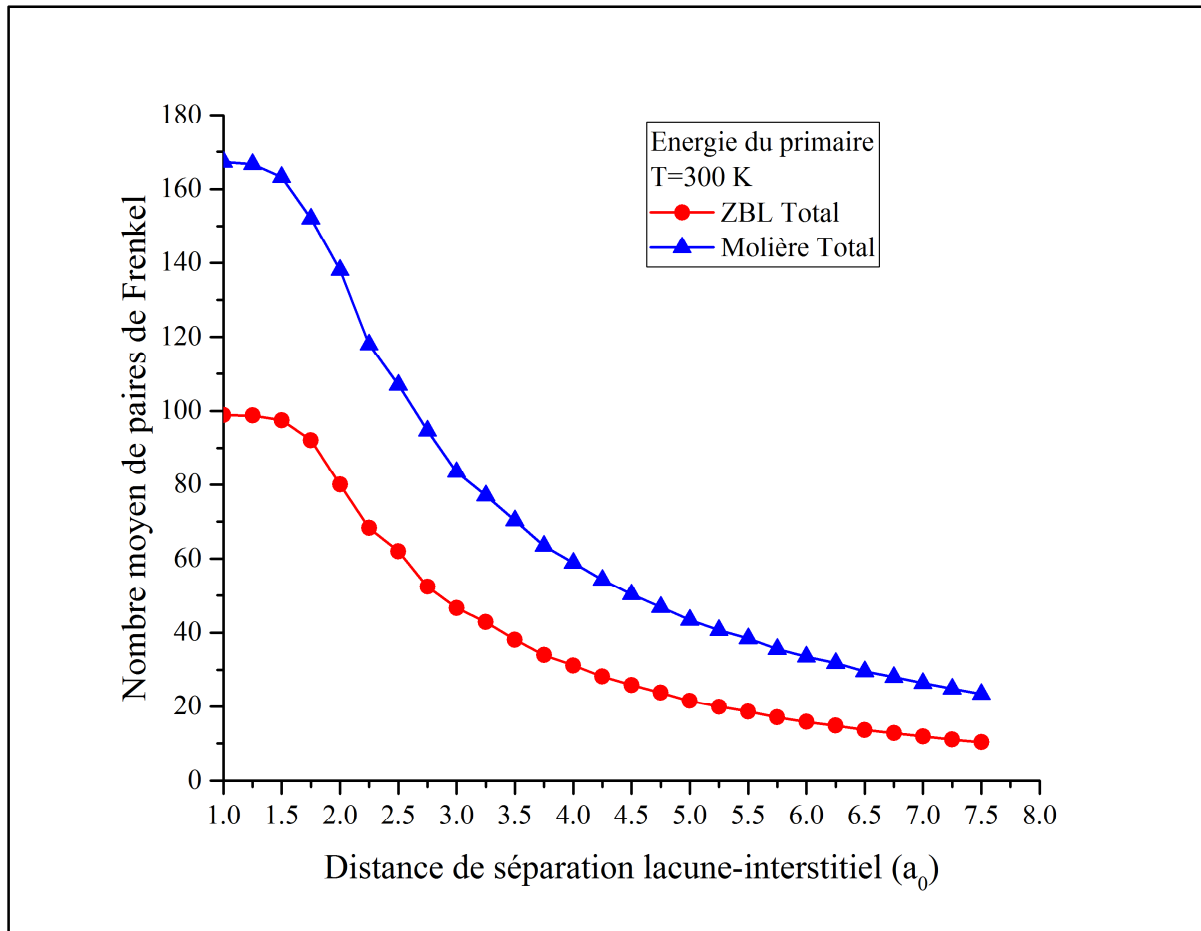


Figure 4.7. Nombre total de paires de Frenkel dans une cascade de 20 keV dans le tungstène.

Afin de déterminer avec précision le rayon de recombinaison, nous avons utilisé le nombre de paires de Frenkel stables calculé par Caturla *et al.* [21] en utilisant la dynamique moléculaire. Selon leurs résultats, un primaire lancé avec une énergie cinétique de 20 keV produit en moyenne 18 paires de Frenkel permanentes dans le tungstène. Nous avons essayé de reproduire le même résultat en changeant le rayon de recombinaison dans Marlowe. Nous avons accumulé les statistiques pour 5000 cascades et ce pour les deux potentiels. Les meilleurs résultats sont obtenus pour les rayons de recombinaison $5.30a_0$ et $8.50a_0$ respectivement pour les potentiels de ZBL et Molière. Pour le premier potentiel, sur un nombre moyen de 337 atomes déplacés (et lacunes), il y a 5.34% seulement qui constituent des défauts de Frenkel permanents. Pour le potentiel de Molière, le taux est 4%. Ceci indique

que la plupart des défauts ponctuels créés dans la phase balistique ne survivent pas à la recombinaison.

4.7. Séquences de remplacements

Les séquences de remplacements est un phénomène qui se produit dans les matériaux irradiés à structure cristalline ordonnée le plus souvent à basse énergie et suivant les rangées atomiques à bas indices. Dans le cas du tungstène, elles emportent à elles seules 32% de l'énergie initiale du primaire dans le cas du potentiel ZBL. Lorsque le potentiel de Molière est utilisé, le taux est d'environ 37%. La longueur d'une séquence est définie par le nombre de remplacements effectués dans cette séquence. Lorsque les RCS sont longues, elles peuvent contribuer efficacement à la production des paires de Frenkel stables. En effet, dans ce cas, le dernier atome de la séquence est amené dans une position interstitielle lointaine de la lacune créée au début de la séquence. Ainsi, la recombinaison des deux défauts devient moins probable.

