

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

MINISTERE 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

MANCER Moussa

Sur le thème

Production des défauts ponctuels dans le hafnium irradié

Soutenu le 23/06/2020 devant le jury composé de :

Mr. Mohamed MESKINE	MCA	Université Dr. Tahar Moulay de Saida	Président
Mr. Abdelkader DJAAFRI	MCB	Université Dr. Tahar Moulay de Saida	Encadreur
Mr. Tayeb DJAAFRI	MCA	Université Dr. Tahar Moulay de Saida	Co-encadreur
Mr. Abdelkrim KAAROUR	MCB	Université Dr. Tahar Moulay de Saida	Examineur

Année Universitaire 2019 - 2020



DEDICACE

*Je dédie ce travail à mes parents qui
m'ont encouragé et soutenu durant tout mon cursus*

Ma mère et mon père

À mes sœurs

À tous mes amis

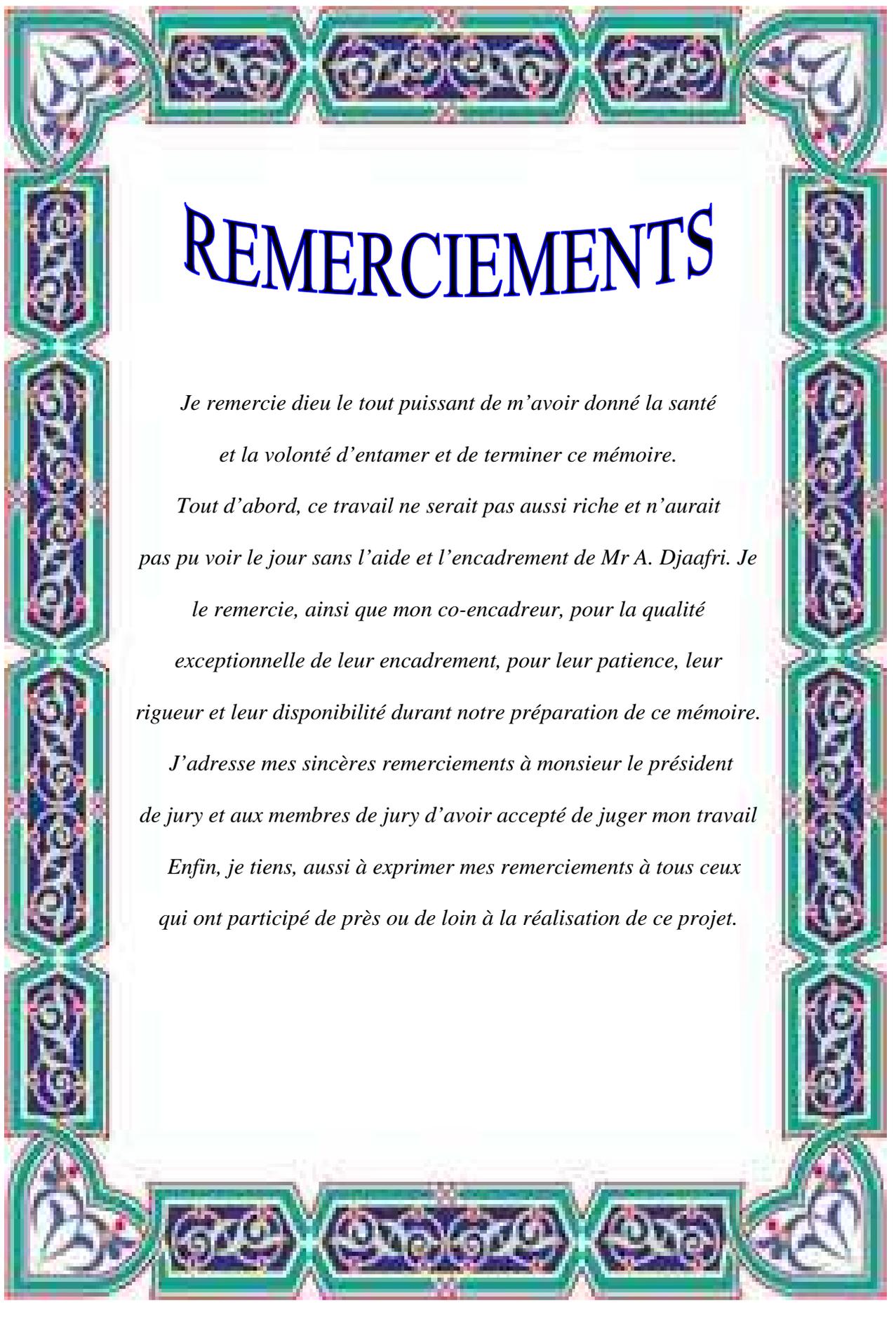
Ainsi que les familles :

Mancer et Kermani

À toute la promotion 2019-2020

Moussa MANCER





REMERCIEMENTS

*Je remercie dieu le tout puissant de m'avoir donné la santé
et la volonté d'entamer et de terminer ce mémoire.*

*Tout d'abord, ce travail ne serait pas aussi riche et n'aurait
pas pu voir le jour sans l'aide et l'encadrement de Mr A. Djaafri. Je*

*le remercie, ainsi que mon co-encadreur, pour la qualité
exceptionnelle de leur encadrement, pour leur patience, leur
rigueur et leur disponibilité durant notre préparation de ce mémoire.*

*J'adresse mes sincères remerciements à monsieur le président
de jury et aux membres de jury d'avoir accepté de 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.*

RÉSUMÉS

POINT DEFECTS PRODUCTION IN IRRADIATED HAFNIUM

Abstract

We simulated the irradiation of hafnium with the Marlowe code based on the binary collision approximation. We investigated the production of point defects and their spatial configuration. The study is carried out by simulating displacement cascades initiated with primaries with kinetic energies up to 30 keV. Elastic collisions between hafnium atoms were modelled by the universal Ziegler–Biersack–Littmark potential. The Oen-Robinson approximation was used to account for the inelastic energy losses. Analysis of the simulation results shows that with an appropriate recombination radius, approximately 12% of the generated displacements constitute permanent defects. The number of Frenkel pairs as well as the cascade volume increase with the initial primary energy.

Keywords

Irradiation, hafnium, binary collision approximation, defects

ETUDE DES DEFAUTS PONCTUELS DANS LE HAFNIUM IRRADIÉE

Résumé

Nous avons simulé l'irradiation du hafnium en utilisant le code Marlowe qui est basé sur l'approximation des collisions binaires. Nous nous sommes intéressés à la production des défauts ponctuels et leurs configurations spatiales. Cette étude est réalisée en simulant des cascades de déplacements initiées par des primaires d'énergie cinétique allant jusqu'à 30 keV. Les collisions élastiques entre les atomes du hafnium ont été modélisées par le potentiel universel Ziegler-Biersack-Littmark. Les pertes d'énergie inélastiques ont été estimées en utilisant l'approximation d'Oen-Robinson. L'analyse des résultats de la simulation montre qu'avec un rayon de recombinaison approprié, environ 12% des déplacements générés constituent des défauts permanents. Le nombre de paires de Frenkel ainsi que le volume de la cascade augmentent avec l'énergie initiale du primaire.

Mots clés

Irradiation, défauts, hafnium, approximation des collisions binaires

دراسة العيوب المتشكلة جراء تعريض الهفنيوم للإشعاعات

الملخص

قمنا بمحاكاة إشعاع معدن الهافنيوم باستخدام برنامج مارلو المبني على نموذج تقريب التصادم الثنائي. لقد تمكنا من متابعة العيوب المتشكلة بالإضافة إلى توزعها الفضائي. هذه الدراسة تمت بمحاكاة شلالات من الانتقالات (سلسلة من التصادمات الذرية) التي يتم بدؤها بواسطة قذيفة أولية يتم إطلاقها من موقع في الشبكة وطاقتها الحركية يمكن أن تصل حتى 30 كيلو إلكترون فولت. التصادمات المرنة بين ذرات الهفنيوم يحكمها ما يعرف بكمون زيغلر-بيرسك-ليتارك في حين فقدان الطاقة المترتب عن التصادمات غير المرنة يتم حسابه باستخدام تقريب أوين-روبسون. تظهر نتائج المحاكاة أنه باستعمال نصف قطر إعادة تركيب مناسب تكون نسبة ذرات الشبكة المزاحة التي تشكل عيوباً دائمة تقارب 12%. كما أنّ هناك تناسب طردي بين عدد أزواج فرنكل المتشكلة وحجم الشلالات مع الطاقة الحركية للقذيفة الأولية.

الكلمات المفتاحية

إشعاع، عيوب، هفنيوم، تقريب التصادم الثنائي

LISTE DES SYMBOLES ET DES NOTATIONS UTILISÉS

LISTE DES ACRONYMES

PKA	Primary Knock-on Atom
MD	Molecular Dynamics
BCA	Binary Collision Approximation
RCS	Remplacement Collision Sequences
ZBL	Ziegler-Biersack-Littmark
LSS	Lindhard-Scharff -Schjott
CM	Centre de Masse
hcp	Hexagonal Compact
KP	Kinchin-Pease
NRT	Norgett-Robinson-Torrens
dpa	Displacements per Atom
arc-dpa	Athermal Recombination-Corrected Displacement per Atom
ACP	Analyse en Composantes Principales

LISTE DES NOTATIONS ET DES SYMBOLES

Symbole	Signification	Symbole	Signification
m_e	Masse au repos de l'électron	θ_1	Angle de diffusion du projectile après le choc
e	Charge élémentaire	θ_2	Angle de diffusion de l'atome cible après le choc
N_a	Nombre d'avogadro	ϑ	Angle de diffusion dans le système du centre de masse
h	Constante de Planck	r	Distance interatomique
\hbar	Constante de Planck réduite	E_0	Energie initiale du projectile
a_B	Rayon de Bohr	E_1	Energie du projectile après le choc
m_1	Masse du projectile	E_2	Energie de l'atome cible après le choc
m_2	Masse de l'atome cible	v_B	Vitesse de Bohr
Z_1	Numéro atomique du projectile	E_{dam}	Energie disponible pour le déplacement atomique
Z_2	Numéro atomique de l'atome cible	N_{NRT}	Nombre de paires de Frenkel dans le modèle NRT
uma	Unite de masse atomique	v_0	Vitesse initiale du projectile
C	Vitesse de la lumière dans le vide	v_1	Vitesse du projectile après le choc
E_d	Energie seuil de déplacement	v_2	Vitesse de l'atome cible après le choc
E_c	Energie de coupure	A	Rapport entre la masse de la cible et la masse du projectile
E_{th}	Energie de liaison de déplacement	Q	Energie inélastique perdue
E_r	Energie de liaison de remplacement	V	Potential d'interaction atomique
I	Potential moyen d'excitation	η	Coefficient d'efficacité du déplacement
a, b, c	Les parameters du réseau	ΔH_S^0	l'enthalpie standard de formation du défaut de Schottky
a_{ZBL}	Rayon d'écran du potentiel ZBL	ΔH_F^0	l'enthalpie standard de formation du défaut de Frenkel
k_B	Constante de Boltzmann	β	Rapport entre la vitesse de la particule et la vitesse de la lumière
ϵ_0	Permittivité du vide	E_V	Energie de formation d'une lacune
T_D	Température de Debye	$(-dE/dx)$	Pouvoir d'arrêt total du milieu
ρ	Densité du milieu cible	$(-dE/dx)_N$	Pouvoir d'arrêt nucléaire du milieu
σ	Section efficace de diffusion	$(-dE/dx)_e$	Pouvoir d'arrêt électronique du milieu

TABLE DES MATIÈRES

Liste des figures.....	xii
Liste des tableaux.....	xiv
Introduction générale.....	1

Chapitre 1 - Défauts dans les cristaux

1.1 Introduction.....	6
1.2 Défauts ponctuels.....	6
1.2.1 Lacunes.....	7
1.2.2 Auto-interstitiels.....	8
1.2.3 Défauts de Schottky et de Frenkel.....	9
1.2.4 Défauts extrinsèques.....	11
1.3 Dislocations.....	12
1.3.1 Dislocations coin.....	13
1.3.2 Dislocations vis.....	14
1.4 Défauts surfaciques.....	14
1.5 Défauts volumiques.....	15
1.5.1 Pores.....	15
1.5.2 Inclusions.....	16
1.5.3 Précipités.....	16
1.6 Effets d'irradiation dans les matériaux	16

Chapitre 2 – Modèle de simulation

2.1 Introduction.....	19
2.2 Approximation des collisions binaires.....	20
2.2.1 Description de la cascade de déplacements.....	20
2.2.2 Séquences de remplacements.....	21
2.2.3 Cinématique d'une collision binaire.....	22
2.2.4 Energie transférée.....	24
2.2.5 Angle de diffusion.....	25
2.3 Perte d'énergie.....	27
2.3.1 Pertes d'énergie inélastiques.....	27
2.3.2 Pertes d'énergie élastiques	29

Table des matières

2.3.3	Perte d'énergie totale	30
2.4	Nombre de paires de Frenkel stables.....	31
2.4.1	Modèle de Kinchin-Pease	31
2.4.2	Modèle de Norgett-Robinson-Torrens	32
2.4.3	Modèle arc-dpa.....	33

Chapitre 3 – Résultats et discussion

3.1	Introduction.....	37
3.2	Paramètres de simulation.....	37
3.3	Ajustement du nombre de paires de Frenkel.....	41
3.4	Atomes en mouvement.....	46
3.5	Atomes déplacés.....	48
3.6	Distribution spatiale des défauts.....	50
3.7	Volume de la cascade.....	51
	Conclusion générale.....	55
	Références bibliographiques.....	58

LISTE DES FIGURES

Chapitre 1		
Figure 1.1	Représentation schématique d'un cristal parfait	6
Figure 1.2	Schéma d'une lacune	7
Figure 1.3	Diffusion d'une lacune dans un cristal	8
Figure 1.4	Schéma d'un auto-interstitiel	8
Figure 1.5	Défaut de Schottky	9
Figure 1.6	Défaut de Frenkel	10
Figure 1.7	Défaut extrinsèque substitutionnel	11
Figure 1.8	Positions interstitielles dans la structure cubique centrée	12
Figure 1.9	Positions interstitielles dans la structure cubique à faces centrées	12
Figure 1.10	Schéma d'une dislocation coin	13
Figure 1.11	Schéma d'une dislocation vis	14
Figure 1.12	Représentation schématique d'un joint de grains et d'un joint de phases	15
Figure 1.13	Formation de pores dans un matériau	16
Figure 1.14	Gonflement du matériau suite à son irradiation	17
Chapitre 2		
Figure 2.1	Représentation d'une cascade de déplacements	21
Figure 2.2	Schéma d'une séquence de remplacements	22
Figure 2.3	Schéma d'une collision binaire dans le système du laboratoire	23
Figure 2.4	Angle de diffusion ϑ dans le référentiel du centre de masse	26
Figure 2.5	Trajectoires de deux atomes en collision dans le référentiel du laboratoire	26
Chapitre 3		
Figure 3.1	Structure hexagonale compacte	38
Figure 3.2	Potentiel ZBL entre deux atomes de hafnium	39
Figure 3.3	Cascades de déplacements dans le hafnium irradié avant la recombinaison	42
Figure 3.4	Nombre moyen de paires de Frenkel dans le hafnium irradié	43

Liste des figures

Figure 3.5	Nombre de paires de Frenkel pour différentes valeurs du rayon de recombinaison	45
Figure 3.6	Des cascades de déplacements dans le hafnium irradié après recombinaison.	46
Figure 3.7	Nombre moyen d'atomes en mouvement dans le hafnium irradié	47
Figure 3.8	Somme cumulée d'atomes déplacés dans le hafnium irradié	49
Figure 3.9	Distribution spatiale des défauts dans le hafnium irradié à 20 keV	51
Figure 3.10	Représentation de la méthode d'analyse en composantes principales	52
Figure 3.11	Distributions de volumes du hafnium irradié.	54

LISTE DES TABLEAUX

Chapitre 2		
Tableau 2.1	Valeurs du paramètre $c_{arc\,dpa}$	34
Tableau 2.2	Valeurs de l'énergie seuil de déplacement pour certains éléments	35
Chapitre 3		
Tableau 3.1	Propriétés du hafnium	38
Tableau 3.2	Paramètres de simulation de l'irradiation du hafnium	41
Tableau 3.3	Nombre moyen de paires de Frenkel calculé à partir du modèle arc-dpa et Marlowe	45
Tableau 3.4	Taux de déplacements permanents dans le hafnium irradié	49

INTRODUCTION GÉNÉRALE

En physique nucléaire, l'irradiation désigne l'action d'exposer (volontairement ou accidentellement) un corps à un flux de rayonnements : particules chargées lourdes, électrons, photons ou encore neutrons. Les dégâts occasionnés par cette irradiation sur les matériaux sont devenus un sujet de recherche d'une importance extrême et grandissante car ils ont un impact direct sur les composants électroniques embarqués dans les engins spatiaux qui sont exposés aux rayonnements omniprésents dans l'espace. En effet, l'environnement radiatif spatial est constitué de particules très énergétiques venant du vent solaire, des boucles de Van Allen et des rayonnements cosmiques capables de pénétrer les satellites et provoquer des dysfonctionnements transitoires ou permanents de leurs dispositifs électroniques [1-5].

Des dégâts causés par l'irradiation sont également constatés sur les structures internes des réacteurs nucléaires. Ces structures sont soumises à des flux de neutrons produits par les réactions nucléaires qui se produisent au cœur du réacteur. Les déplacements atomiques initiés par les neutrons mènent à des modifications microscopiques des structures des matériaux (en créant des défauts ponctuels : lacunes et interstitiels) qui peuvent à leurs tours engendrer une dégradation des propriétés physico-chimiques et mécaniques des matériaux telles que les conductivités électrique et thermique, la résistance à la corrosion, la fragilisation et le gonflement [6-11].

Dans le but de prolonger la durée de vie utile des composants électroniques destinés à l'utilisation spatiale et nucléaire et d'améliorer leur rendement, il est impératif de comprendre les mécanismes de vieillissement des matériaux irradiés. Ceci passe par le perfectionnement d'un modèle qui est capable de prédire le nombre de défauts produits, leur distribution spatiale et le volume de la zone endommagée.

Notre intérêt pour le hafnium vient de ses propriétés physiques, chimiques et mécaniques particulièrement intéressantes et qui trouvent des applications variées dans de vastes domaines notamment l'aérospatiale et le nucléaire.