Nous avons étudié, dans le cas de l'irradiation du tungstène, la distribution en longueur des séquences de remplacements. Les résultats des simulations sont portés sur la figure 4.8. Ils montrent que les longueurs des RCS sont influencées par le potentiel. Elles sont clairement plus nombreuses et plus longues pour le potentiel de Molière. Toutefois les RCS ne se propagent pas sur de longues distances dans le tungstène. Pour une cascade de 20 keV simulée avec le potentiel ZBL, les séquences de longueurs 3 et 4 ne représentent que 4.43 % et 2.02 % du nombre total des RCS produites, respectivement. Pour un modèle de simulation avec le potentiel de Molière, les taux des séquences de longueurs 3 et 4 sont respectivement 7.20% et 3.84%.

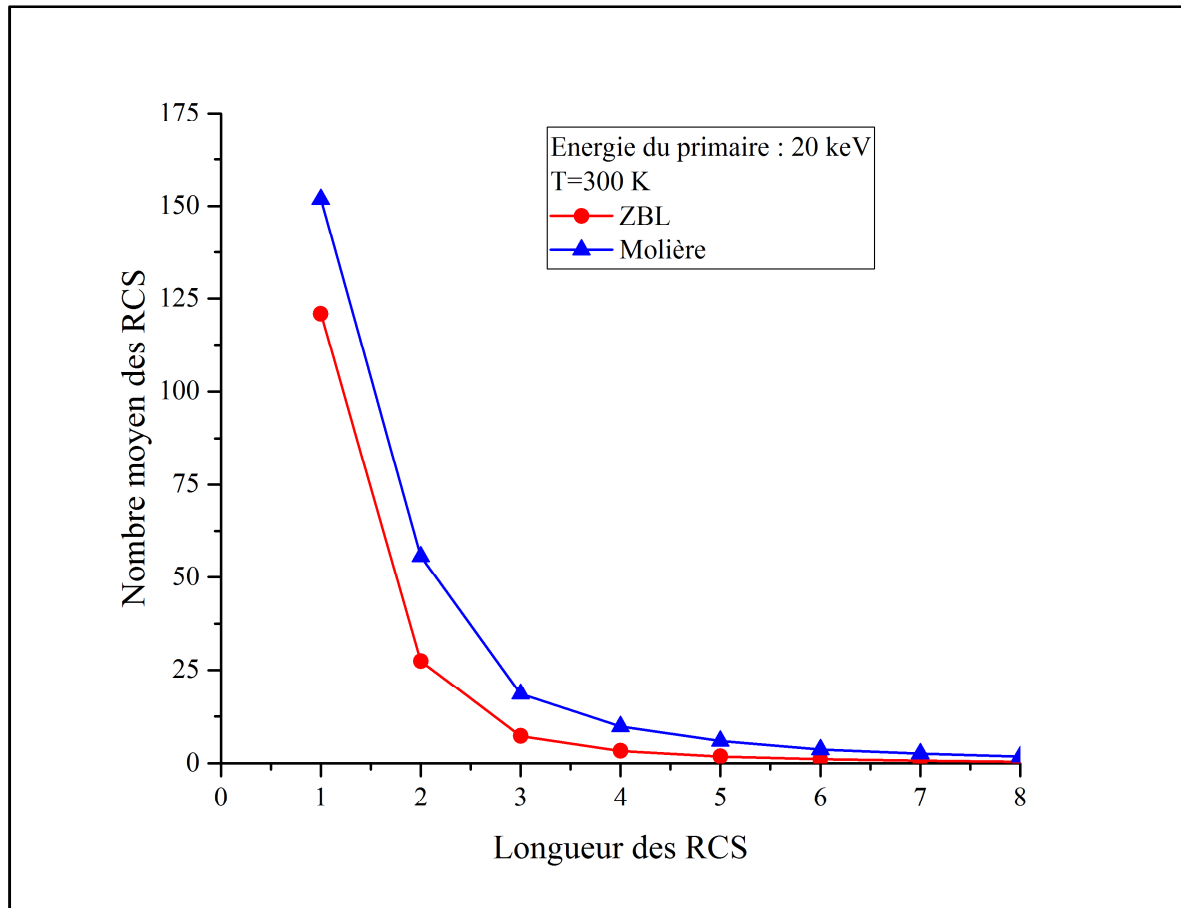


Figure 4.8. Distribution des RCS en fonction de leur longueur dans le tungstène.

4.8. Distribution spatiale des défauts

La répartition spatiale des défauts ponctuels produits suite à l'irradiation d'un matériau est une question qui a été étudiée analytiquement par Brinkman [74]. C'était le premier, en 1954, à proposer le concept de cascade de déplacements. Peu après, Seeger a suggéré qu'une particule énergétique traversant un milieu matériel crée durant son passage une région fortement endommagée et très chaude [75]. Cette région est composée d'une zone centrale riche en lacunes, et d'une périphérie formée principalement d'interstitiels.

Marlowe permet, à partir des positions des lacunes et d'interstitiels, d'examiner la configuration spatiale finale d'une cascade de déplacements. La figure 4.9 donne une représentation visuelle de la distribution spatiale des défauts permanents d'une cascade de déplacements de 20 keV dans le tungstène. On retrouve bien l'image de Brinkman. Il y a

séparation entre les deux types de défauts ponctuels. Les lacunes occupent majoritairement une région centrale qui est le cœur de la cascade. Elles sont entourées par une couronne peuplée par les atomes déplacés.

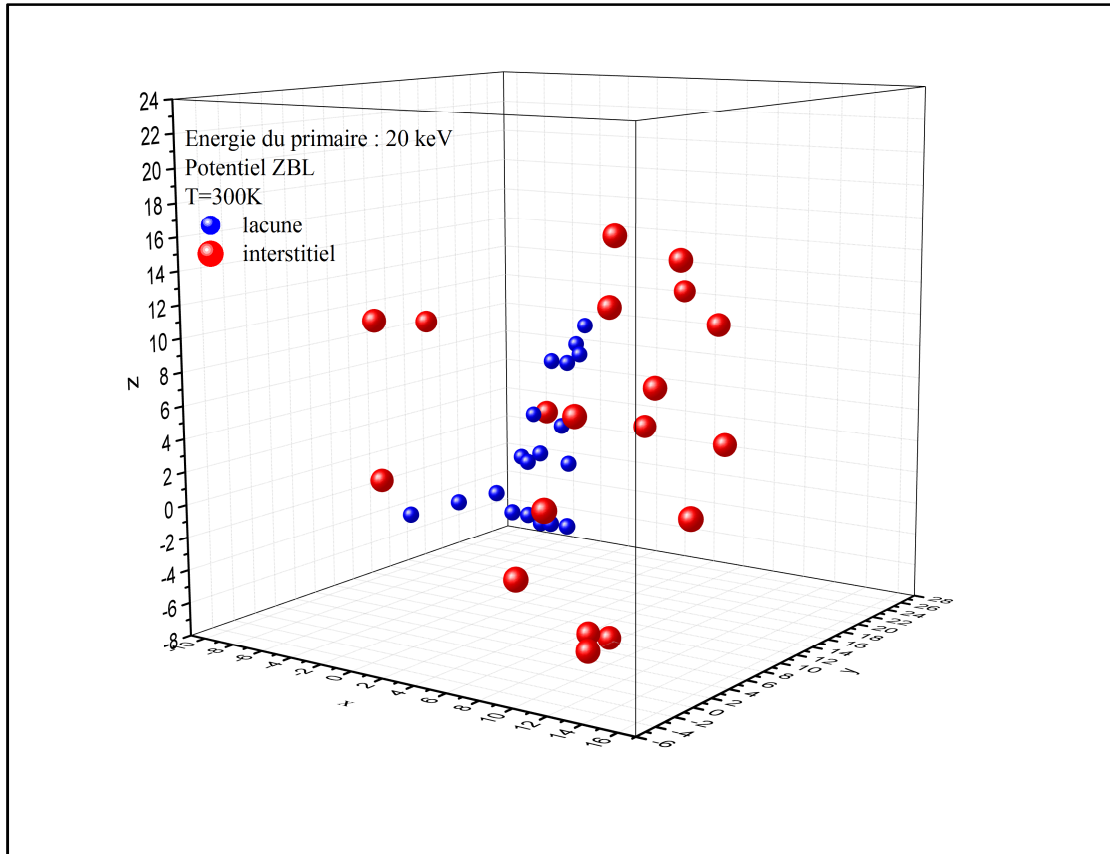


Figure 4.9. Distribution spatiale des défauts permanents dans une cascade de 20 keV dans le tungstène.

4.9. Volume de la cascade

Pour estimer l'étendue spatiale des dommages induits par irradiation du tungstène, nous avons fait recours à la technique d'analyse en composantes principales. Appliquée à chacune des 5000 cascades de déplacements, elle permet d'associer à chaque cascade un ellipsoïde. Le volume de la cascade est approché par le volume de l'ellipsoïde. Une distribution des volumes peut être faite pour l'ensemble des 5000 cascades.

La figure 4.10 illustre de telles distributions obtenues pour des primaires de 20 keV pour les potentiels ZBL et Molière. Nous constatons que les deux distributions s'écartent

d'une distribution normale. Elles sont larges et asymétriques avec des queues étirées vers les volumes les plus élevés. Les volumes sont dispersés sur une large plage de valeurs montrant une forte variabilité. La différence entre les volumes moyens et les volumes les plus probables est significative. La différence entre les configurations finales des cascades initiées avec les mêmes conditions initiales peut être attribuée au caractère aléatoire des collisions atomiques. Nous constatons, également, que les distributions sont notablement sensibles au potentiel interatomique utilisé. Il apparaît que l'utilisation du potentiel ZBL dans la simulation conduit à des cascades moins volumineuses que si l'on utilisait le potentiel de Molière. L'intervalle de la classe modale de la distribution avec ZBL est 400 à 450 a_0^3 , alors qu'il est pour le cas du potentiel de Molière 900 à 950 a_0^3 .