Le hafnium est un métal de transition très dur et lourd de numéro atomique 72 et de masse atomique 178.49 uma [12]. Il est ductile, brillant et argenté. Sa densité est de 13.31 g/cm³. Son point de fusion est considérablement élevé (2233°C) ce qui en fait de lui un métal réfractaire [13]. Il a une excellente résistance à la corrosion dans l'air et dans l'eau grâce à la formation d'un film d'oxyde qui le protège des acides minéraux. On utilise principalement le hafnium dans les barres de contrôle de réacteurs nucléaires pour sa capacité à absorber les neutrons thermiques. Il est, également, utilisé dans les lampes à incandescence pour contrôler la recristallisation du filament du tungstène. Il est incorporé dans le fer, le tantale ou le titane comme élément d'alliage [14-16].

Il n'existe dans la littérature aucune étude portant sur l'étude des défauts générés dans le hafnium pur irradié. Pour entreprendre cette étude, on avait le choix entre deux méthodes de simulation : l'approximation des collisions binaires (BCA pour Binary Collision Approximation) et la dynamique moléculaire (MD pour Molecular Dynamics). La méthode de la BCA est la mieux adaptée à une telle recherche puisqu'elle permet de simuler l'irradiation à haute énergie et d'accumuler d'énormes statistiques dans de nombreuses situations où le modèle de la dynamique moléculaire nécessite un matériel informatique très avancé et un temps de simulation énorme [17].

Ce travail a pour objectif d'étudier, la formation des défauts primaires dans le hafnium. Des cascades de déplacements sont simulées par le code Marlowe qui est basé sur le modèle du BCA. Le nombre de défauts générés, la configuration spatiale finale des cascades ainsi que le volume de la zone endommagée sont examinés.

Le travail réalisé et répondant à cet objectif est reporté dans ce manuscrit. Il est réparti en trois chapitres. Le premier chapitre est consacré à un rappel sur les défauts cristallins. Une description brève des défauts ponctuels, linéaires, surfaciques et volumiques est donnée. Le deuxième chapitre est dédié au modèle de l'approximation des collisions binaires. Les

relations mathématiques importantes de ce modèle qui sont dérivées des lois de conservation de l'énergie et la quantité de mouvement et qui sont utilisées dans l'analyse de l'irradiation des matériaux sont présentées. Dans le troisième chapitre, nous exposons les résultats que nous avons obtenus par simulations des cascades de déplacements dans le hafnium. À la fin, nous dressons une conclusion générale qui regroupe les principaux résultats obtenus. Elle sera suivie par les perspectives envisagées pour la poursuite de ce travail.

CHAPITRE 1

DÉFAUTS DANS LES CRISTAUX

1.1. Introduction

Afin de mener à bien notre étude, il est nécessaire de rappeler les différents défauts dans une structure cristalline. Dans une structure cristalline idéale, il existe le même arrangement autour des atomes (périodicité non perturbée) c'est-à-dire il n'y a pas de défauts. Dans une structure cristalline réelle, tels que les métaux et les alliages métalliques, il y a toujours des imperfections traduites par un écartement de l'assemblage périodique. Ces défauts provoquent des distorsions locales et influent par la même occasion sur les propriétés physiques et mécaniques des matériaux [18]. Les défauts peuvent être classés en des défauts ponctuels, linéaires, plans ou volumiques.

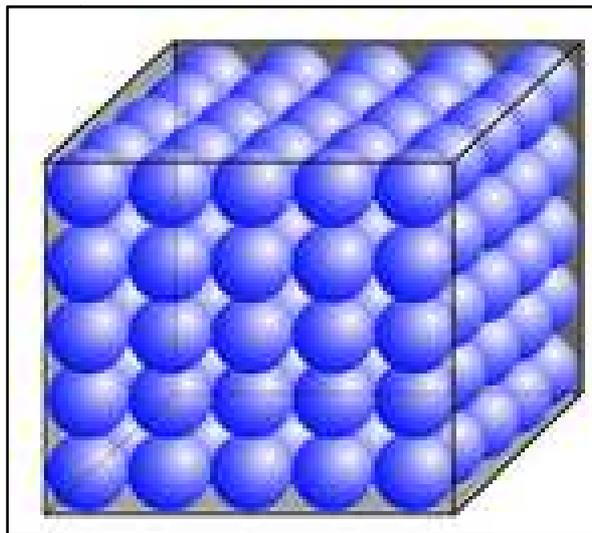


Figure 1.1. Représentation schématique d'un cristal parfait.

1.2. Défauts ponctuels

Ils sont ainsi appelés car leur présence n'affecte qu'un volume très petit autour d'un nœud du réseau, quelques rayons atomiques. Ils peuvent être des lacunes, des auto-interstitiels et des défauts extrinsèques en insertion ou en substitution [19].

1.2.1. Lacune

C'est le défaut le plus simple qui se manifeste fréquemment dans les cristaux. Il s'agit d'un atome quitte un nœud du réseau laissant sa place inoccupé (figure 1.2) [19].

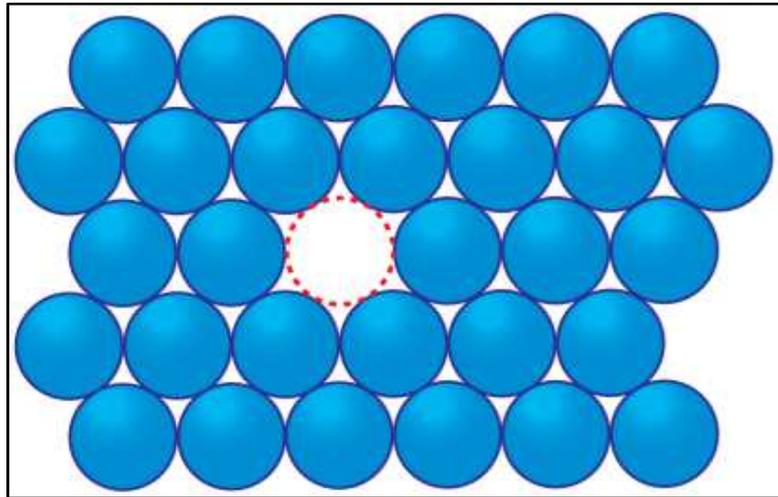


Figure 1.2. Schéma d'une lacune.

La présence des lacunes provoque l'augmentation de la résistivité du cristal et diminue par la même occasion sa densité. Leur concentration atomique n/N à l'équilibre dans un cristal contenant N atomes dépend de la température, T , du matériau. Elle varie suivant la loi [5, 20]

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

où n désigne le nombre de lacunes, E_V représente l'énergie de formation d'une lacune qui est de l'ordre de 1 eV dans les métaux, et k_B désigne la constante de Boltzmann.

La présence des lacunes dans les cristaux facilite la migration des atomes. Cette diffusion se produit grâce aux déplacements des atomes vers des sites libres voisins (voir figure 1.3) [20, 21].

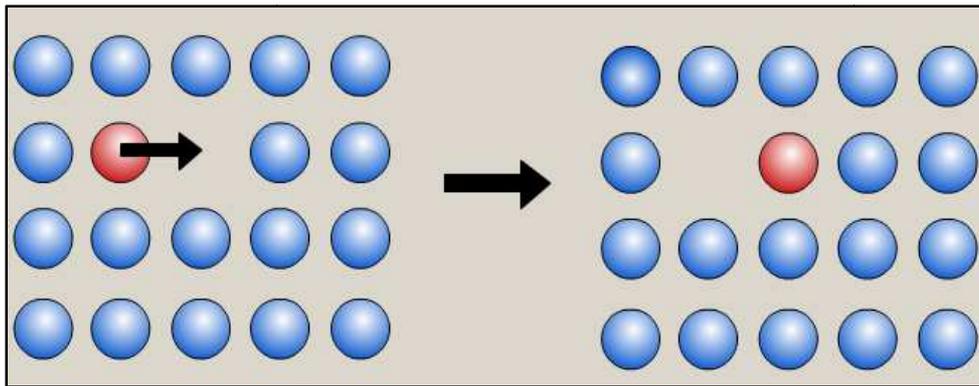


Figure 1.3. Diffusion d'une lacune dans un cristal.

1.2.2. Auto-interstitiel

Il s'agit d'un atome de même nature chimique que les atomes du cristal mais qui se trouve dans une position normalement vide (voir figure 1.4). La présence d'un interstitiel provoque une distorsion locale du cristal et mène à l'écartement des atomes voisins de leurs positions. En général, l'énergie de formation d'un interstitiel est plus élevée que celle de la formation d'une lacune. La concentration des interstitiels comme celle des lacunes croît avec la température et obéit à une loi similaire à la loi donnée par (1.1). Les auto-interstitiels sont plus mobiles que les lacunes et peuvent se déplacer sur une longue distance avant de se recombiner avec elles [20].

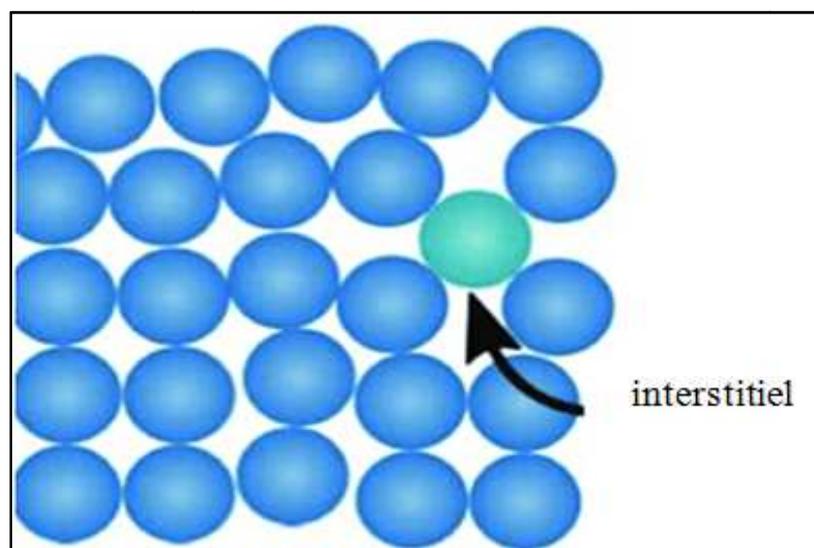


Figure 1.4. Schéma d'un auto-interstitiel.

1.2.3. Défauts de Schottky et de Frenkel

Afin de conserver l'électroneutralité dans les solides ioniques, les défauts ponctuels sont créés par paires. Un défaut de Schottky représente des nœuds du réseau cristallin non occupés. Il provient de l'association des lacunes cationiques et des lacunes anioniques au sein du cristal (figure 1.5). C'est le cas, par exemple, dans l'alumine (Al_2O_3). Un ion d'aluminium quitte sa position normale pour se placer en position superficielle. Trois lacunes d'oxygène se créent pour deux lacunes d'aluminium formées. D'où la présence simultanée de lacunes d'oxygène et de lacunes d'aluminium [22]. Il est clair que les défauts de Schottky causent une diminution de la densité du cristal. Le nombre de défauts de Schottky est dicté par la relation [23 - 25] :

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

où N désigne le nombre de sites du réseau et ΔH_S^0 représente l'enthalpie standard de formation du défaut de Schottky.

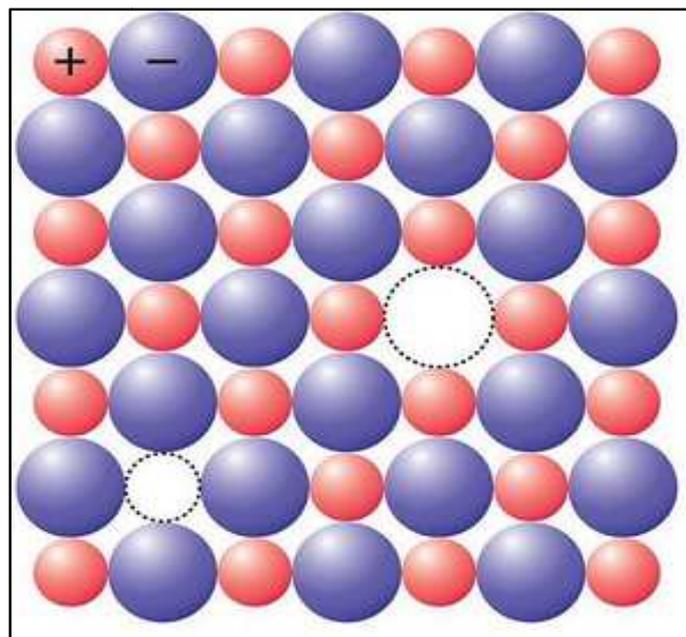


Figure 1.5. Défaut de Schottky.

On parle d'un défaut de Frenkel lorsqu'un atome interstitiel d'une espèce chimique donnée est associé à une lacune de cette même espèce, comme il est illustré sur la figure 1.6. De tels défauts dits aussi paires de Frenkel se rencontrent fréquemment dans les matériaux irradiés. L'avalanche des collisions atomiques fait déplacer des atomes en des positions interstitielles et créent par la même occasion des lacunes. Le nombre de défauts de Frenkel est régi par la loi [24, 25] :

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

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

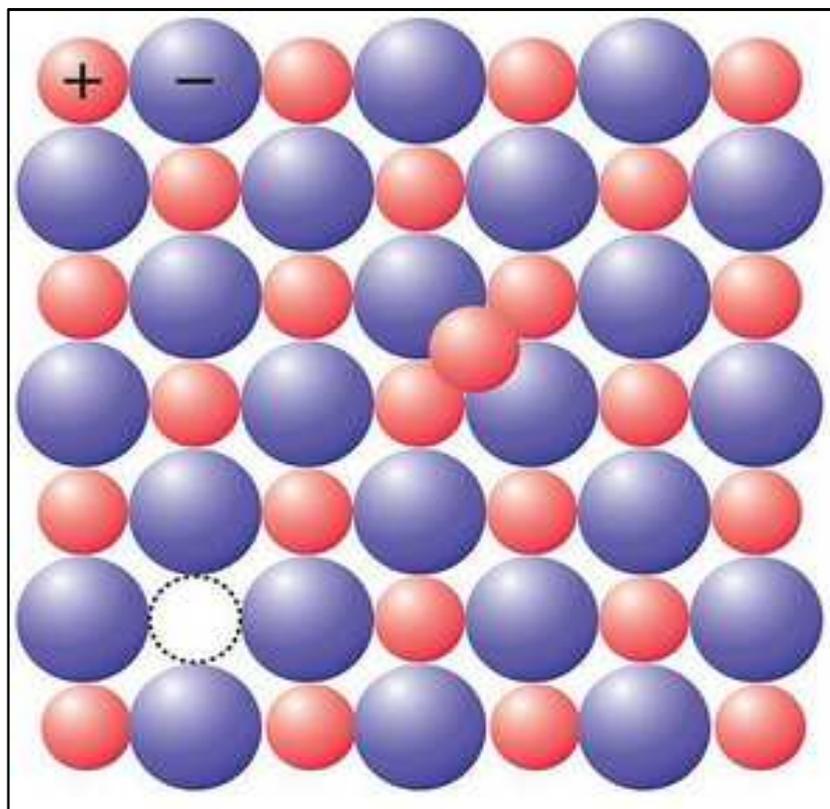


Figure 1.6. Défaut de Frenkel.

1.2.4. Défauts extrinsèques

On parle de défaut extrinsèque lorsqu'il y a présence d'un atome de nature chimique différente de celle des atomes formant le cristal. La présence du défaut dans le cristal peut être, selon le rayon atomique de l'atome, soit en substitution ou en insertion. Le cas de la substitution se manifeste, le plus souvent, lorsque l'atome étranger est de taille proche de celle de l'atome du réseau. Il remplace, donc, l'atome du cristal et induit une distorsion locale du réseau (figure 1.7). Les défauts en substitution influent considérablement sur les propriétés mécaniques et physiques des matériaux [20].

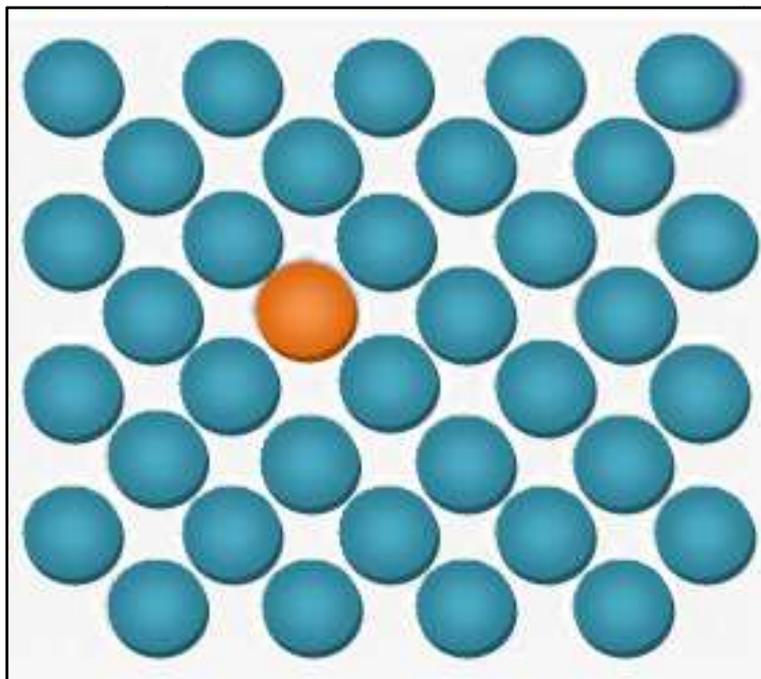


Figure 1.7. Défaut extrinsèque substitutionnel.

Lorsque l'atome étranger est de petite taille comparativement avec les atomes du cristal, on assiste plutôt à une insertion en position interstitielle. L'insertion se fait en site tétraédrique (figure 1.8-a et figure 1.9-a) ou en site octaédrique (figure 1.8-b et figure 1.9-b).