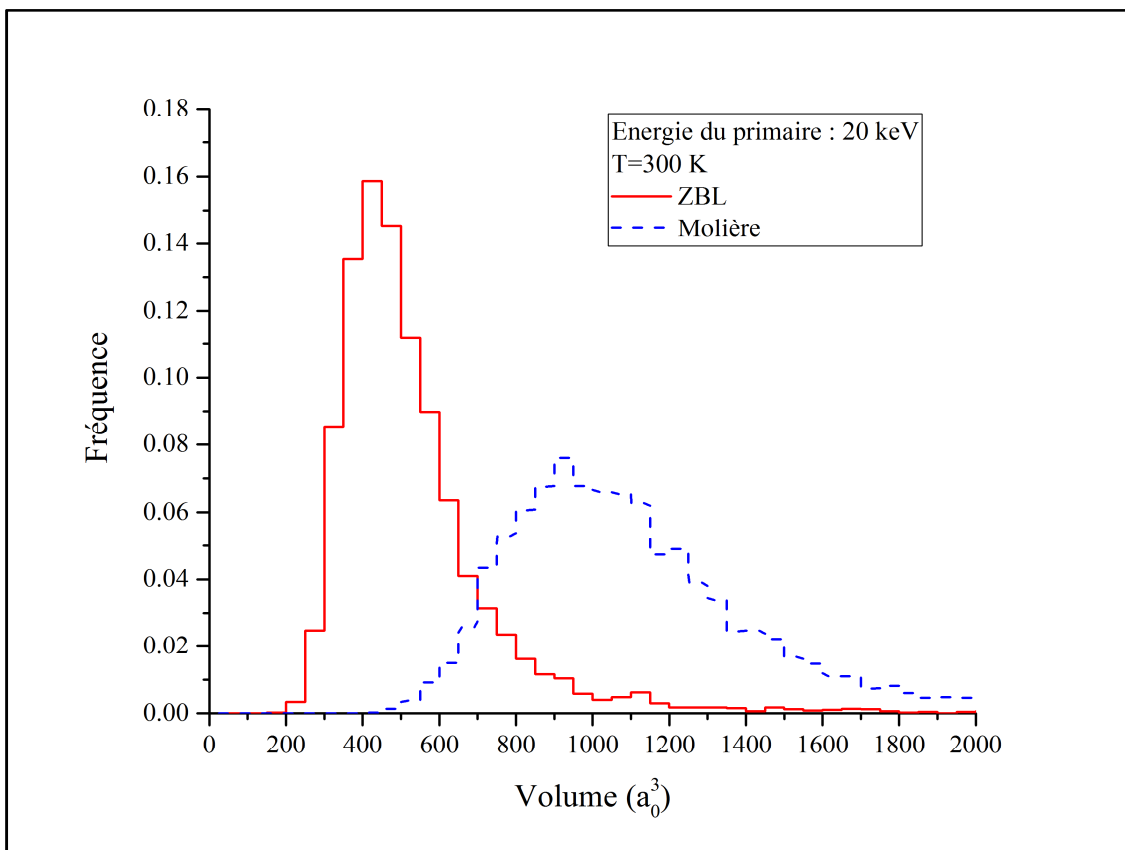


Figure 4.10. Distributions de volumes dans l'irradiation du tungstène par un primaire de 20 keV.

Conclusion générale

Conclusion générale

Le tungstène est un métal de transition réfractaire doté de propriétés physiques et chimiques attrayantes qui trouvent des applications dans de domaines très variés, notamment l'aérospatiale et le nucléaire. Dans cette étude, nous avons essayé de connaître la réponse de ce matériau lorsqu'il est exposé à des radiations. Nous avons examiné précisément la production des défauts ponctuels, leur distribution spatiale et le volume de la région endommagée par l'irradiation. Pour parvenir à nos objectifs, nous avons simulé l'irradiation de ce métal en générant des cascades de déplacements par le programme Marlowe. Le modèle sur lequel se base ce code est l'approximation des collisions binaires. Il permet par sa rapidité d'accumuler une quantité importante de statistiques nécessaires à une étude adéquate des caractéristiques des cascades. Les cascades sont initiées par des primaires lancés à partir d'un site du réseau par une énergie cinétique de 20 keV. Les potentiels de paires utilisés pour modéliser les interactions entre les atomes du tungstène sont le potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark et le potentiel de Molière. La perte d'énergie électronique est estimée par le modèle LSS.

Les résultats des simulations indiquent que la fraction des atomes déplacés qui survivent à la recombinaison est très petite. Ce qui montre que la majorité des atomes déplacés finissent leur parcours à proximité des sites vacants. La configuration spatiale des cascades confirme l'image de Brinkman, à savoir la formation d'une zone centrale dépeuplée d'atomes entourée par une couronne constituée d'interstitiels. Les séquences de remplacements se propagent sur de courtes distances dans ce matériau. Les distributions de volumes sont caractérisées par une asymétrie prononcée. La dépendance de diverses quantités étudiées au potentiel est notable. Il apparaît qu'un modèle de simulation avec le potentiel de

Molière prédit plus d'atomes déplacés, des séquences de remplacements plus longues et des cascades plus volumineuses qu'un modèle de simulation avec le potentiel ZBL.

Au terme de cette étude, nous espérons avoir apporté une contribution appréciable à l'étude des défauts induits par irradiation dans le tungstène. Nous espérons qu'elle aidera à la compréhension des mécanismes de formation des défauts dans ce matériau. Il est intéressant de l'étendre à des domaines d'énergies plus élevées, d'examiner la formation des amas et leur évolution en des dislocations et des cavités et leurs effets sur le vieillissement du matériau.

Références bibliographiques

Références bibliographiques

- [1] H.L. Olesen, *Radiation effects on electronic systems*, Plenum Press New-York, 1966.
- [2] R.D. Schrimpf, D.M. Fleetwood, *Radiation Effects and Soft Errors in Integrated Circuits and Electronic Devices*, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 2004.
- [3] Y. Piccin, *Durcissement par conception d'ASIC analogiques*, Thèse de Doctorat, Université de Bordeaux, France, 2014.
- [4] R. Durand, *Modélisation des effets de dose dans les circuits intégrés en environnement spatial*, Thèse de Doctorat, Université de Toulouse, France, 2007.
- [5] A. DJAAFRI, *Etude des dommages créés dans le tantale (Ta) et les composés TaC et Ta₂O₅ par l'approximation des collisions binaires (BCA)*, Thèse de Doctorat, Université Djillali LIABES de Sidi-Bel-Abbes, Algérie, 2018.
- [6] M. Labbe, *Etude par microscopie électronique des cavités formées par irradiation aux neutrons rapides dans le cuivre pur et allié*, Division de métallurgie et étude des combustibles nucléaires, Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, France, Rapport CEA-R-4510, 1974.
- [7] Y. Adda, J.P. Mustelier, Y. Quéré, Comportement de l'uranium sous irradiation, A Conf. 28/P/62 Genève, Rapport CEA-R 2671, 1964.
- [8] C.H. de Novion, *Effets d'irradiation dans les matériaux (métaux, alliages, verres)*, 26^e Colloque de Métallurgie, Saclay, Paris, 1984.
- [9] A. Dunlop, F. Rullier-Albenque, C. Jaouen, C. Templier, J. Davenas, *Materials under Irradiation, Solid State Phenomena*, vol. 30-31, Trans. Tech. Publications, Aedermansdorf (Suisse) 1993.
- [10] X. Han, *Modélisation de la fragilisation due au gonflement dans les aciers inoxydables austénitiques irradiés*, thèse de Doctorat, École nationale supérieure des mines de Paris, 2012.
- [11] J.L. Boutard, *Endommagement des alliages métalliques par des neutrons rapides*, *Reflets de la physique* **38**, 17 (2014).
- [12] J. Meija, T. B. Coplen, M. Berglund, W. A. Brand, P. De Bièvre, M. Gröning, N. E. Holden, J. Irrgeher, R. D. Loss, T. Walczyk, T. Prohaska, *Pure and Applied Chemistry*, **88**, 265 (2016).
- [13] R.E. Bedford, G. Bonnier, H. Maas, F. Pavese, *Metrologia*, **33**, 133 (1996).
- [14] J.V. Nicholas, D.R. White. *Measurement of the Thermodynamic Properties of Single Phases*. Ed. A.R. H. Goodwin, W.A. Wakeham, K. N. Marsh, Elsevier Science, Amsterdam 2003.