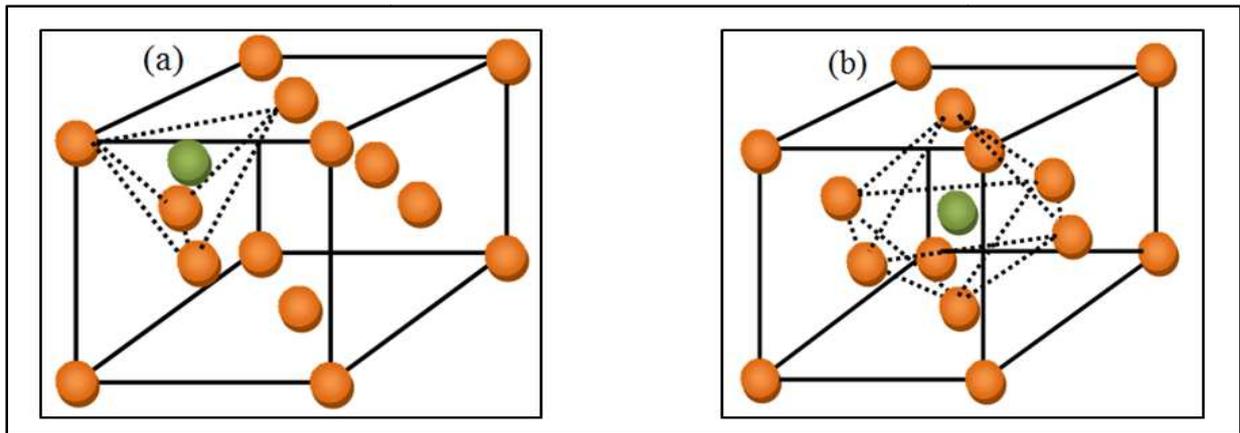


Figure 1.8. Positions interstitielles dans la structure cubique centrée.

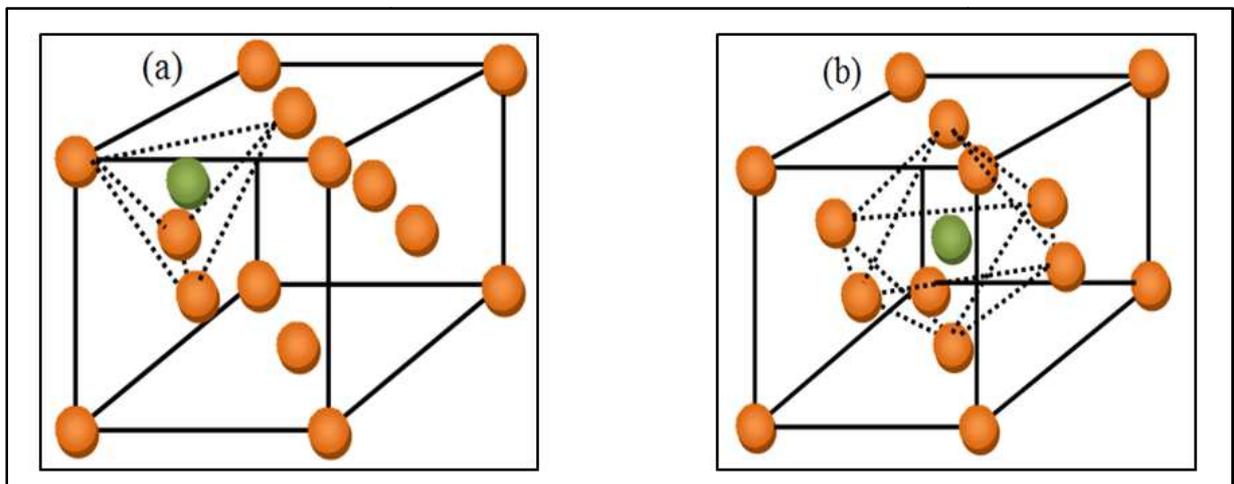


Figure 1.9. Positions interstitielles dans la structure cubique à faces centrées.

1.3. Dislocations

Une dislocation est un défaut à une seule dimension. Elle traduit une discontinuité dans la structure cristalline. Elle se manifeste par une ligne séparant la partie qui a glissé relativement à une autre restée immobile [26]. 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 [18, 20]. Il existe principalement, deux types de dislocations : les dislocations coin et les dislocations vis.

1.3.1. Dislocation coin

Géométriquement, une dislocation coin peut être vue comme résultant de l'introduction d'un demi-plan atomique au sein d'un cristal parfait. La ligne de la dislocation est définie comme la limite de ce demi-plan supplémentaire dans le cristal. La dislocation introduit une déformation dans le cristal de sorte que les atomes du demi-cristal supérieur sont comprimés, les autres sont dilatés comme il est illustré sur la figure 1.10. Le vecteur \vec{b} représente le vecteur de Burgers de la dislocation. Il donne la grandeur et la direction du glissement [5].

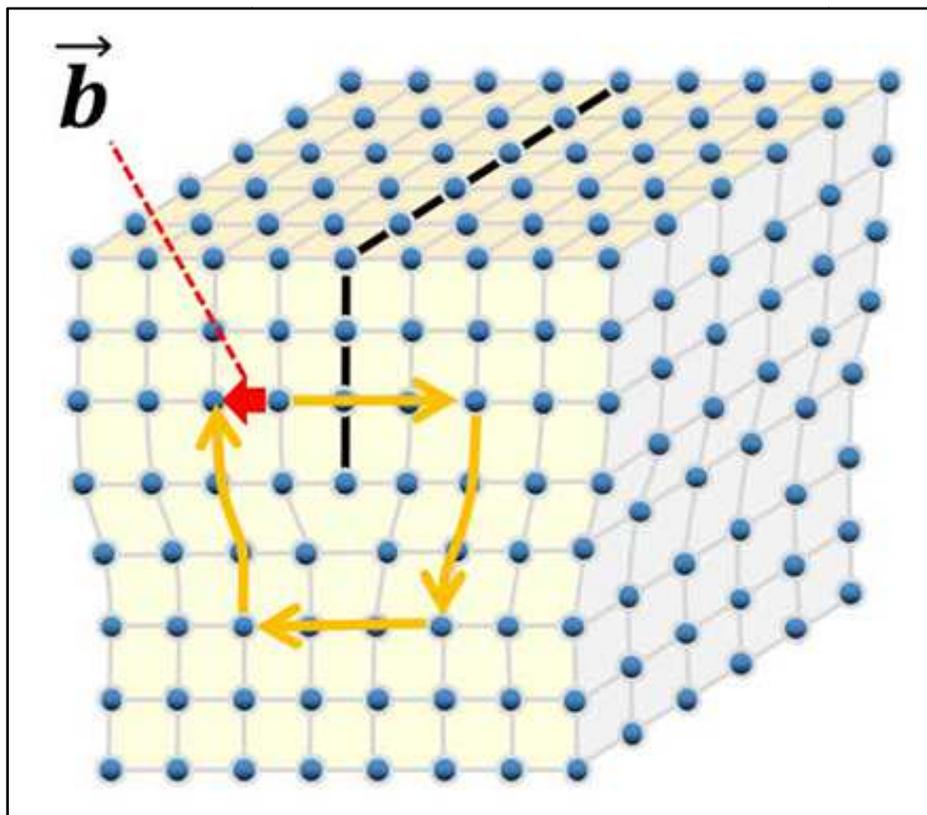


Figure 1.10. Schéma d'une dislocation coin.

1.3.2. Dislocation vis

Le deuxième type de dislocation est la dislocation dite vis illustrée sur la figure 1.11. Le vecteur de Burgers \vec{b} qui la caractérise est parallèle à la ligne de dislocation [5].

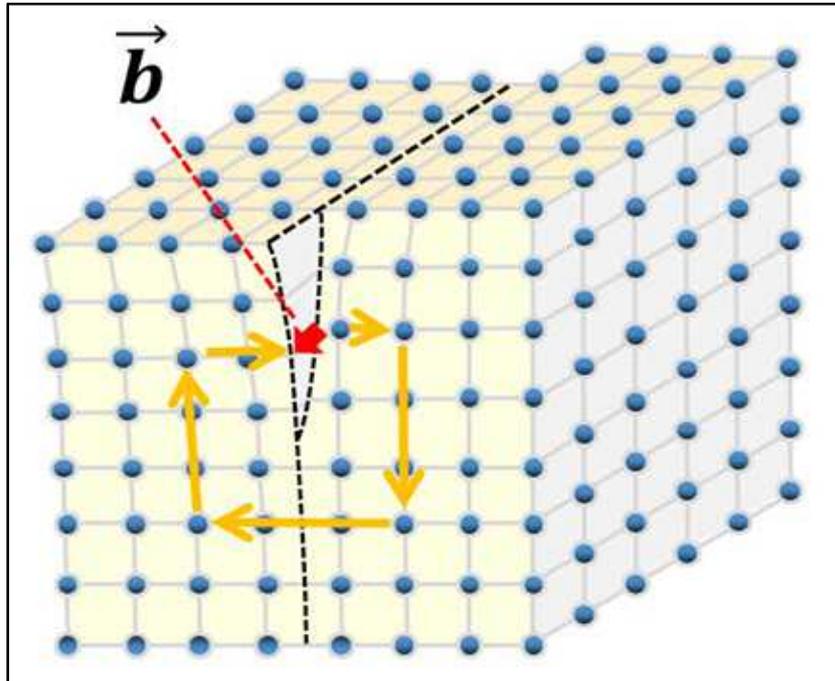


Figure 1.11. Schéma d'une dislocation vis.

Dans les cristaux réels, on rencontre des dislocations qui ne sont pas toujours rectilignes. Elles sont des dislocations mixtes, dont la ligne fait un angle quelconque avec le vecteur de Burgers. Elles peuvent être décomposées en des dislocations coin et des dislocations vis [5].

1.4. Défauts surfaciques

Les matériaux cristallins les plus répandus sont polycristallins. Ils ne sont pas constitués d'un seul cristal de taille macroscopique mais d'un grand nombre de cristaux juxtaposés appelés grains. Ces cristaux disposés aléatoirement les uns par rapport aux autres. La surface de raccordement des grains adjacents de natures identiques est appelée joint de

grains. Si les grains sont de natures différentes, la surface d'accolement est appelée joint de phases. Les joints constituent des défauts bidimensionnels (figure 1.12) [5].

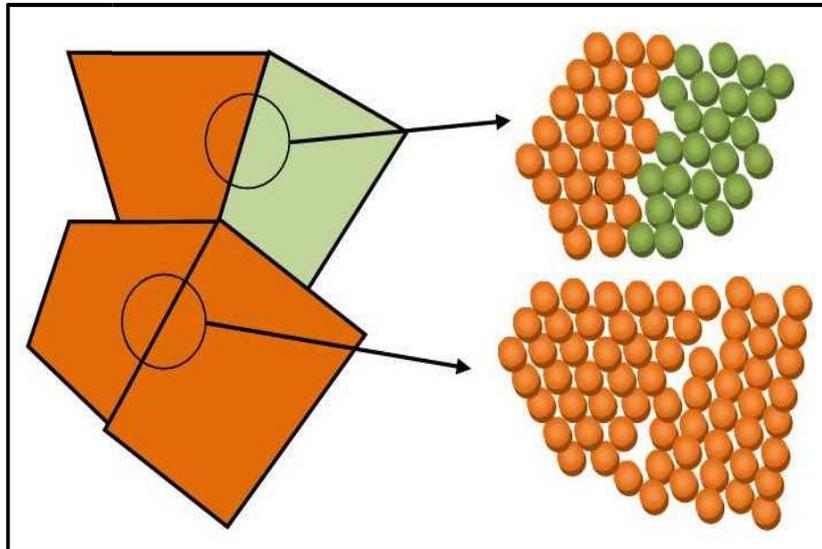


Figure 1.12. Représentation schématique d'un joint de grains et d'un joint de phases.

1.5. Défauts volumiques

Un défaut volumique est un défaut à trois dimensions. Quand une partie du cristal est remplacée par un volume d'un composé différent, la différence est de nature chimique et peut ou non être accompagnée de différences cristallographiques. Ils sont répartis en trois classes : les pores, les inclusions et les précipités [5, 27, 28].

1.5.1. Pores

Un pore est une cavité fermée au sein d'un matériau (figure 1.13). Il provient de la condensation de lacunes ou des gaz piégés pendant la phase de solidification. La présence des pores entraîne la dégradation des propriétés mécaniques des matériaux. Les pores diminuent, par exemple, la résistance mécanique du matériau et favorisent, ainsi, la rupture à de faibles charges [5].

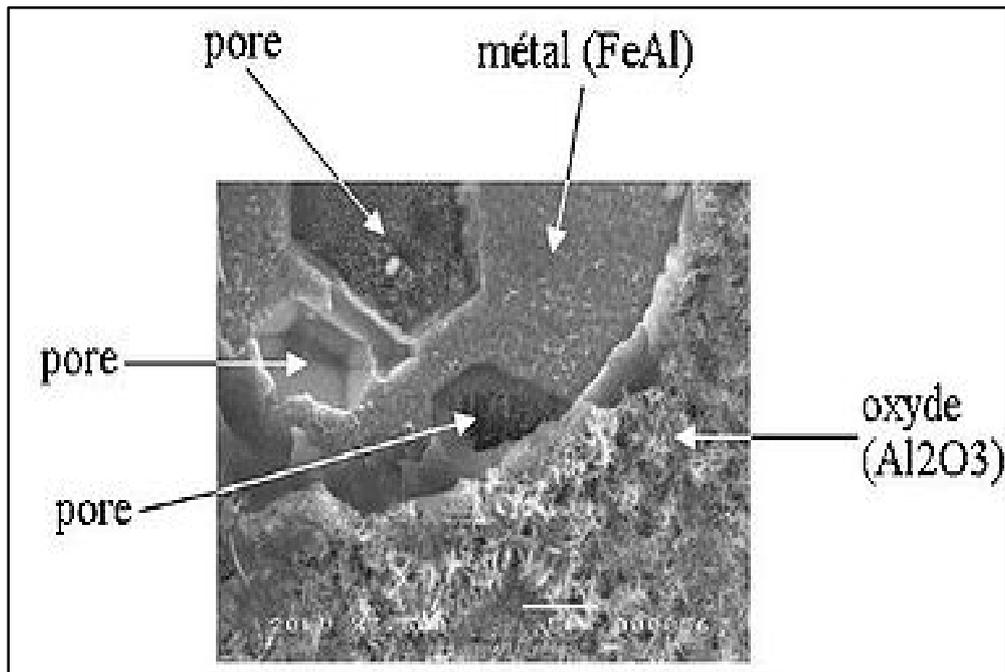


Figure 1.13. Formation de pores dans un matériau.

1.5.2. Inclusions

Les inclusions sont des constituants étrangers présents dans le matériau. Elles s'infiltrant, généralement, lors de l'élaboration du matériau et pénètrent dans le système sous forme de saletés. Elles constituent dans le solide des sites préférentiels pour la rupture et influencent sur les propriétés électriques des dispositifs microélectroniques [5].

1.5.3. Précipités

Les précipités sont de petites particules introduites dans le cristal par des réactions à l'état solide. Ils sont utilisés afin d'augmenter la résistance structurale des alliages. Leur efficacité dépend, en partie, de leur taille et de leur distribution dans le matériau [5].

1.6 Effets d'irradiation dans les matériaux

L'irradiation d'un matériau par des particules énergétiques entraîne le déplacement des atomes hors de leur site dans le réseau. Si les atomes collisionnés ont assez d'énergie, ils

peuvent provoquer d'autres déplacements. Suite à ces collisions atomiques des défauts ponctuels, notamment des lacunes et des interstitiels sont formés. Outre les déplacements atomiques des réactions nucléaires (transmutation, formation de gaz, fission) peuvent, également, se produire suite au bombardement des matériaux.

Parmi les dommages macroscopiques qui peuvent se manifester dans les matériaux irradiés, il y a : le gonflement (figure 1.14), la croissance, le durcissement, la fragilisation et la dégradation de certaines propriétés telles que la conductivité thermique, la conductivité électrique et la résistance à la corrosion [5].



Figure 1.14. Gonflement du matériau suite à son irradiation [29].

CHAPITRE 2

MODÈLE DE SIMULATION

2.1. Introduction

Lorsqu'une particule énergétique irradiante entre en collision avec un atome composant un matériau, elle lui cède une partie de son énergie entraînant l'excitation des électrons et le déplacement de l'atome hors de sa position d'équilibre. Les déplacements atomiques produisent un désordre structural au niveau microscopique en créant des lacunes et des interstitiels. Ces défauts ponctuels migrent dans le matériau. L'agglomération des défauts ponctuels de même nature conduit à la formation d'amas qui peuvent évoluer à leur tour en des cavités et des boucles de dislocations. Tous ces processus qui échappent à l'observation expérimentale directe peuvent être assez bien simulés par la méthode de la dynamique moléculaire ou le modèle de l'approximation des collisions binaires.

La dynamique moléculaire est, comme son nom l'indique, une méthode permettant de simuler l'évolution temporelle (dynamique) d'un système moléculaire à basse énergie. Elle repose généralement sur l'utilisation de la relation fondamentale de la dynamique (ou la loi de Newton). Elle conduit à des simulations réalistes des phénomènes étudiés. Les inconvénients de cette méthode résident dans [5] :

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

L'approximation des collisions binaires est une approche valable à haute énergie qui repose essentiellement sur deux hypothèses [5] :

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

2.2. Approximation des collisions binaires

Ce modèle est appliqué avec succès sur les phénomènes à relation avec l'interaction des particules énergétiques avec la matière comme la pulvérisation, l'implantation d'ions et les dégâts causés par irradiation [30-34].

2.2.1. Description de la cascade de déplacements

Dans l'irradiation des matériaux, les particules incidentes énergétiques heurtent les atomes du réseau provoquant leur déplacement. Ces atomes déplacés directement par les particules irradiantes sont communément appelés 'Primaires' ou désignés par l'acronyme PKA (pour Primary Knock-on Atom). Chaque primaire heurte les atomes du matériau se trouvant le long de son passage produisant des atomes secondaires qui peuvent à leur tour évincer d'autres atomes du réseau et ainsi de suite. On assiste alors à une avalanche de collisions atomiques appelée cascade de déplacements (figure 2.1). Il est communément admis qu'un atome, ayant subi une interaction, est déplacé définitivement s'il reçoit une quantité d'énergie supérieure à l'énergie seuil de déplacement E_d du matériau. L'estimation classique de la quantité de déplacements atomiques est donc étroitement liée à cette énergie seuil de déplacement [35]. La perte d'énergie perpétuelle que subissent les atomes suite aux collisions font qu'à long terme ralentiront et finiront par s'immobiliser, ce qui se traduit par l'arrêt de l'expansion de la cascade. Un processus de guérison ou de recombinaison se produit entre les interstitiels et les lacunes les plus proches causant la diminution des défauts générés suite à l'irradiation. La cascade à son état final est caractérisée par une zone centrale riche en lacunes et une périphérie peuplée par les interstitiels [36]

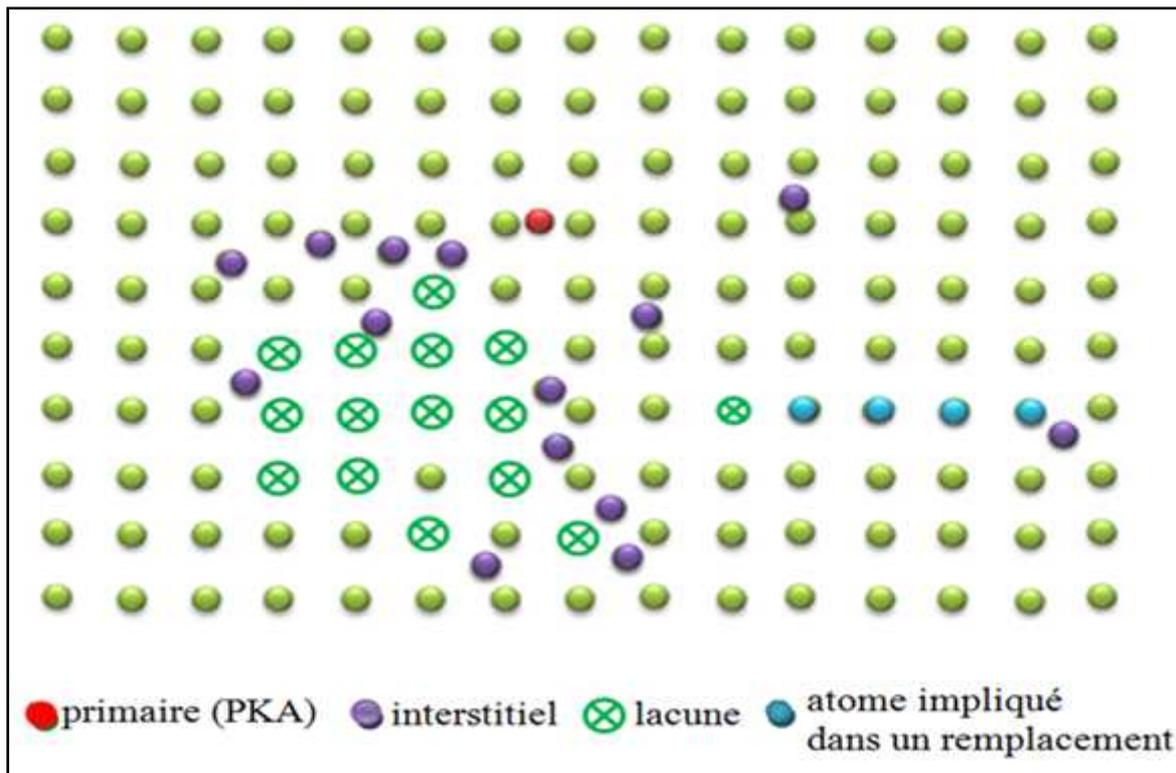


Figure 2.1. Représentation d'une cascade de déplacements.

Parmi les phénomènes qui peuvent se produire lors du développement d'une cascade de déplacements on trouve la canalisation, la focalisation et les séquences de remplacements.

2.2.2. Séquences de remplacements

Un événement de remplacement se produit lorsqu'un projectile s'immobilise à la place de l'atome cible en lui transférant l'intégralité de son énergie. A basse énergie, des séquences de remplacements (RCS) peuvent se développer, le plus souvent, le long des rangées atomiques de bas indice (figure 2.2). A la fin de telles séquences, les interstitiels se trouvent transportés assez loin des sites vacants. Cette situation favorise la création des défauts permanents dans le matériau [5].

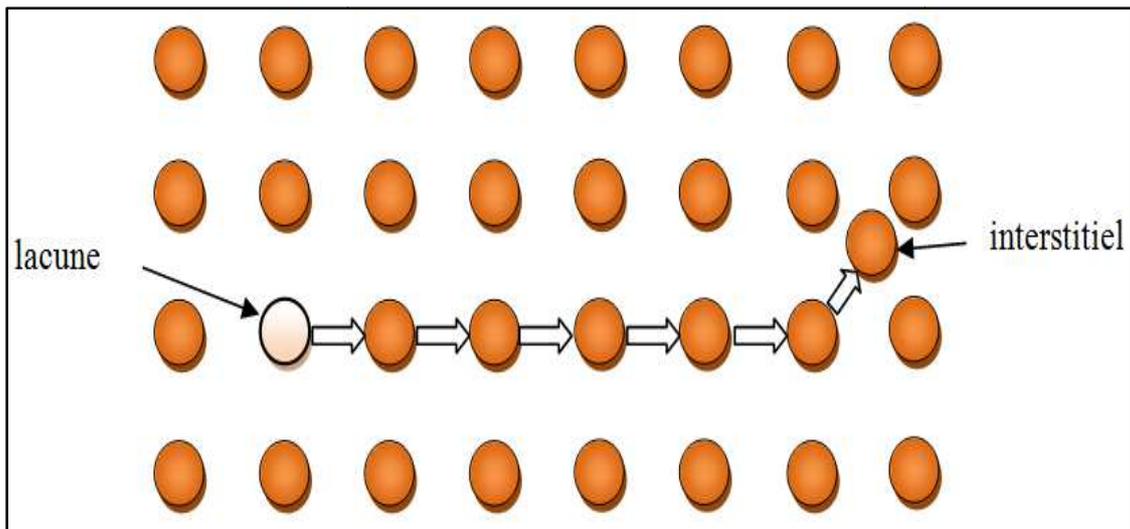


Figure 2.2. Schéma d'une séquence de remplacements.

2.2.3. Cinématique d'une collision binaire

La BCA étant fondée sur les collisions binaires, nous allons, dans ce qui suit, analyser une collision binaire en calculant différentes grandeurs physiques qui se rapportent au choc. Pour parvenir à cette fin, nous allons utiliser la mécanique des chocs et la diffusion d'une particule par un champ de force centrale. Les calculs sont effectués dans le référentiel du laboratoire (L) et dans le référentiel du centre de masse (CM). Dans la plage d'énergie qui nous intéresse, un traitement classique du phénomène de la collision atomique est suffisant. Considérons, dans le système (L), une collision entre un atome de masse m_1 , en mouvement avec une vitesse \vec{v}_0 et un atome de masse m_2 au repos. Désignons par \vec{v}_1 et \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 2.3).

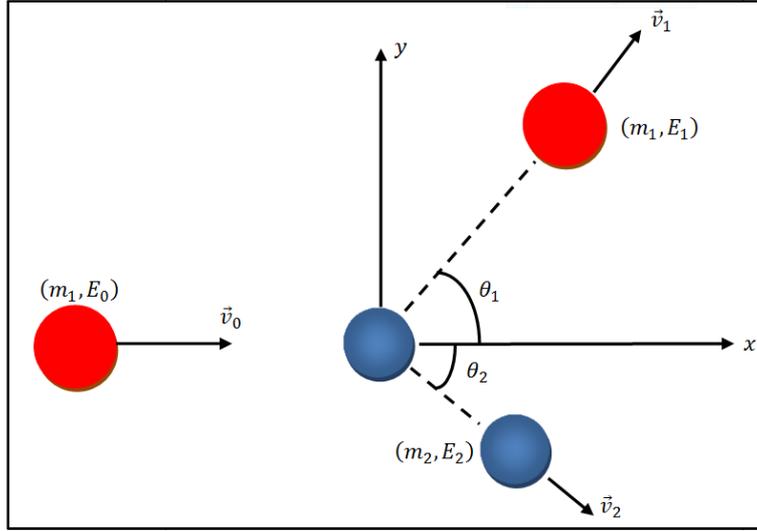


Figure 2.3. Schéma d'une collision binaire dans le système du laboratoire.

Ecrivons les lois de conservation de l'énergie totale et de la quantité de mouvement du système dans (L) [37] :

$$\frac{1}{2} m_1 v_0^2 = \frac{1}{2} m_1 v_1^2 + \frac{1}{2} m_2 v_2^2 + Q, \quad (2.1)$$

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

En projetant (2.2) sur les deux axes Ox et Oy nous obtenons :

$$\begin{cases} m_1 v_0 = m_1 v_1 \cos \theta_1 + m_2 v_2 \cos \theta_2 \end{cases} \quad (2.3)$$

$$\begin{cases} 0 = m_1 v_1 \sin \theta_1 - m_2 v_2 \sin \theta_2 \end{cases} \quad (2.4)$$

où θ_1 et θ_2 dénotent, respectivement, l'angle de diffusion du projectile et l'angle de diffusion de l'atome cible par rapport à la direction d'incidence. Les relations (2.1), (2.3) et (2.4) permettent de tirer les angles de diffusion [37] :

$$\cos \theta_1 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_1}{E_0}} (1 + A) + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_0}{E_1}} \left[1 - A \left(1 - \frac{Q}{E_0} \right) \right], \quad (2.5)$$

$$\cos\theta_2 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_2}{E_0} \frac{1+A}{\sqrt{A}}} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_0}{E_2} \frac{1}{\sqrt{A}} \frac{Q}{E_0}}, \quad (2.6)$$

où E_0 et E_1 désignent, respectivement, l'énergie cinétique du projectile avant et après la collision, E_2 l'énergie cinétique de l'atome cible après la collision et A est le rapport entre les masses des deux atomes : $A = m_2/m_1$. Les relations entre les angles θ_i et l'angle de diffusion dans le système de centre de masse, ϑ , sont données par [5, 37] :

$$\cos\theta_1 = \frac{1+Af\cos\vartheta}{\sqrt{1+2Af\cos\vartheta+A^2f^2}}, \quad (2.7)$$

$$\cos\theta_2 = \frac{1-f\cos\vartheta}{\sqrt{2-2f\cos\vartheta-(1-f^2)\cos^2\vartheta}}, \quad (2.8)$$

où le coefficient f à pour expression :

$$f = \sqrt{1 - \frac{Q}{E_r}}, \quad (2.9)$$

2.2.4. Energie transférée

Afin de calculer l'énergie cinétique du projectile et de l'atome cible après la collision en fonction de l'angle de diffusion dans le système (CM), tirons les expressions des rapports E_1/E_0 et E_2/E_0 des relations (2.5) et (2.6) [37] :

$$\frac{E_1}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} \left(\cos\theta_1 \pm \sqrt{A^2f^2 - \sin^2\theta_1} \right)^2 = \left(\frac{v_1}{v_0} \right)^2, \quad (2.10)$$

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{A}{(1+A)^2} \left(\cos\theta_2 \pm \sqrt{f^2 - \sin^2\theta_2} \right)^2 = A \left(\frac{v_2}{v_0} \right)^2, \quad (2.11)$$

Servons-nous ensuite des expressions (2.7) et (2.8) :

$$\frac{E_1}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} \left((1+Af)^2 - 4Af\sin^2\frac{\vartheta}{2} \right), \quad (2.12)$$

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{A}{(1+A)^2} \left((1-f)^2 + 4f\sin^2\frac{\vartheta}{2} \right), \quad (2.13)$$

Ainsi, l'atome cible reçoit après le choc l'énergie :

$$E_2 = T = \frac{E_r}{(1+A)} \left((1-f)^2 + 4f \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right), \quad (2.14)$$

où E_r a pour expression :

$$E_r = E_{1c} + E_{2c} = \frac{A}{1+A} E_0, \quad (2.15)$$

L'énergie transférée à l'atome cible, T , prend une valeur maximale lorsque la perte d'énergie inélastique est nulle ($Q = 0$, ce qui revient à poser $f = 1$) et $\sin^2(\vartheta/2) = 1$:

$$T_{max} = \frac{4}{1+A} E_r = \frac{4A}{(1+A)^2} E_0, \quad (2.16)$$

2.2.5. Angle de diffusion

Les expressions (2.7), (2.8), (2.12) et (2.14) établies pour les angles de diffusion et les énergies du projectile et de la cible après collision dans le système (L) montrent qu'elles dépendent toutes de l'angle de diffusion ϑ . Cet angle a une relation étroite avec le potentiel de pair, V , qui modélise l'interaction entre les deux atomes en collision. La théorie du mouvement d'une particule dans un champ de force centrale (voir figure 2.4) permet d'écrire [37] :

$$\vartheta = \pi - 2s \int_R^\infty \frac{dr}{r^2 g(r)}, \quad (2.17)$$

où $g(r)$ est une fonction donnée par :

$$g(r) = \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_r} \frac{s^2}{r^2}}, \quad (2.18)$$

Elle s'annule pour $r = R$ qui est appelée la distance minimale d'approche. Le paramètre s dans l'expression (2.17) est la distance entre la cible et l'axe de la vitesse du projectile. Cette distance, est appelée paramètre d'impact.

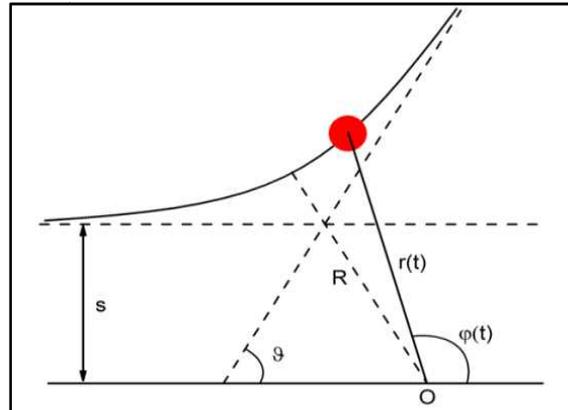


Figure 2.4. Angle de diffusion ϑ dans le référentiel du centre de masse.

Les points d'intersection des asymptotes du projectile et de l'atome cible (voir figure 2.5) ont pour abscisses x_1 et x_2 données par [38] :

$$x_1 = \frac{[(1+f)\tau + (fA-1)st \tan \frac{\vartheta}{2}]}{f(1+A)}, \quad (2.19)$$

$$x_2 = st \tan \frac{\vartheta}{2} - x_1, \quad (2.20)$$

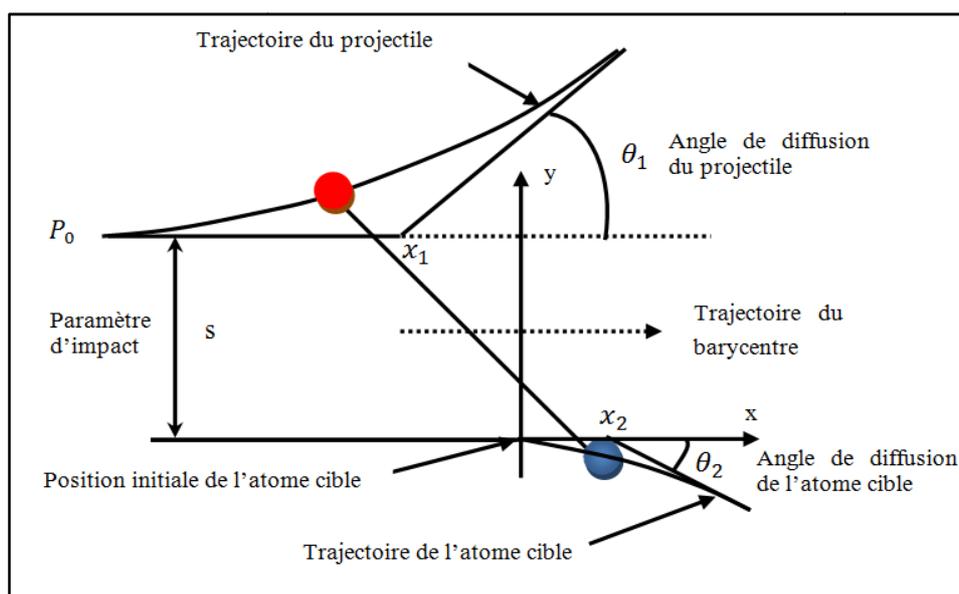


Figure 2.5. Trajectoires de deux atomes en collision dans le référentiel du laboratoire.

2.3 Perte d'énergie

Une particule chargée pénétrant dans un matériau, perd progressivement son énergie par différents mécanismes, pour s'arrêter à l'intérieur du milieu cible, rebondir à sa surface ou le traverser complètement [39]. Si nous négligeons les réactions nucléaires qui, dans la région énergétique qui nous intéresse, ont des sections efficaces trop faibles pour apporter une contribution notable à l'endommagement nous pouvons dire que deux mécanismes fondamentaux décrivent l'interaction de l'ion incident dans la matière : ils sont les collisions élastiques et les collisions inélastiques [40]. 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.

On appelle la perte d'énergie de la particule par unité de distance parcourue le pouvoir d'arrêt du matériau cible. 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 :

$$S = \frac{1}{N} \left(-\frac{dE}{dx} \right) [MeV.cm^2/atome], \quad (2.21)$$

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

$$\left(-\frac{dE}{dx} \right)_m = \frac{1}{\rho} \left(-\frac{dE}{dx} \right) [MeV.cm^2.g^{-1}], \quad (2.22)$$

2.3.1. Pertes d'énergie inélastiques

Le pouvoir d'arrêt inélastique ou électronique, $(-dE/dx)_e$, dépend de la vitesse v du projectile et de sa charge Z_1e . On distingue trois domaines de vitesse, 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 :

Domaine $v \gg V_B Z_1^{2/3}$: 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 par la formule de Bethe et Bloch [5] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = NS_{BB} = \frac{e^4}{4\pi\epsilon_0^2 m_e C^2} \frac{Z_1^2}{\beta^2} \frac{N_a \rho Z_2}{A} \left[\ln\left(\frac{2 m_e C^2 \beta^2}{I}\right) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 - \frac{C_K}{Z} - \frac{\delta}{2} \right], \quad (2.23)$$

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 $\beta = v/C$ (C étant 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.

Domaine $v \ll Z_1^{2/3} e^2/\hbar$: Deux modèles basés sur les collisions binaires sont utilisés pour évaluer le pouvoir d'arrêt dans ce domaine ; 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 forment une quasi-molécule pendant la période d'interaction. L'interaction entre les deux atomes donne lieu à des échanges électroniques qui nécessitent l'acquisition d'impulsion provenant de la collision. L'expression du pouvoir d'arrêt linéaire donnée par Firsov a la forme [5] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = 5.15 \cdot 10^{-15} N (Z_1 + Z_2) \frac{v}{V_B}, \quad (2.24)$$

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, 41] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = NS_{LS} = \frac{2 e^2 N a_B Z_1^{7/6} Z_2}{\varepsilon_0 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2} V_B} v, \quad (2.25)$$

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 :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = k\sqrt{E}, \quad (2.26)$$

où k est une constante. Dans ce domaine de vitesses, la perte d'énergie croit avec l'énergie de la particule.