- [15] D.R. Lide, *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 88th edition. Boca Raton, Florida: Taylor & Francis Group, 2008.
- [16] G. Fohr, B. Fortemps, T. Janny, R. Kane, *Evaluation des risques sanitaires liés au tungstène*, Rapport de formation d'ingénieur sanitaire, Ecole Nationale de Santé Publique, Rennes, France, 2004.
- [17] Budavari, S.; 1996;The Merck Index, 12th ed.; Merck and Co., Inc, Whitehall, NJ.
- [18] HSDB; *Tungsten, elemental*, HSDB No.5036, 2002. (disponible sur Internet à: <http://toxnet.nlm.nih.gov/cgi-bin/sis/search.>)
- [19] S. Peterson, *Tungsten: One alternative to a risky 'favorite round'?*, The Christian Science Monitor, April 30, 1999.
(disponible sur Intrenet à: <http://www.csmonitor.com/durable/1999/04/30/p8s2.htm>)
- [20] S. Peterson, *Depleted uranium concerns boost nonradioactive bullet*, The Christian Science Monitor, January 18, 2001.
(disponible sur Internet à:<http://www.csmonitor.com/durable/2001/02/18/p7s1.htm>)
- [21] J. M. Caturla, T. D. de la Rubia, M. Victoria, R. K. Corzine, M. R. James, G. A. Greene, *Journal of Nuclear Materials*, **296**, 90 (2001).
- [22] C.H.M. Broeders , A.Y. Konobeyev, *Journal of Nuclear Materials*, **336**, 201 (2005).
- [23] J. Fikar, R. Schäublin, *Journal of Nuclear Materials*, **386–388**, 97 (2009).
- [24] W. Takeuchi, Y. Yamamura, *Radiat. Eff.* **71**, 53 (1983).
- [25] A. Kuzmichev, V. Perevertaylo, L. Tsybulsky, O. Volpian, *J. Phys. Conf. Ser.* **729**, 012005 (2016).
- [26] T.T. Nuver, H. Rudolph, P.A. Zeijlmans van Emmichoven, A. Niehaus, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **164-165**, 785 (2000).
- [27] A. De Backer, A. Sand, C.J. Ortiz, C. Domain, P. Olsson, E. Berthod, C.S. Becquart, *Phys. Scr.* 2016 (T167), 014018 (2016).
- [28] M. Hou, C.J. Ortiz, C.S. Becquart, C. Domain, U. Sarkar, A. De Backer, *J. Nucl. Mater.* **403**, 89 (2010).
- [29] L. Bukonte, F. Djurabekova, J. Samela, K. Nordlund, S.A. Norris, M.J. Aziz, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **297**, 23 (2013).
- [30] A. Djaafri, A. Kadoun, M. Driss-Khodja, A. Elias, T. Djaafri, *Acta Physica Polonica A* **133**, 39 (2018).
- [31] A. Djaafri, A. Kadoun, M. Driss-Khodja, *Arab. J. Sci. Eng.* **43**, 3837 (2018).
- [32] C. Ngô, H. Ngô, *Introduction à la physique des semi-conducteurs*, Ed. Dunod, Paris, 1998, p. 65.

- [33] M. Dupeux, *Aide-mémoire science des matériaux*, Dunod, Paris, 2008.
- [34] P. Pavlov, A. Khokhlov, *Physique du solide*, Ed. Mir, Moscow, 1989.
- [35] J.P. Baïlon, J.M Dorlot, *Des Matériaux*, Ed. Presses Internationales Polytechnique, 2002.
- [36] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 8th edition, John Willey & Sons, Inc, 2005.
- [37] M. Gerl, J.P. Issi, *Physique des Matériaux*, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 1997.
- [38] R. Collongues, *Le solide cristallin*, Presses Universitaires de France, 1973.
- [39] L. Smart, *Introduction à la chimie de l'état solide*, Dunod, 1997.
- [40] J.L. Martin, *Dislocations et plasticité des cristaux*, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 2000.
- [41] J.W. Jr Morris, *Defects in Crystals*, In: *Materials Science and Engineering: An Introduction*. Ed. Wiley, 2013, pp. 76–107.
- [42] 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.
- [43] 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.
- [44] G.S. Was, *Fundamentals of Radiation Materials Science*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007.
- [45] W. Eckstein, *Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1991.
- [46] M.T. Robinson, I. Torrens, *Phys. Rev.***B 9**, 5008 (1974).
- [47] J. E. Turner, “*Atoms, Radiation, and Radiation Protection*”, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co., 2007.
- [48] P. Salou, *Interaction ion-surface: simulation de l'interaction plasma-paroi (ITER)*, Thèse de Doctorat, l'Université de Caen Basse-Normandie, France, 2013.
- [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] A. Scholtz, C. Lehmann, *Phys. Rev.***B6**, 813(1972).
- [51] G. Vizkelently, S.M. Foiles, *Nucl. Instrum. Methods***B 371**, 111 (2015).
- [52] C.H.M. Broeders, A.Yu. Konobeyev, *J. Nucl. Mater.*, **336**, 201 (2005).

- [53] M.T. Robinson, *MARLOWE: computer simulation of atomic collisions in crystalline solids*, (Version 15a), RSICC Code Package PSR-137 (Report).
- [54] M.T. Robinson, *Nucl. Instrum. Methods B* **48**, 408 (1990).
- [55] M.T. Robinson, *K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd.* **43**, 27 (1993).
- [56] M.T. Robinson, *J. Nucl. Mater.* **216**, 1 (1994).
- [57] M.T. Robinson, *Radiat. Eff. Defects Solids* **141**, 1 (1997).
- [58] M.T. Robinson, O.S. Oen, *Phys. Rev.* **132**, 2385 (1963).
- [59] W. Lenz: *Z. Phys.* **77**, 713 (1932)
- [60] S.T. Nakagawa, Y. Yamamura, *Radiat. Eff.* **105**, 239 (1988).
- [61] S.T. Nakagawa, *Radiat. Eff.* **112**, 1 (1990).
- [62] S.T. Nakagawa, *Radiat. Eff.* **116**, 21 (1991).
- [63] H. Jensen, *Z. Phys.* **77**, 722 (1932).
- [64] L.A. Girifalco, V.G. Weizer, *Phys. Rev.* **114**, 687(1959).
- [65] D.E. Harrison, Jr., *CRC Crit. Rev. Solid. State Sci.* **14**, suppl.1, 1 (1988).
- [66] J. Lindhard, M. Scharff, H.E. Schiott, *Range concepts and heavy ion ranges (Notes on atomic collisions, II)*. *Mat Fys Medd Dan Vid Selsk* **33**, 1 (1963).
- [67] J. Lindhard, M. Scharff, *Phys. Rev.* **124**, 128(1961).
- [68] O. B. Firsov, *Soviet Physics JETP* **36**, 1076 (1959).
- [69] O.S. Oen, M.T. Robinson, *Nucl. Instrum. Methods* **132**, 647(1976).
- [70] M. Blackman, *Handbuch der Physik*, Vol. VII, Part.1, Springer-Verlag, Berlin,1955.
- [71] M. Hou, *Nucl. Instrum. Methods* **182-183**, 153 (1981).
- [72] Y. Waseda, K. Hirata, M. Ohtani, *High Temp. High Pressures*, **7**, 221, (1975).
- [73] C.Y. Ho, R.W. Powell, P.E. Liley, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **3**, I-10 (1974).
- [74] J.A. Brinkman, *Am. J. Phys.* **24**, 246 (1956).
- [75] A. Seeger, Proc. 2nd. U.N. Conf on Peaceful Uses of Atomic Energy, IAEA, Geneva, Vol 6, 1958, p. 250.

Appendice

Appendice

Energie cinétique des atomes en mouvement dans une cascade de 20 keV dans le tungstène

Temps (ps)	Energie cinétique de la cascade (eV)	
	Potentiel ZBL	Potentiel de Molière
0.00	20000	20000
0.02	19055.9	19219.5
0.04	18010.3	18427.1
0.06	16527.4	17338.5
0.08	14400.4	15784.5
0.10	11707.3	13771.8
0.12	8765.06	11462.9
0.14	6022.51	9089.82
0.16	3824.65	6894.67
0.18	2307.34	5045.35
0.20	1363.55	3603.87
0.22	815.01	2548.43
0.24	501.66	1808.58
0.26	320.742	1302.91
0.28	214.305	957.012
0.30	149.041	718.732
0.32	106.831	550.534
0.34	78.7142	428.654
0.36	59.8938	338.387
0.38	46.7536	269.347
0.40	37.6008	216.594
0.42	31.0009	175.711
0.44	26.0169	143.04
0.46	22.5268	117.271
0.48	19.7114	96.419
0.50	17.4105	80.1659
0.52	15.3091	66.902
0.54	13.4677	55.9798
0.56	11.7673	47.3281
0.58	10.2648	40.0204
0.6	9.0016	34.0905
0.62	7.95153	29.1379
0.64	7.11593	25.1067
0.66	6.3782	21.7333
0.68	5.73096	19.011
0.70	5.23216	16.7174

Nombre moyen d'atomes en mouvement dans une cascade de 20 keV dans le tungstène

Nombre moyen d'atomes en mouvement			
Temps (ps)	Potentiel ZBL	Temps (ps)	Potentiel de Molière
0.00	0.00	0.00	0.00
0.02	13.5732	0.04	45.382
0.04	48.4234	0.08	173.8278
0.06	106.3236	0.12	283.558
0.08	171.3384	0.16	262.4424
0.10	215.2536	0.20	167.8886
0.12	217.4098	0.24	89.8048
0.14	181.4442	0.28	47.273
0.16	128.724	0.32	26.4296
0.18	81.0036	0.36	15.7994
0.20	47.4142	0.40	9.8524
0.22	27.1032	0.44	6.296
0.24	15.5394	0.48	4.0624
0.26	9.1818	0.52	2.662
0.28	5.616	0.56	1.742
0.30	3.6172	0.60	1.1338
0.32	2.4334	0.64	0.7322
0.34	1.6758	0.68	0.4724
0.36	1.2158	0.72	0.3142
0.38	0.8964	0.76	0.204
0.40	0.691	0.80	0.1364
0.42	0.5538	0.84	0.0928
0.44	0.4444	0.88	0.0672
0.46	0.387	0.92	0.0466
0.48	0.3444	0.96	0.0346
0.50	0.319	1.00	0.0226
0.52	0.3024	1.04	0.019
0.54	0.2856	1.08	0.0164
0.56	0.2666	1.12	0.0144
0.58	0.2468	1.16	0.0116
0.6	0.2276	1.20	0.0104
0.62	0.205	1.24	0.0106
0.64	0.1906	1.28	0.011
0.66	0.1756	1.32	0.0102
0.68	0.1638	1.36	0.0094
0.70	0.1562	1.40	0.0088