Domaine des vitesses intermédiaires $v \approx Z_1^{2/3} e^2 / \hbar$: le pouvoir d'arrêt dans ce domaine peut être déduit à partir de ceux des deux autres domaines par une interpolation de la forme [37] :

$$\frac{1}{S} = \frac{1}{S_{BB}} + \frac{1}{S_{LS}}, \quad (2.27)$$

2.3.2. Pertes d'énergie élastiques

Le pouvoir d'arrêt nucléaire d'un milieu pour une particule est donné par [5, 42] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T \sigma(T) dT , \quad (2.28)$$

où T est l'énergie transmet à l'atome cible et susceptible de l'évincer de son site 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. Lorsque l'interaction entre les deux atomes en collision est décrite par un potentiel coulombien, le pouvoir d'arrêt nucléaire a pour expression :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = \frac{2\pi N m_1 Z_1^2 Z_2^2 e^4}{m_2 E} \ln\left(\frac{T_{max}}{T_{min}}\right). \quad (2.29)$$

Pour un potentiel écranté de type Thomas-Fermi, Biersack proposa la relation suivante [5] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = 4\pi N Z_1 Z_2 e^2 a_{12} \frac{m_1}{(m_1+m_2)} \frac{\ln \epsilon}{2\epsilon(1-\epsilon^{-1.49})}, \quad (2.30)$$

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

$$a_{12} = \frac{0.4685}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}}, \quad (2.31)$$

et ϵ est l'énergie réduite dont l'expression est :

$$\epsilon = \frac{m_2 a_{12}}{(m_1+m_2)} \frac{E}{Z_1 Z_2 e^2}, \quad (2.32)$$

2.3.3. 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 :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right) = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_N + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_e. \quad (2.33)$$

Il faut noter que la perte d'énergie des particules lourdes chargées dans un milieu est essentiellement de nature électronique à haute énergie et qu'elle est presque exclusivement nucléaire à très basse énergie [5].

2.4. Nombre de paires de Frenkel stables

Dans l'irradiation des matériaux, il est important de connaître le nombre de défauts ponctuels permanents causés par les particules irradiantes. D'après les études effectuées, ce nombre est considérablement faible par rapport au nombre de défauts générés durant la phase balistique. Le processus de recombinaison qui implique les interstitiels et les lacunes est responsable de la réduction du nombre de défauts à la fin de la cascade. Dans la simulation par la BCA, une paire de Frenkel est considérée comme stable si la distance entre l'interstitiel et la lacune qui lui est associée est supérieure à une certaine distance appelée rayon de recombinaison [42, 43].

Des modèles théoriques ont été développés pour prédire avec justesse le nombre de paires de Frenkel permanentes produites dans une cascade par un primaire. Parmi ces modèles on cite le modèle de Kinchin-Pease (KP), le modèle de Norgett-Robinson-Torrens (NRT), et le modèle arc-dpa.

2.4.1. Modèle de Kinchin-Pease

Le modèle de Kinchin-Pease est le modèle le plus simple développé sur la base de l'approximation des collisions binaires pour prédire le nombre de paires de Frenkel produites par un primaire dans un matériau. Selon ce modèle, ce nombre est donné par [5] :

$$N_d(E) = \begin{cases} 0 & \text{si } E < E_d \\ 1 & \text{si } E_d \leq E < 2E_d \\ \frac{E}{2E_d} & \text{si } 2E_d \leq E < E^* \\ \frac{E^*}{2E_d} & \text{si } E \geq E^* \end{cases}, \quad (2.34)$$

où E est l'énergie cinétique du primaire, E^* est l'énergie seuil qui sépare les deux régions ; $E \geq E^*$ où la perte d'énergie est purement inélastique et $E < E^*$ où la perte d'énergie est exclusivement élastique.

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].

2.4.2. Modèle de Norgett-Robinson-Torrens

Ce modèle établi par Norgett, Robinson et Torrens est plus raffiné que celui de KP puisqu'il permet un passage en douceur entre les deux régimes de perte d'énergie électronique et nucléaire. Selon ce modèle, le nombre de paires de Frenkel générées par un primaire d'énergie cinétique initiale E est donné par [5, 44] :

$$N_{NRT}(E) = 0.8 \frac{E_{dam}(E)}{2E_d}, \quad (2.35)$$

où E_d dénote l'énergie seuil de déplacement du matériau et E_{dam} désigne l'énergie disponible pour le déplacement atomique (énergie dissipée par collisions élastiques menant à la formation des défauts). L'énergie E_{dam} est liée à l'énergie cinétique du primaire, E , par la relation suivante [44] :

$$E_{dam}(E) = \frac{E}{1+k_N g(\epsilon_N)}, \quad (2.36)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} g(\varepsilon_N) = 3.4008 \varepsilon_N^{1/6} + 0.40244 \varepsilon_N^{3/4} + \varepsilon_N \\ k_N = 0.1337 Z_1^{1/6} \left(\frac{Z_1}{A_1}\right)^{1/2} \\ \varepsilon_N = \left(\frac{A_2 E}{A_1 + A_2}\right) \left(\frac{a_1}{Z_1 Z_2 e^2}\right) \\ a_1 = \left(\frac{9 \pi^2}{128}\right)^{1/3} \frac{a_B}{\sqrt{Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}}} \end{array} \right. , \quad (2.37)$$

où A_1 et A_2 sont, respectivement, les nombres de masse du primaire et de l'atome cible.

Le modèle NRT a été amélioré par l'introduction du coefficient d'efficacité du déplacement η dont la détermination peut être effectuée expérimentalement par étude de la résistivité du matériau. Le nombre de paires de Frenkel produites dans un matériau suite à son irradiation par un primaire s'écrit donc [44] :

$$N(E) = \eta N_{NRT} , \quad (2.38)$$

2.4.3. Modèle arc-dpa

Le modèle arc-dpa (Athermal Recombination-Corrected Displacement) est conçu pour améliorer les résultats du modèle NRT, car ce dernier surestime le nombre de paires de Frenkel dans les matériaux irradiés. Ce modèle permet, entre autres, de prédire avec plus de précision le nombre de défauts stables produits par irradiation [45, 46].

Selon ce modèle, le nombre de paires de Frenkel permanentes est donné par :

$$N_d(E_{dam}) = \begin{cases} 0 & E_{dam} < E_d \\ 1 & E_d < E_{dam} < 2 E_d / 0.8 \\ \frac{0.8}{2 E_d} \xi_{arc dpa}(E_{dam}) \cdot E_{dam} & E_{dam} > 2 E_d / 0.8 \end{cases} , \quad (2.39)$$

où l'efficacité de génération de défauts $\xi_{arc dpa}$ a pour expression :

$$\xi_{arc dpa}(E_{dam}) = \frac{1-c_{arc dpa}}{(2E_d/0.8)^{b_{arc dpa}}} E_{dam}^{b_{arc dpa}} + c_{arc dpa} , \quad (2.40)$$

Le paramètre $b_{arc dpa}$ est égal à -1 pour la plupart des éléments du tableau périodique, alors que $c_{arc dpa}$ est donné dans le tableau suivant [46].

Tableau 2.1. Valeurs du paramètre $c_{arc dpa}$

3 Li	0.34 ± 0.10	37 Rb	0.31 ± 0.09	65 Tb	0.49 ± 0.14
4 Be	0.46 ± 0.14	38 Sr	0.38 ± 0.11	66 Dy	0.46 ± 0.13
5 B	0.58 ± 0.19	39 Y	0.50 ± 0.16	67 Ho	0.46 ± 0.13
6 C	0.71 ± 0.24	40 Zr	0.70 ± 0.20	68 Er	0.47 ± 0.13
11 Na	0.32 ± 0.10	41 Nb	0.63 ± 0.19	69 Tm	0.44 ± 0.13
12 Mg	0.44 ± 0.13	42 Mo	0.46 ± 0.13	70 Yb	0.38 ± 0.11
13 Al	0.44 ± 0.13	43 Tc	0.47 ± 0.13	71 Lu	0.50 ± 0.14
14 Si	0.50 ± 0.14	44 Ru	0.47 ± 0.13	72 Hf	0.57 ± 0.16
15 P	0.36 ± 0.12	45 Rh	0.42 ± 0.12	73 Ta	0.72 ± 0.20
16 S	0.36 ± 0.11	46 Pd	0.32 ± 0.09	74 W	0.60 ± 0.17
19 K	0.33 ± 0.14	47 Ag	0.31 ± 0.17	75 Re	0.87 ± 0.25
20 Ca	0.41 ± 0.18	48 Cd	0.45 ± 0.13	76 Os	0.62 ± 0.17
21 Sc	0.53 ± 0.24	49 In	0.23 ± 0.08	77 Ir	0.50 ± 0.14
22 Ti	0.83 ± 0.25	50 Sn	0.70 ± 0.29	78 Pt	0.36 ± 0.10
23 V	0.51 ± 0.15	51 Sb	0.40 ± 0.21	79 Au	0.43 ± 0.12
24 Cr	0.37 ± 0.10	52 Te	0.38 ± 0.19	80 Hg	0.28 ± 0.09
25 Mn	0.33 ± 0.09	53 I	0.33 ± 0.16	81 Tl	0.32 ± 0.09
26 Fe	0.31 ± 0.09	55 Cs	0.32 ± 0.15	82 Pb	0.33 ± 0.09
27 Co	0.26 ± 0.08	56 Ba	0.40 ± 0.17	83 Bi	0.31 ± 0.09
28 Ni	0.23 ± 0.08	57 La	0.47 ± 0.19	84 Po	0.29 ± 0.08
29 Cu	0.30 ± 0.09	58 Ce	0.46 ± 0.17	85 At	0.30 ± 0.08
30 Zn	0.37 ± 0.10	59 Pr	0.46 ± 0.17	87 Fr	0.39 ± 0.10
31 Ga	0.33 ± 0.10	60 Nd	0.46 ± 0.17	88 Ra	0.31 ± 0.09
32 Ge	0.43 ± 0.12	61 Pm	0.47 ± 0.15	89 Ac	0.37 ± 0.11
33 As	0.40 ± 0.11	62 Sm	0.42 ± 0.14	90 Th	0.42 ± 0.12
34 Se	0.35 ± 0.10	63 Eu	0.40 ± 0.13	91 Pa	0.42 ± 0.11
35 Br	0.31 ± 0.09	64 Gd	0.49 ± 0.15	92 U	0.39 ± 0.11

La valeur moyenne de l'énergie seuil de déplacement pour certains éléments est donnée dans le tableau 2.2.

Tableau 2.2. Valeurs de l'énergie seuil de déplacement pour certains éléments.

3 Li	19 ± 4	37 Rb	17 ± 4	65 Tb	36 ± 7
4 Be	31 ± 6	38 Sr	24 ± 5	66 Dy	34 ± 7
5 B	46 ± 9	39 Y	36 ± 7	67 Ho	36 ± 7
6 C	69 ± 14	40 Zr	40 ± 8	68 Er	37 ± 7
11 Na	17 ± 4	41 Nb	78 ± 16	69 Tm	36 ± 7
12 Mg	20 ± 4	42 Mo	65 ± 13	70 Yb	27 ± 5
13 Al	27 ± 5	43 Tc	58 ± 12	71 Lu	44 ± 9
14 Si	37 ± 7	44 Ru	60 ± 12	72 Hf	61 ± 12
15 P	20 ± 5	45 Rh	51 ± 10	73 Ta	90 ± 18
16 S	20 ± 4	46 Pd	41 ± 8	74 W	90 ± 18
19 K	16 ± 4	47 Ag	39 ± 8	75 Re	60 ± 12
20 Ca	23 ± 5	48 Cd	30 ± 6	76 Os	69 ± 14
21 Sc	33 ± 7	49 In	12 ± 2	77 Ir	58 ± 12
22 Ti	30 ± 6	50 Sn	20 ± 10	78 Pt	44 ± 9
23 V	57 ± 11	51 Sb	22 ± 6	79 Au	43 ± 9
24 Cr	40 ± 8	52 Te	20 ± 5	80 Hg	20 ± 5
25 Mn	33 ± 7	53 I	16 ± 4	81 Tl	24 ± 5
26 Fe	40 ± 8	55 Cs	15 ± 4	82 Pb	25 ± 5
27 Co	36 ± 7	56 Ba	22 ± 4	83 Bi	23 ± 5
28 Ni	33 ± 7	57 La	29 ± 6	84 Po	22 ± 4
29 Cu	30 ± 6	58 Ce	28 ± 6	85 At	22 ± 4
30 Zn	29 ± 6	59 Pr	27 ± 5	87 Fr	34 ± 6
31 Ga	23 ± 5	60 Nd	28 ± 6	88 Ra	24 ± 5
32 Ge	35 ± 7	61 Pm	30 ± 5	89 Ac	33 ± 7
33 As	31 ± 6	62 Sm	27 ± 5	90 Th	44 ± 9
34 Se	23 ± 5	63 Eu	24 ± 5	91 Pa	43 ± 7
35 Br	19 ± 4	64 Gd	35 ± 7	92 U	39 ± 8

CHAPITRE 3

RÉSULTATS ET DISCUSSION

3.1. Introduction

Dans ce dernier chapitre, nous présentons les résultats de simulations de l'irradiation du hafnium. Les simulations ont été faites en utilisant le code Marlowe fondé sur le modèle de l'approximation des collisions binaires. Marlowe est largement utilisé pour simuler les interactions entre les particules et la matière [30-34, 47-50]. À partir de données décrivant la particule irradiante (numéro atomique, masse atomique, énergie cinétique,) et le matériau (numéro atomique, masse atomique, structure cristalline, énergie de liaison,...) Il permet de donner en sortie une analyse statistique de nombreuses caractéristiques des cascades de déplacements telles que le nombre moyen de paires de Frenkel produites, la distribution de ces paires en fonction de la distance de séparation lacune-interstitiel et le volume occupé par la cascade de déplacements. Il existe dans la littérature de nombreuses références qui décrivent en détail le code et ses applications [51-55].

3.2. Paramètres de simulation

Le hafnium est un métal de transition lourd de numéro atomique $Z = 72$ et de masse atomique $W = 178,492$ uma [12]. Il a une température de fusion très élevée et qui culmine à 2233 °C [13]. Certaines propriétés du hafnium sont regroupées dans le tableau 3.1.

Le hafnium cristallise dans la structure hexagonale compacte (hcp) (voir figure 3.1) avec des constantes de réseau $a = b = 3.1946$ Å, $c = 5.0510$ Å, $\alpha = \beta = 90^\circ$ et $\gamma = 120^\circ$ [56]. Le code Marlowe génère automatiquement les positions des atomes dans le cristal à partir de la connaissance du type du réseau et des coordonnées des deux sites atomiques $(0,0,0)$ et $(\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{1}{2})$.

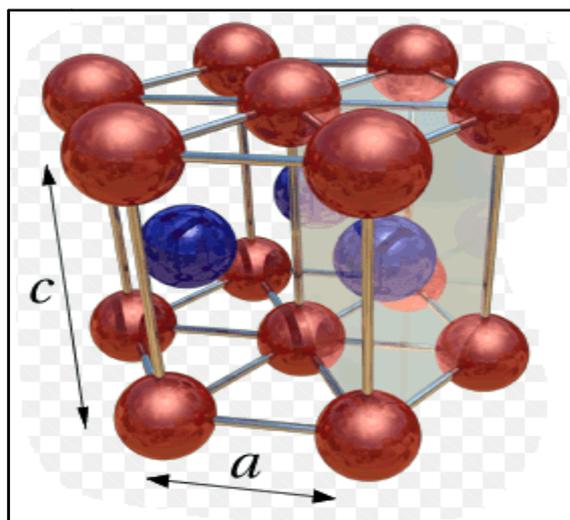


Figure 3.1. Structure hexagonale compacte.

Tableau 3.1. Propriétés du hafnium

Symbole	Hf
Numéro atomique	72
Masse atomique	$178,49 \pm 0,02$ uma
Point de fusion	$2\,233$ °C
Groupe	4
Configuration électronique	[Xe] $6s^2 4f^{14} 5d^2$
Groupe de symétrie	P63/mmc (N° 194)
Famille d'éléments	Métal de transition
Rayon atomique	155 pm
Énergies d'ionisation	1 ^{re} : 6.82507 eV 2 ^e : 15 eV 3 ^e : 23.3 eV 4 ^e : 33.33 eV
Masse volumique	$13,281$ g·cm ⁻³ (20 °C)
État ordinaire	Solide
Système cristallin	Hexagonal compact $a = b = 3.1946$ Å, $\alpha = \beta = 90^\circ$, $\gamma = 120^\circ$
Point d'ébullition	$4\,603$ °C
Conductivité électrique	$3,12 \times 10^6$ S·m ⁻¹
Conductivité thermique	$18,4$ W·m ⁻¹ ·K ⁻¹
Energie de cohésion	6.44 eV/atome
Température de Debye (à 298 K)	213 K

Les interactions entre les atomes du hafnium dans la cascade sont modélisées par le potentiel de paires de Ziegler-Biersack-Littmark (ZBL) dit aussi potentiel universel. C'est un potentiel coulombien écranté de type répulsif (comme le montre la figure 3.2). Son expression est donnée par :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r / a_{ZBL})}. \quad (3.1)$$

Les valeurs des coefficients c_i et d_i sont $c_i = (0.028171, 0.280180, 0.509860, 0.181790)$ et $d_i = (0.201600, 0.402900, 0.942300, 3.200000)$. Le paramètre a_{ZBL} est appelé rayon d'écran. Il est estimé dans le programme à partir de la relation qui le relie aux numéros atomiques Z_1 et Z_2 des deux atomes en collision :

$$a_{ZBL} = \frac{0.8853 a_B}{Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23}}, \quad (3.2)$$

a_B étant le rayon de Bohr $a_B = 0.529 \text{ \AA}$. Sa valeur dans la simulation est $a_{ZBL} = 0.0875966 \text{ \AA}$.

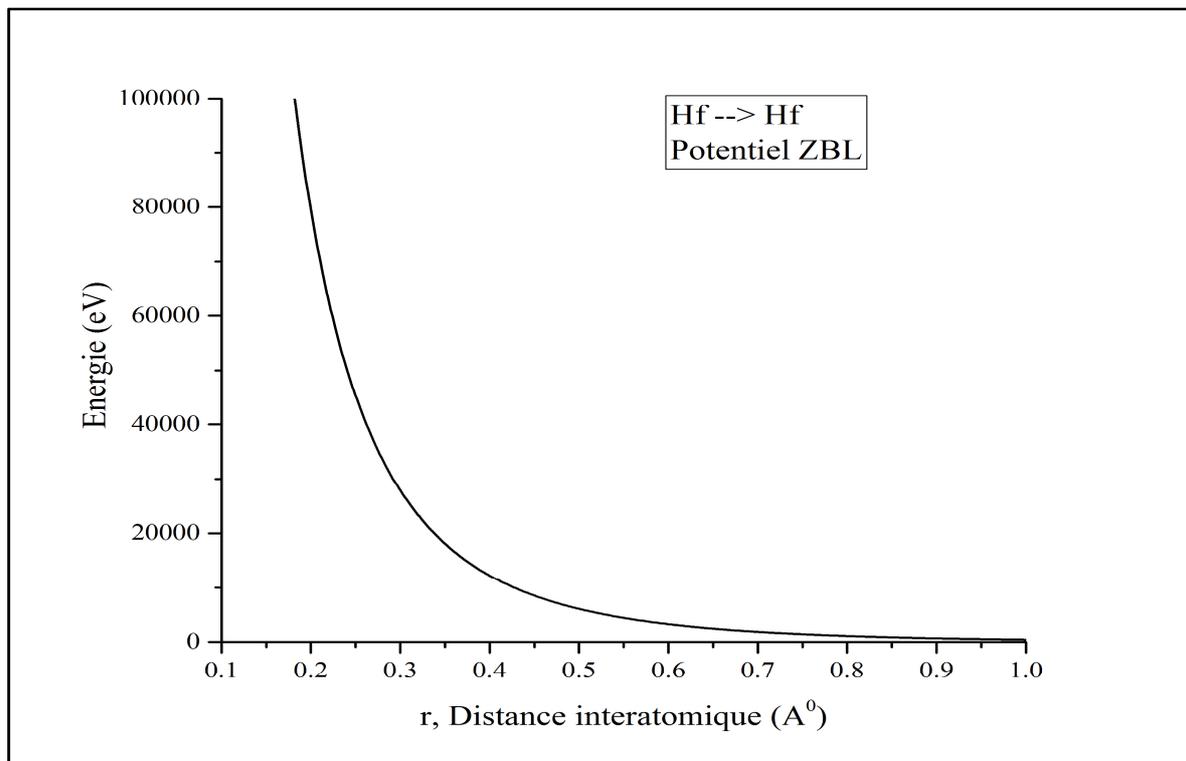


Figure 3.2. Potentiel ZBL entre deux atomes de hafnium.

Afin d'accumuler une quantité importante de statistiques nécessaires à une étude adéquate des caractéristiques des cascades de déplacements, nous avons simulé l'irradiation

du hafnium en générant 5000 cascades. L'irradiation est interne, c'est-à-dire que chaque cascade est initiée par un atome de hafnium lancé à partir d'un site du réseau avec une énergie cinétique qui peut aller jusqu'à 30 keV. Ce premier atome représente le primaire. La direction de lancement du primaire est aléatoire.

Dans une cascade de déplacements, lorsqu'un atome en mouvement éjecte un atome du réseau de sa position d'équilibre, on parle d'un événement de déplacement. L'atome collisionné doit surmonter une énergie de liaison égale à l'énergie de cohésion du hafnium $E_{th}=6.44$ eV [23] pour qu'il soit ajouté aux atomes de la cascade. Lorsque le projectile évince l'atome cible et prend sa place, on parle d'un événement de remplacement et l'énergie de liaison requise dans ce cas est $E_r=0.2$ eV. Dans un événement de redéplacement qui correspond au déplacement d'un atome cible stoppé en position interstitielle, l'énergie de liaison associée est nulle. Pour l'énergie de coupure, E_c , qui représente l'énergie cinétique d'un atome au dessous de laquelle l'atome est considéré comme arrêté nous avons adopté la même valeur que E_{th} .

La perte d'énergie inélastique (due à l'excitation et l'ionisation des électrons du milieu) est supposée être locale, c'est-à-dire qu'elle dépend non seulement de l'énergie cinétique du projectile mais également de la distance qui le sépare avec l'atome cible. L'estimation de cette perte est faite, dans Marlowe, en se basant sur le modèle de Oen-Robinson. Selon ce modèle, la perte d'énergie dans une seule collision est donnée par [37, 56] :

$$Q_{OR}(R, E) = F_k \sqrt{E} \left(\frac{\gamma^2}{2\pi a_{ZBL}^2} \right) e^{-\frac{\gamma R}{a_{ZBL}}}, \quad (3.3)$$

avec $F_k = 4.72593 \sqrt{eV} \text{Å}^2$ et le paramètre γ est égal à 0.3.

Les vibrations thermiques des atomes du réseau autour de leurs positions d'équilibre sont décrites par le modèle de Debye. Les calculs sont effectués pour une température du cristal de 300 K. La température de Debye du hafnium à la température ambiante est

$T_D = 213$ K [57]. Pour réguler le nombre de collisions qu'un projectile peut avoir à la fois, nous avons attribué au paramètre d'impact maximum s_{max} la valeur $0.71a$. Le tableau (3.2) regroupe les paramètres de simulation pour l'irradiation du hafnium.

Tableau 3.2. Paramètres de simulation de l'irradiation du hafnium.

Cristal	Hafnium (Hf)
Numéro atomique	72
Masse atomique	178,492
Structure du cristal	Hexagonale compacte
Paramètres du réseau	$a = b = 3.1946 \text{ \AA}, c = 5.0510 \text{ \AA}, \alpha = \beta = 90^\circ, \gamma = 120^\circ$
Energie du primaire	5 - 30 keV
Nombre de cascades	5000
Potentiel interatomique	Potentiel ZBL (universel)
Direction initiale du primaire	Aléatoire
Energie de cohésion	6.44 eV/atome
Energie de déplacement	6.44 eV
Energie de redéplacement	0.0 eV
Energie de remplacement	0.2 eV
Energie de coupure	6.44 eV
Energie inélastique	Locale (modèle de Oen-Robinson)
Température du cristal	300 K
Température de Debye	213 K
Paramètre d'impact maximum	$0.71a$
Energie seuil de déplacement	61 eV
$b_{arc\text{d}pa}$	-1
$c_{arc\text{d}pa}$	0.57
Rayon de recombinaison	$3.50a$

3.3. Ajustement du nombre de paires de Frenkel

La tâche la plus importante dans l'étude de défauts dans les matériaux irradiés est la détermination du nombre de défauts permanents produits c'est-à-dire le nombre de défauts qui subsistent à la recombinaison. Nous présentons sur la figure 3.3 les résultats de la simulation

des cascades de déplacements de 5, 10, 15 et 20 keV. Les interstitiels et les lacunes schématisés sont des défauts initiaux c'est-à-dire produits durant la phase balistique et sans aucune recombinaison.

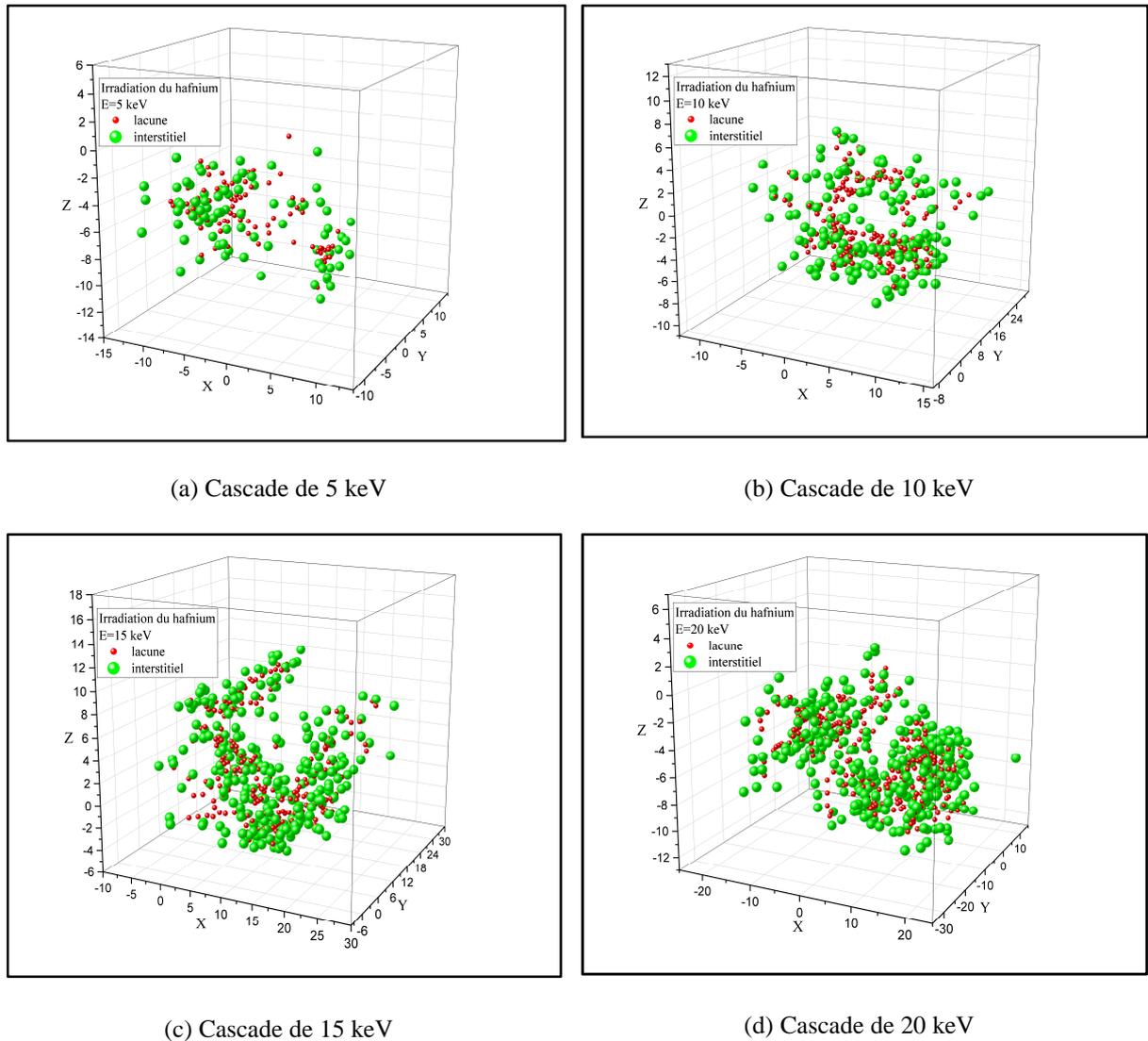


Figure 3.3. Cascades de déplacements dans le hafnium irradié avant la recombinaison

À la fin d'une cascade, les interstitiels et les lacunes sont regroupés en paires de Frenkel de la manière suivante : Le code 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 générés soient appariés. Puis, les paires sont arrangées en

trois classes. Dans la première, appelée “paires proches”, le site le plus proche de l’interstitiel est vacant. Dans la deuxième classe, nommée “paires voisines”, le site le plus proche de l’interstitiel est occupé ou bien il est déjà apparié mais un site voisin défini par la description du cristal est vide et non apparié. Toutes les autres paires sont classées en des “paires distantes”. Les paires classées proches et voisines sont considérées instables et les interstitiels et les lacunes les composant se recombinent.

À partir des coordonnées des lacunes et des interstitiels, une fonction de distribution est construite pour les paires distantes. Elle donne pour une distance de séparation interstitiel-lacune r_{VI} le nombre de paires dont la distance de séparation est supérieure à r_{VI} . Nous rapportons sur la figure 3.4 la fonction de distribution de paires de Frenkel distantes pour le hafnium irradié avec des primaires d’énergie 5, 10, 15 et 20 keV. On constate que le nombre total de paires de Frenkel distantes décroît rapidement lorsque la distance de séparation interstitiel-lacune devient supérieure à $1.75a$. Ceci traduit le fait qu’un grand nombre d’interstitiels ont terminé leurs trajectoires à proximité des lacunes.

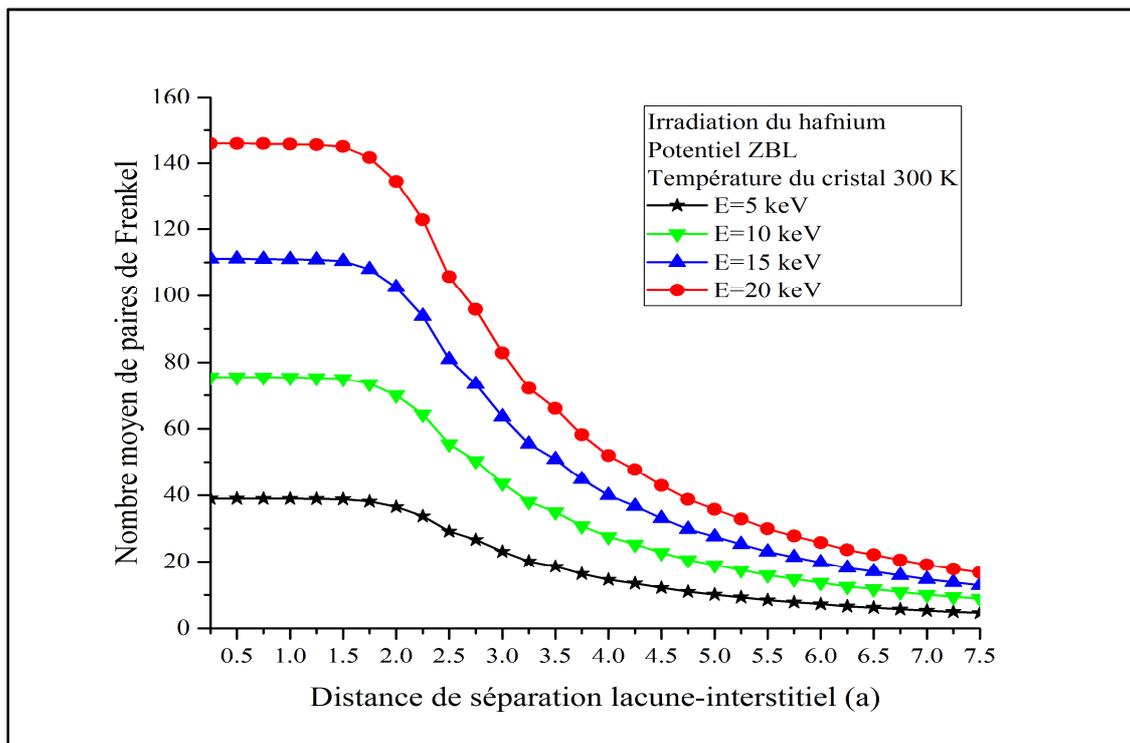


Figure 3.4. Nombre moyen de paires de Frenkel dans le hafnium irradié.

Les études effectuées sur les matériaux irradiés montrent que le nombre de paires de Frenkel stables est, en réalité, beaucoup plus faible que celui trouvé par la simulation basée sur la BCA. Ceci suggère un processus de recombinaison supplémentaire pour réduire davantage le nombre de défauts. Pour tenir compte de ce fait, on introduit un volume d'instabilité [42, 43, 50]. On considère alors qu'une paire de Frenkel est stable si la distance qui sépare la lacune de l'interstitiel est plus grande que le rayon de ce volume d'instabilité, r_V , appelé aussi rayon de recombinaison.

Pour $r_{VI} < r_V$ il y a recombinaison entre les membres de la paire et elle ne sera pas comptée parmi les défauts permanents. Le rayon de recombinaison dépend du potentiel d'interaction atomique utilisé [5].

Afin de déterminer le rayon de recombinaison, nous avons calculé, à partir des expressions (2.39) et (2.40), le nombre de paires de Frenkel prédit par le modèle arc-dpa pour des énergies du primaire allant de 5 à 30 keV. Les valeurs utilisées pour l'énergie seuil de déplacement du hafnium, E_d , et les coefficients $b_{arc dpa}$ et $c_{arc dpa}$ sont, respectivement, 61eV, -1 et 0.57 [46]. Ensuite, Nous avons essayé de retrouver les mêmes résultats en changeant le rayon de recombinaison, r_V , dans Marlowe. Le tableau 3.3 regroupe le nombre de paires de Frenkel prédit par le modèle arc-dpa et calculé par Marlowe pour les rayons de recombinaison $3.0a$, $3.50a$ et $4.0a$.

Comme il est montré sur la figure 3.5 et le tableau 3.3, les résultats concordent pour le rayon de recombinaison $3.50a$.