Nombre d'atomes déplacés dans une cascade de 20 keV dans le tungstène

Nombre d'atomes déplacés dans un intervalle de temps Δt			
Δt (ps)	Potentiel ZBL	Δt (ps)	Potentiel de Molière
0.02	11.9418	0.04	43.2194
0.04	30.1656	0.08	129.1586
0.06	52.5224	0.12	149.5168
0.08	66.489	0.16	83.8964
0.10	63.252	0.20	28.3516
0.12	47.0628	0.24	8.087
0.14	28.797	0.28	2.9344
0.16	15.6138	0.32	1.4764
0.18	8.339	0.36	0.9028
0.20	4.7596	0.40	0.5888
0.22	2.8222	0.44	0.358
0.24	1.7164	0.48	0.2448
0.26	1.0906	0.52	0.1602
0.28	0.6778	0.56	0.1132
0.30	0.4542	0.60	0.0832
0.32	0.305	0.64	0.062
0.34	0.2096	0.68	0.0444
0.36	0.1534	0.72	0.0368
0.38	0.1066	0.76	0.0212
0.40	0.0838	0.80	0.0196
0.42	0.052	0.84	0.0118
0.44	0.0448	0.88	0.0102
0.46	0.0408	0.92	0.0062
0.48	0.0364	0.96	0.004
0.50	0.0342	1.00	0.004
0.52	0.0346	1.04	0.0022
0.54	0.0256	1.08	0.0026
0.56	0.0268	1.12	0.0014
0.58	0.0196	1.16	0.0010
0.60	0.0162	1.20	0.0012
0.62	0.0136	1.24	0.0018
0.64	0.0118	1.28	0.0014
0.66	0.0094	1.32	0.0014
0.68	0.009	1.36	0.0014
0.70	0.0106	1.40	0.0008
0.72	0.01	1.44	0.0012
0.74	0.0102	1.48	0.0024
0.76	0.0104	1.52	0.0014
0.78	0.011	1.56	0.0016
0.80	0.0082	1.60	0.0010
0.82	0.0082	1.64	0.0016

Somme cumulée d'atomes déplacés dans une cascade de 20 keV dans le tungstène

Nombre total d'atomes déplacés			
Temps (ps)	Potentiel ZBL	Temps (ps)	Potentiel de Molière
0.00	0.00	0.00	0.00
0.02	11.9418	0.04	43.2194
0.04	42.1074	0.08	172.378
0.06	94.6298	0.12	321.8948
0.08	161.1188	0.16	405.7912
0.10	224.3708	0.20	434.1428
0.12	271.4336	0.24	442.2298
0.14	300.2306	0.28	445.1642
0.16	315.8444	0.32	446.6406
0.18	324.1834	0.36	447.5434
0.20	328.943	0.40	448.1322
0.22	331.7652	0.44	448.4902
0.24	333.4816	0.48	448.735
0.26	334.5722	0.52	448.8952
0.28	335.25	0.56	449.0084
0.30	335.7042	0.60	449.0916
0.32	336.0092	0.64	449.1536
0.34	336.2188	0.68	449.198
0.36	336.3722	0.72	449.2348
0.38	336.4788	0.76	449.256
0.40	336.5626	0.80	449.2756
0.42	336.6146	0.84	449.2874
0.44	336.6594	0.88	449.2976
0.46	336.7002	0.92	449.3038
0.48	336.7366	0.96	449.3078
0.50	336.7708	1.00	449.3118
0.52	336.8054	1.04	449.314
0.54	336.831	1.08	449.3166
0.56	336.8578	1.12	449.318
0.58	336.8774	1.16	449.319
0.60	336.8936	1.20	449.3202
0.62	336.9072	1.24	449.322
0.64	336.919	1.28	449.3234
0.66	336.9284	1.32	449.3248
0.68	336.9374	1.36	449.3262
0.70	336.948	1.40	449.327
0.72	336.958	1.44	449.3282
0.74	336.9682	1.48	449.3306
0.76	336.9786	1.52	449.332
0.78	336.9896	1.56	449.3336
0.80	336.9978	1.60	449.3346
0.82	337.006	1.64	449.3362

Nombre de paires de Frenkel produites dans une cascade de 20 keV dans le tungstène

$r_{VI}(a_0)$	Potentiel ZBL			Potentiel de Molière		
	Corrélée	Non corrélée	Nombre total	Corrélée	Non corrélée	Nombre total
1	0.3364	98.5128	98.8492	0.9622	166.355	167.3172
1.25	0.3218	98.457	98.7788	0.7046	165.95	166.6546
1.5	0.2302	97.2668	97.497	0.4292	162.781	163.2102
1.75	0.098	91.9678	92.0658	0.192	151.785	151.977
2	0.0328	80.0036	80.0364	0.1076	137.946	138.0536
2.25	0.0138	68.2782	68.292	0.0418	117.957	117.9988
2.5	0.0068	62.0356	62.0424	0.0222	106.941	106.9632
2.75	0.0034	52.3934	52.3968	0.0136	94.6892	94.7028
3	0.0018	46.6734	46.6752	0.007	83.4908	83.4978
3.25	0.0012	42.8294	42.8306	0.0046	77.0472	77.0518
3.5	6E-4	38.0762	38.0768	0.0018	70.3252	70.327
3.75	4E-4	33.9518	33.9522	0.0014	63.4854	63.4868
4	2E-4	31.1886	31.1888	6E-4	58.9524	58.953
4.25	0	28.1816	28.1816	4E-4	54.3296	54.33
4.5	0	25.864	25.864	4E-4	50.3072	50.3076
4.75	0	23.8114	23.8114	0	46.9112	46.9112
5	0	21.5682	21.5682	0	43.399	43.399
5.25	0	19.955	19.955	0	40.7048	40.7048
5.5	0	18.6214	18.6214	0	38.4112	38.4112
5.75	0	17.045	17.045	0	35.6206	35.6206
6	0	15.8336	15.8336	0	33.5496	33.5496
6.25	0	14.8028	14.8028	0	31.777	31.777
6.5	0	13.6392	13.6392	0	29.5794	29.5794
6.75	0	12.806	12.806	0	27.991	27.991
7	0	11.921	11.921	0	26.3904	26.3904
7.25	0	11.065	11.065	0	24.8354	24.8354
7.5	0	10.358	10.358	0	23.462	23.462

Coordonnées des lacunes et des interstitiels produits dans une cascade de 20 keV dans le tungstène

Potentiel ZBL					
Coordonnées des lacunes			Coordonnées des interstitiels		
x	y	z	x	y	z
8	3	0	7.7589	-1.8857	-2.1296
1.5	10.5	4.5	-0.7535	15.7835	3.5046
4.5	10.5	8.5	10.0309	8.9697	7.3711
5.5	7.5	2.5	8.1176	3.6416	6.3183
4	11	9	8.0713	7.5019	12.075
0	0	0	-4.9401	4.4648	0.496
7	3	0	10.1073	-2.9255	2.3905
4.5	8.5	4.5	5.8972	15.503	3.5003
4	12	10	10.9579	14.5804	10.4221
5.5	4.5	-0.5	6.9853	7.0052	-7.4687
5	4	0	9.4998	2.5425	-6.9729
4	10	8	8.2679	7.7474	16.218
4	4	0	7.4619	8.5112	-7.9971
4	7	3	11.9021	13.5464	3.4883
3	10	8	10.7945	10.4249	14.7231
1.5	2.5	0.5	-3.7601	2.2683	10.7571
3.5	6.5	2.5	14.9971	3.5489	1.4439
2.5	7.5	2.5	-8.9815	15.4611	8.4783
3	4	1	3.4719	24.9958	10.521

Etude des défauts induits par irradiation dans le tungstène

Résumé

Nous avons simulé l'irradiation du tungstène en générant des cascades de déplacements par le programme Marlowe qui est fondé sur l'approximation des collisions binaires. Les cascades, au nombre de 5000, sont initiées par des primaires de 20 keV lancés à partir d'un site du réseau. Les collisions nucléaires entre les atomes du tungstène sont gouvernées par le potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark et l'approximation de Molière au potentiel de Thomas-Fermi. Les pertes d'énergies électroniques sont estimées par le modèle de Lindhard-Scharff-Schiott. Les déplacements thermiques des atomes du réseau autour de leurs positions d'équilibre sont décrits par le modèle de Debye. Les résultats des simulations indiquent qu'il y a une dépendance notable du nombre d'atomes déplacés, des séquences de remplacements et des volumes des cascades au potentiel interatomique. La fraction des atomes déplacés qui survivent à la recombinaison est très petite. Un modèle avec le potentiel de Molière favorise plus d'atomes déplacés, des séquences de remplacements plus longues et des cascades plus volumineuses.

Mots clés : Approximation des collisions binaires, tungstène, défaut de Frenkel, cascade de déplacements

Study of irradiation induced defects in tungsten

Abstract

We simulated irradiation of tungsten by generating displacement cascades by means of the Marlowe program, which is based on the approximation of binary collisions. Samples of 5000 cascades are initiated by 20 keV primaries launched from lattice sites. Nuclear collisions between tungsten atoms are governed by the Ziegler-Biersack-Littmark potential and the Molière approximation to the Thomas-Fermi's potential. Electronic energy losses are estimated by the Lindhard-Scharff-Schiott model. The thermal displacements of the lattice atoms around their equilibrium positions are described by the Debye model. Results of the simulations indicate that there is a significant dependence of the number of displaced atoms, replacement sequences and volumes of the cascades on the interatomic potential. Fraction of displaced atoms that survive recombination is very small. A model with Molière potential favors more displaced atoms, longer replacement sequences, and larger cascades.

Keywords: Binary collision approximation, tungsten, Frenkel defect, displacement cascades

دراسة العيوب المتشكلة جراء تعريض التنغستن للإشعاعات

الملخص

لقد قمنا بمحاكاة إشعاع معدن التنغستن بتوليد شلالات من الإنتقالات بإستعمال البرنامج "مارلو" الذي يعتمد على نموذج تقريب التصادم الثنائي. الدراسة شملت 5000 شلال كل واحد منها يتم بدأها بواسطة قذيفة أولية طاقتها الحركية 20 كيلو إلكترون فولط يتم إطلاقها من موقع في الشبكة. يحكم التصادمات النووية بين ذرات التنغستن كمون "زيغلر-بيرسك-ليتمارك" وتقريب موليير لكمون "توماس-فيرمي". يتم تقدير خسائر الطاقة الإلكترونية من خلال نموذج "لينهارد-شارف-شيويت". يتم وصف الإزاحات الحرارية لذرات الشبكة حول موازاتها بواسطة نموذج "ديباي". تشير نتائج المحاكاة إلى أن هناك تبعية جلية لعدد الذرات المزاحة وسلاسل الاستبدال وأحجام الشلالات للكمون الذري المستعمل. نسبة الذرات المزاحة التي تشكل عيوباً دائمة صغيرة جداً. من الجلي أن نموذج محاكاة يتضمن كمون "موليير" يؤدي إلى عدد أكبر من الذرات المزاحة ، وسلاسل استبدالات أطول وشلالات بحجوم كبيرة.

الكلمات المفتاحية: تقريب التصادم الثنائي، التنغستن، عيوب فرانكل، شلالات من الإنتقالات