Tableau 3.3. Nombre moyen de paires de Frenkel calculé à partir du modèle arc-dpa et Marlowe

Energie (keV)	Nombre moyen de paires de Frenkel			
	arc-dpa	Marlowe		
	$b_{\text{arc-dpa}} = -1$ $c_{\text{arc-dpa}} = 0.57$, $E_d = 61 \text{ eV}$	$r_V = 3.00 \text{ a}$	$r_V = 3.50 \text{ a}$	$r_V = 4.00 \text{ a}$
5	16	20	16	14
10	30	38	31	25
15	45	55	45	37
20	59	72	58	48
25	73	89	72	59
30	87	105	85	69

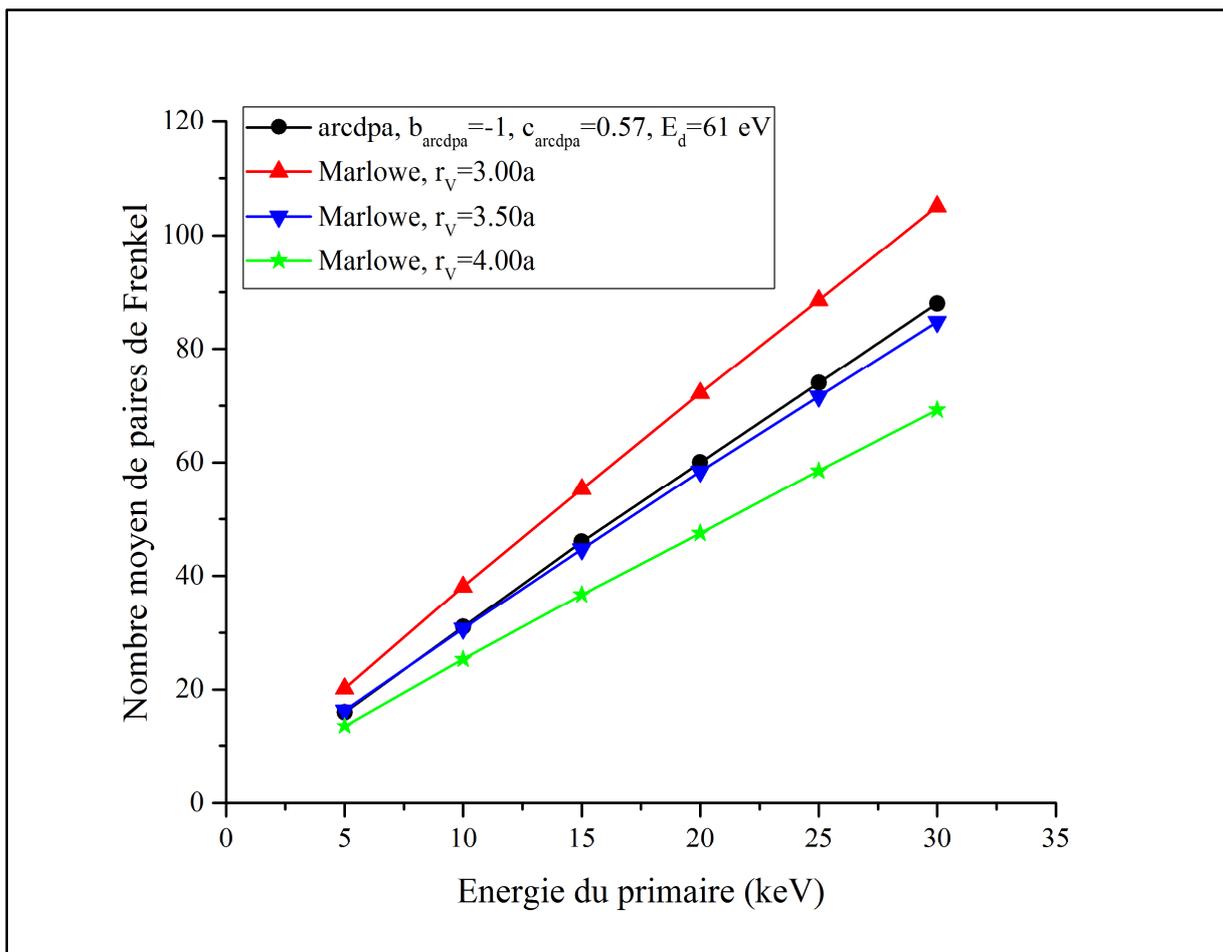


Figure 3.5. Nombre de paires de Frenkel pour différentes valeurs du rayon de recombinaison.

La simulation des cascades de déplacements avec les mêmes énergies du primaire prises précédemment et un rayon de recombinaison $r_V = 3.50a$ a donné les cascades schématisées sur la figure 3.6. Il est clair, maintenant, que les défauts permanents induits par irradiation du hafnium sont beaucoup moins nombreux.

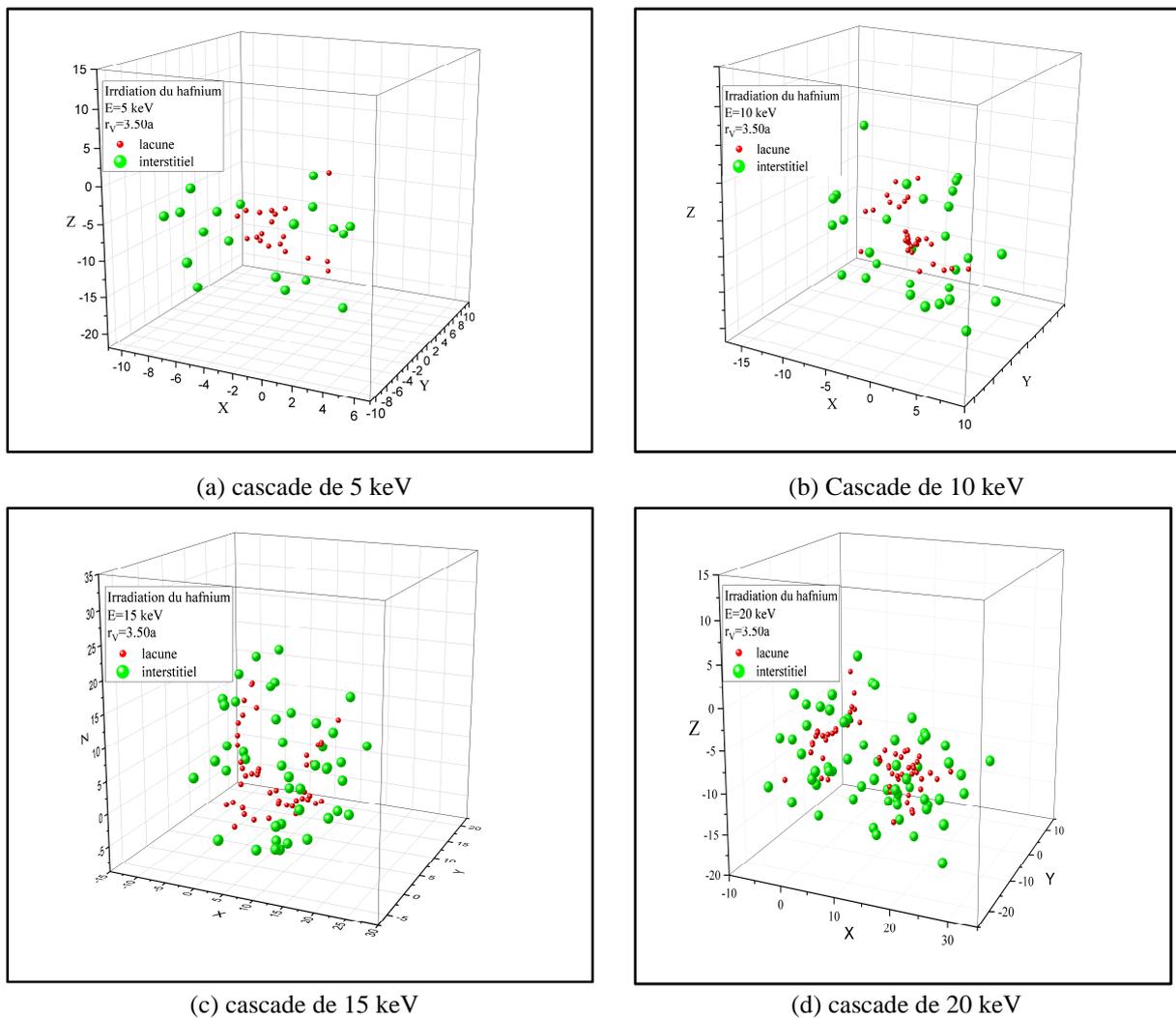


Figure 3.6. Cascades de déplacements dans le hafnium irradié après recombinaison.

3.4. Atomes en mouvement

L'étude de la variation du nombre d'atomes en mouvement en fonction du temps donne une idée sur l'aspect temporel du développement de la cascade de déplacements. Le

résultat d'une telle étude est présenté sur la figure 3.7. L'irradiation est faite avec des primaires d'énergie cinétique 5, 10, 15 et 20 keV. Toutes Les courbes sont caractérisées par l'existence de deux phases séparées par un maximum à environ 170 fs. La première phase de montée correspond au mouvement des atomes déplacés par le primaire (car ils se trouvaient au voisinage de son passage) et par les secondaires et tout atome mobile capable de transférer une énergie suffisante aux atomes cibles pour les mettre en mouvement. La deuxième phase de décroissance traduit le fait que les atomes mobiles perdent avec le temps de leur énergie cinétique par collisions élastiques et inélastiques et deviennent incapables de communiquer aux atomes cibles l'énergie nécessaire pour les mettre en mouvement.

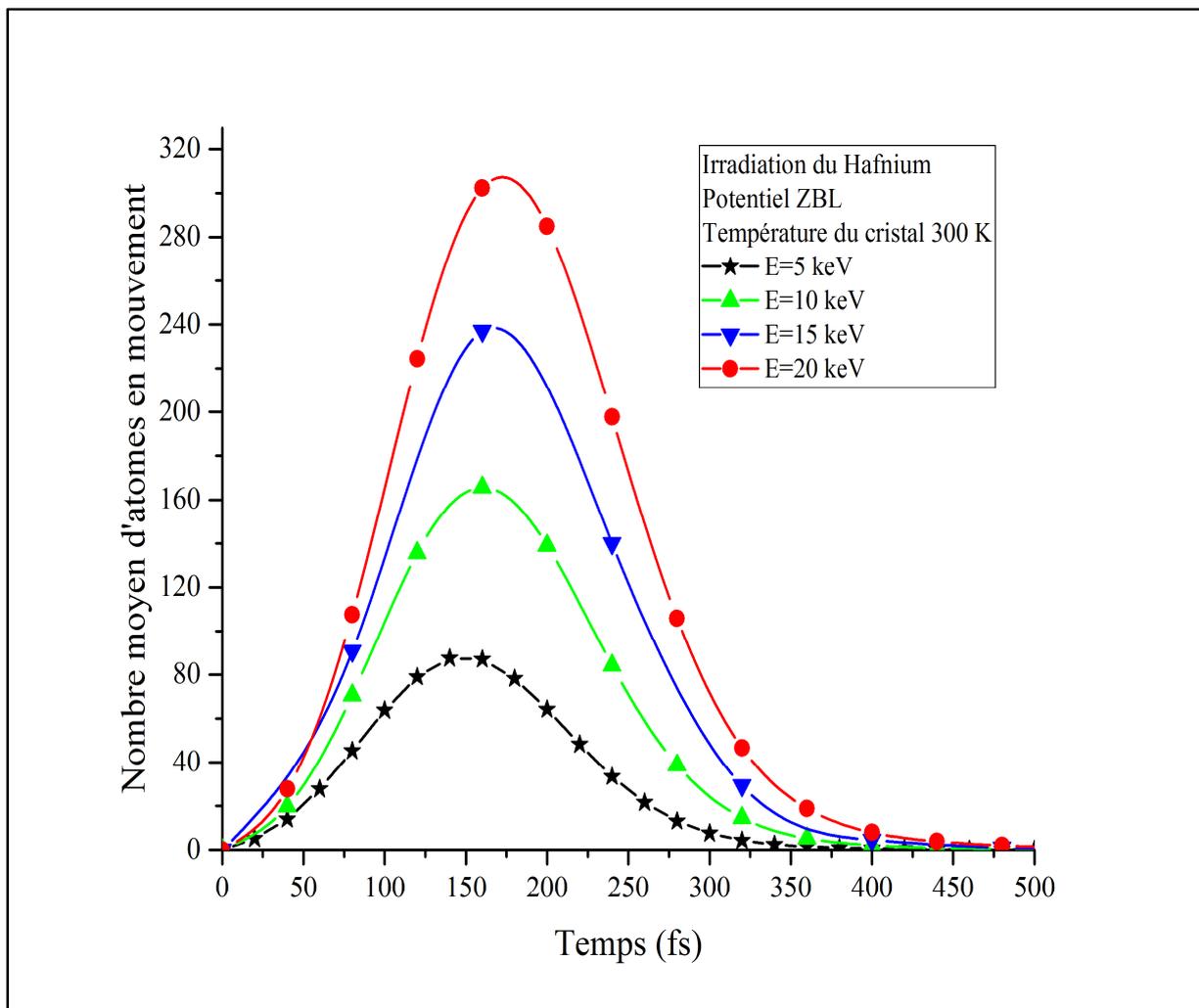


Figure 3.7. Nombre moyen d'atomes en mouvement dans le hafnium irradié.

On constate que plus le primaire est énergétique plus il y a d'énergie disponible dans la cascade pour faire mouvoir plus d'atomes. Toutefois, le temps de développement des cascades de déplacements dans le hafnium reste approximativement le même pour toutes les énergies du primaire. Il ne dure que quelques dixièmes de picoseconde.

3.5. Atomes déplacés

Le déplacement des atomes du réseau et le processus de guérison constituent les facteurs les plus importants dans la détermination du nombre de paires de Frenkel stables à la fin d'une cascade. En effet, les déplacements créent les lacunes et les interstitiels et la recombinaison réduit le nombre de ces défauts ponctuels. La figure 3.8 illustre la somme cumulée d'atomes du réseau déplacés dans le hafnium irradié par des primaires d'énergie initiale de 5, 10, 15 et 20 keV. Toutes les courbes ont la même allure. Cette allure peut être expliquée par le fait qu'à court terme les déplacements sont fréquents et en augmentation car les atomes mobiles sont énergétiques et délogent facilement les atomes du réseau. Au fur et à mesure que la cascade se développe, les projectiles perdent graduellement leur énergie cinétique par différents mécanismes. L'énergie transférée aux atomes cibles s'affaiblit avec le temps jusqu'à ce qu'elle soit insuffisante pour causer des déplacements. Dès lors, la somme cumulée des atomes déplacés reste inchangée.

Les résultats de la simulation montrent une augmentation sensible du nombre d'atomes déplacés lorsque l'énergie du primaire augmente. Dans le domaine énergétique de notre étude, ce nombre devient deux fois plus grand lorsque l'énergie est doublée.

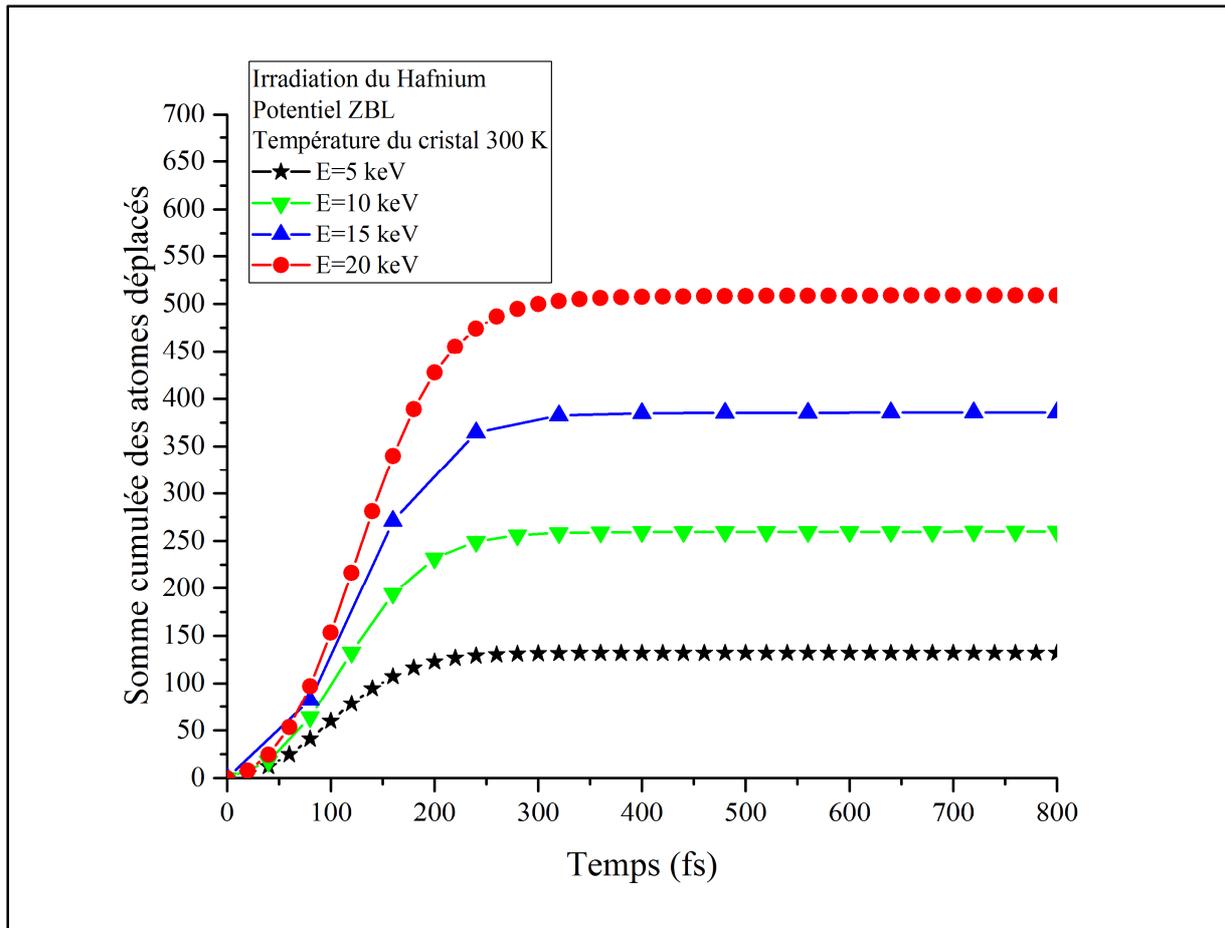


Figure 3.8. Somme cumulée d'atomes déplacés dans le hafnium irradié.

Nous savons que dans une cascade de déplacements, la plupart des défauts ponctuels produits pendant la phase balistique ne survivent pas à la recombinaison. Dans le tableau 3.4 nous dressons le taux des atomes déplacés qui constituent des défauts permanents. Il est à noter que pour toutes les énergies utilisées, ce taux avoisine 12%.

Tableau 3.4. Taux de déplacements permanents dans le hafnium irradié.

Energie du primaire (keV)	5	10	15	20
Nombres total d'atomes déplacés	132	260	386	509
Nombre de paires de Frenkel stables	16	31	45	58
Taux	12.1%	11.9%	11.7%	11.4%

3.6. Distribution spatiale des défauts

Même si Brinkman a été le premier à suggérer le concept de cascade de déplacements, c'est à Seeger qu'on doit l'image que nous avons actuellement sur la répartition spatiale des défauts ponctuels créés dans un matériau irradié. Seeger a proposé qu'une particule irradiante traversant un matériau crée une région fortement endommagée et très chaude [58]. Cette région est composée d'une zone centrale dépeuplée, c'est-à-dire riche en lacunes, entourée d'une couronne formée essentiellement d'interstitiels. Beavan et al. confirmèrent expérimentalement l'image de Seeger en examinant par microscopie ionique un échantillon de tungstène irradié [59].

Nous avons examiné, pour le hafnium irradié avec des primaires d'énergie 5, 10, 15 et 20 keV, la configuration spatiale des cascades de déplacements. Nous avons représenté sur la figure 3.9 les défauts permanents (c'est-à-dire qui ont survécu à la recombinaison) de la cascade de 20 keV. Les autres cascades sont illustrées sur la figure 3.6. Lorsqu'on simule 5000 cascades de déplacements initiées avec la même énergie du primaire, on trouve que les positions spatiales des défauts permanents changent d'une cascade à une autre (car les primaires prennent initialement des directions aléatoires et les collisions atomiques ont un caractère aléatoire) mais la configuration spatiale finale de toutes les cascades concorde avec l'image de Seeger. On constate qu'il y a bien une séparation entre les deux types de défauts ponctuels. Le cœur de la cascade est occupé majoritairement par les lacunes tandis que la périphérie est composée essentiellement d'interstitiels.

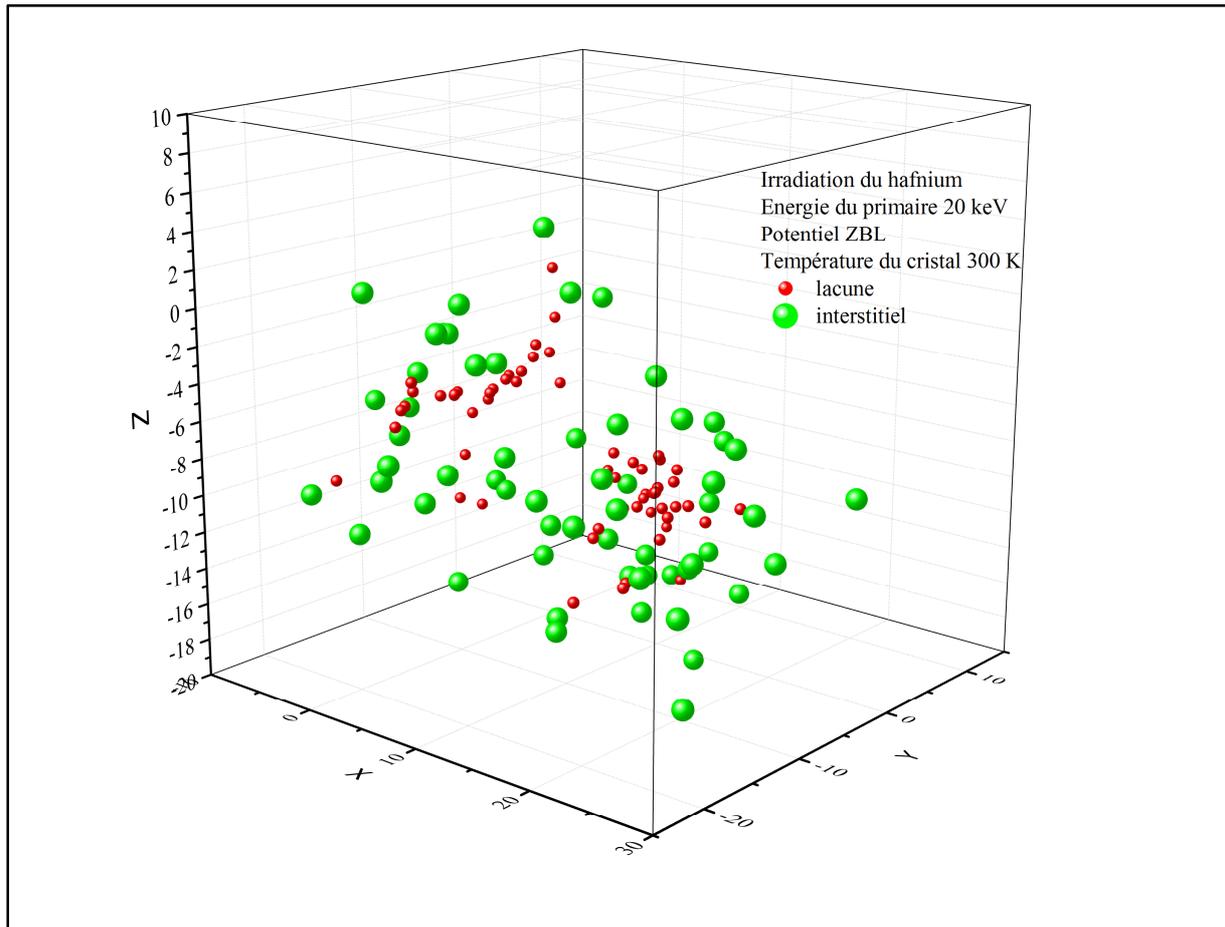


Figure 3.9. Distribution spatiale des défauts dans le hafnium irradié à 20 keV.

3.7. Volume de la cascade

Dans l'étude des dommages induits par irradiation, on s'intéresse souvent à l'étendu du dégât qui peut être caractérisé par le volume de la région endommagée. Lorsqu'on simule l'irradiation d'un matériau, le volume de cette région correspond au volume de la cascade de déplacements. Et vu que la simulation de l'irradiation se base sur les collisions atomiques qui ont un caractère aléatoire, alors une étude statistique s'impose. On doit simuler plusieurs cascades de déplacements, calculer le volume de chaque cascade puis faire une distribution des volumes pour tirer des informations sur la zone endommagée.

Plusieurs méthodes ont été proposées pour estimer le volume d'une cascade. Une première approche consiste à assimiler la cascade à une sphère dont le rayon serait la dispersion moyenne des défauts autour du centre de la cascade. Mais cette méthode, à un seul paramètre, ne donne pas la bonne représentation géométrique de la cascade. Une autre approche consiste à remplacer la sphère par un cylindre et de calculer son rayon de base et sa longueur par des moyens statistiques. Cette méthode à deux paramètres ne décrit pas non plus, fidèlement, la morphologie de certaines cascades comme par exemple les cascades plates. La méthode la plus utilisée actuellement consiste à substituer à la cascade un ellipsoïde défini par les longueurs de ses trois axes principaux (figure 3.10). Avec ces trois paramètres, un calcul du volume de la cascade et une représentation fine de sa géométrie peuvent être effectués.

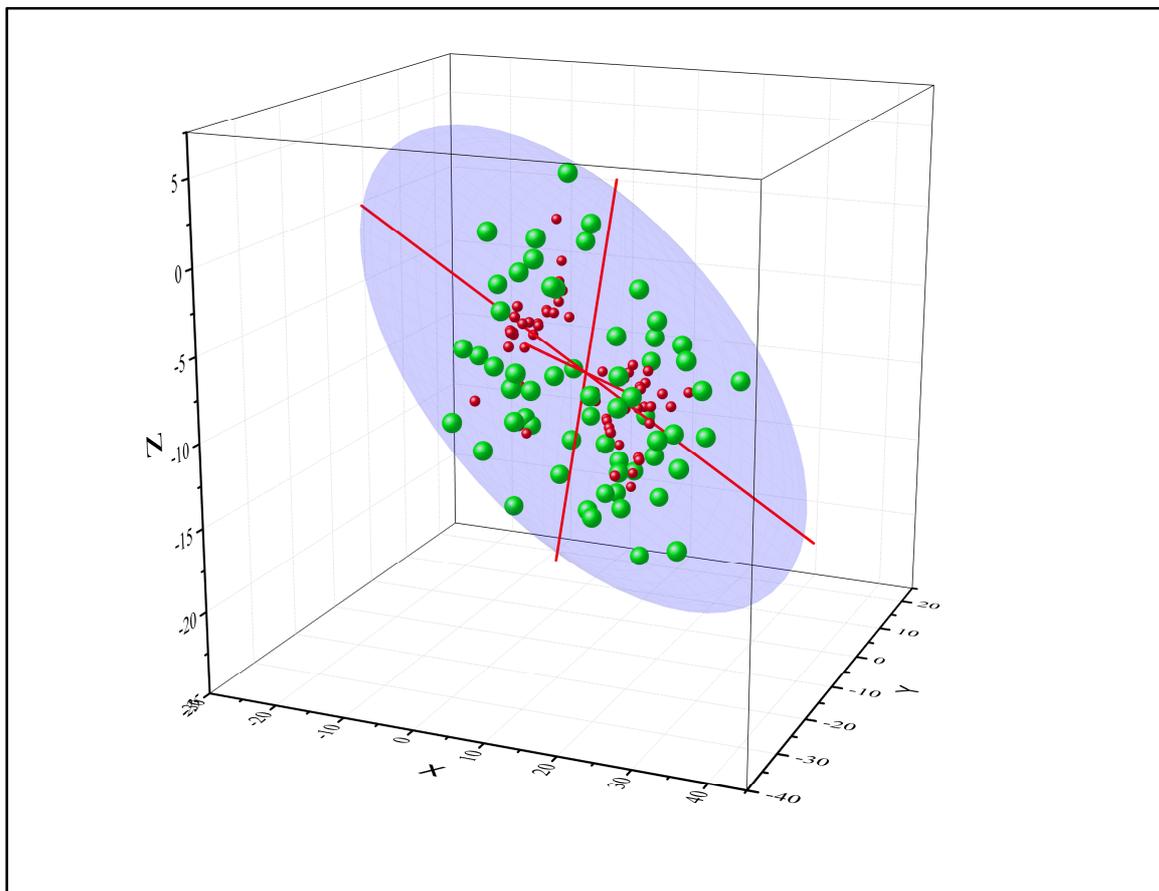


Figure 3.10. Représentation de la méthode d'analyse en composantes principales.

La détermination de la longueur des axes principaux de l'ellipsoïde et leur orientation spatiale se fait en utilisant la méthode statistique d'analyse en composantes principales (ACP). Elle permet à partir des coordonnées des défauts ponctuels de construire la matrice des covariances centrées, M , de dimensions 3x3 et qui est réelle et symétrique [37, 60]:

$$M_{ij} = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n (x_{ik} - \langle x_i \rangle)(x_{jk} - \langle x_j \rangle), \quad (3.4)$$

où i, j dénotent les coordonnées x, y et z du $k^{\text{ème}}$ défaut ponctuel, n désigne le nombre de défauts ponctuels dans la cascade et $\langle x \rangle$ le barycentre de cette collection de points. Les directions des axes principaux de l'ellipsoïde sont données par les vecteurs propres de M . Les racines carrées des valeurs propres de M représentent les longueurs des demi-axes de l'ellipsoïde. Ainsi le volume de la cascade peut être approché par le volume de l'ellipsoïde. Ce travail refait pour les 5000 cascades permet de faire une distribution des volumes.

La figure 3.11 illustre les distributions de volumes obtenues pour des primaires de 5, 10, 15 et 20 keV. Nous constatons que les distributions obtenues pour les énergies les plus basses (pour 5 et 10 keV) sont plus étroites et qu'il y a resserrement de volumes des cascades pour donner un maximum plus prononcé à ces distributions. Plus l'énergie du primaire est grande plus les distributions s'élargissent et leur asymétrie devient notable. Pour toutes les énergies du primaire, on observe une dispersion des volumes et un étirement des queues vers les volumes les plus élevés. Il est à noter, aussi, que plus l'irradiation du matériau se fait avec des particules énergétiques plus la probabilité d'avoir une zone endommagée grande est élevée. La classe modale de la distribution pour 10 keV est de 400 à 450 a^3 , alors qu'elle est de 850 à 900 a^3 pour 20 keV.

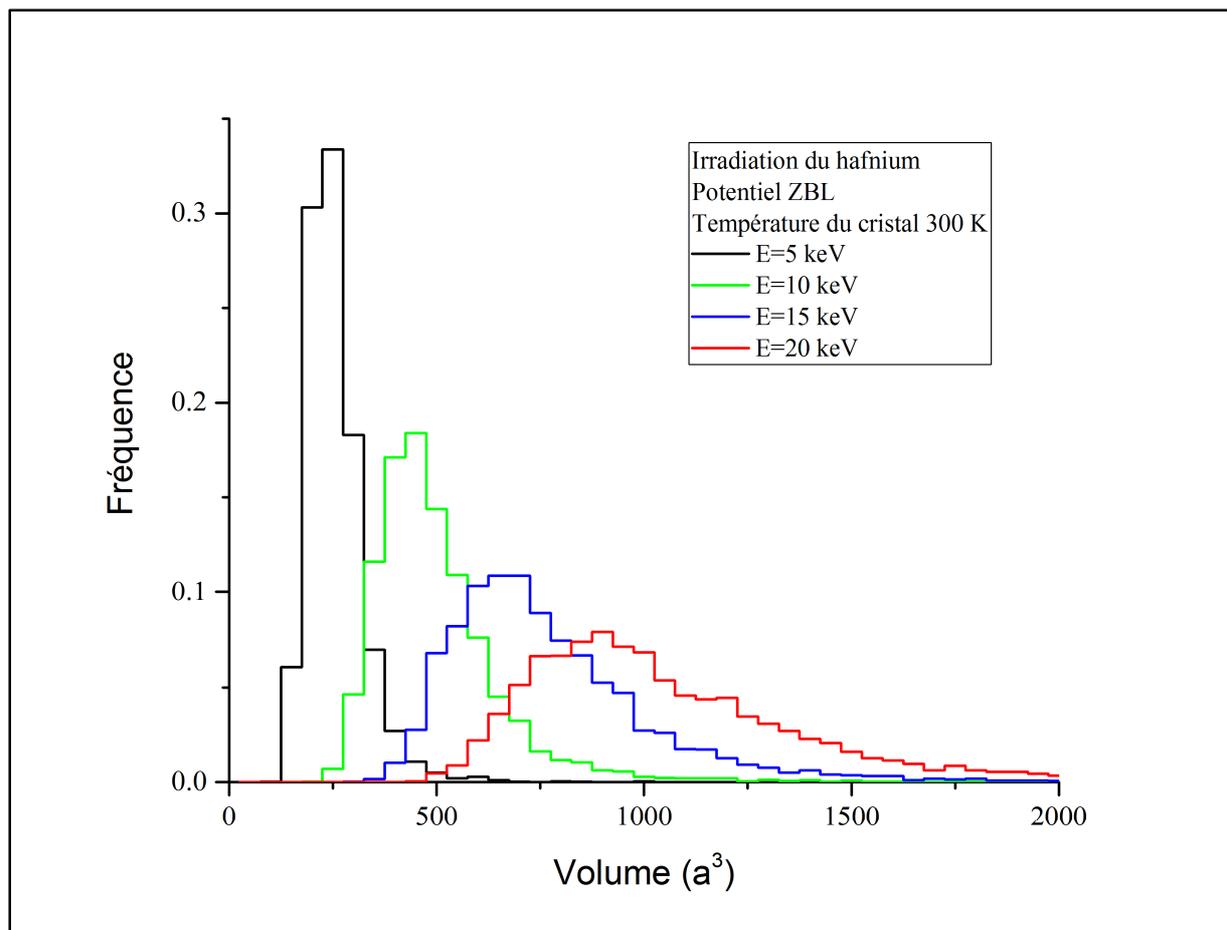


Figure 3.11. Distributions de volumes du hafnium irradié.

CONCLUSION GÉNÉRALE

L'étude des dommages induits par irradiation est un sujet qui tire son importance des enjeux liés à la sécurité des centrales nucléaires et au bon fonctionnement des dispositifs électroniques embarqués à bord des engins spatiaux exposés aux rayonnements intenses et omniprésents dans l'espace. Intéressé par les propriétés physiques du hafnium qui trouvent des applications dans l'aérospatiale et le nucléaire, nous avons étudié la production des défauts ponctuels et leur distribution spatiale dans ce matériau suite à son irradiation. Nous avons choisi le modèle de l'approximation des collisions binaires pour simuler l'irradiation car il permet l'accumulation de statistiques suffisantes pour une étude adéquate. Le code Marlowe fondé sur ce modèle a été utilisé à cet effet. Des cascades de déplacements ont été générées par des primaires initiés des sites du réseau avec une énergie cinétique allant de 5 à 30 keV. Le potentiel universel de Ziegler-Biersack-Littmark a été utilisé pour modéliser les interactions entre les atomes du hafnium dans la cascade. Les déplacements thermiques des atomes du réseau autour de leur position d'équilibre sont décrits par le modèle de Debye alors que les pertes d'énergie dues à l'excitation et l'ionisation des électrons sont estimées sur la base de l'approximation de Oen-Robinson.

Les résultats des simulations montrent clairement que la majorité des défauts ponctuels produits pendant la phase balistique ne survivent pas à la recombinaison. Dans le domaine énergétique de notre étude, il n'y a approximativement que 12% des atomes du réseau déplacés qui constituent des déplacements permanents. Les collisions atomiques multiples ont pour effet d'expulser les atomes vers la périphérie de la cascade et de laisser une zone centrale riche en sites vacants. La région irradiée n'a pas une morphologie bien définie car les collisions atomiques au sein d'une cascade ont un caractère aléatoire. Le volume de cette région augmente avec l'énergie du primaire.

Par cette étude, nous avons contribué à la compréhension de la réponse du hafnium lorsqu'il est utilisé dans un milieu baignant de rayonnements. D'autres efforts, portant sur

Conclusion générale

l'évolution des défauts ponctuels en des défauts étendus et leurs effets sur les propriétés du matériau, sont nécessaire pour compléter nos connaissances sur le vieillissement de ce matériau.

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*, Trans. Tech. Publications, Aedermansdorf (Suisse) vol.30-31, 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*, *Reflats 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] D. R. Lide, *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, CRC Press Inc, 90^e éd., 2009.
- [14] J. Emsley, *"Nature's Building Blocks" an A-Z Guide to the Elements*, Ed. Oxford University Press Inc., New York, 2001.
- [15] G. Broglia, G. Ori, L. Larcher, M. Montorsi, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* **22**, 065006(2014).
- [16] D. Lin, Y. Wang, S. Shang, Z. Lu, Z. Liu, X. Hui, *Sci. China Phys. Mech. Astron.*, **56**, 2071 (2013).

- [17] C. P. Race, “*The Modeling of Radiation Damage in Metals using Ehrenfest Dynamics*” Springer Theses, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 2010.
- [18] M. Dupeux, *Aide-mémoire science des matériaux*, Dunod, Paris, 2008.
- [19] Ph. Fleury, *les défauts ponctuels dans les cristaux*, Buletin de l’union des physiciens, N°658, **78**, 173 (1984).
- [20] J.P. Baïlon, J.M Dorlot, *Des Matériaux*, Ed. Presses Internationales Polytechnique, 2002.
- [21] M. Gerl, J.P. Issi, *Physique des Matériaux*, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 1997.
- [22] E. Papin, *Influence des défauts ponctuels sur les propriétés dosimétriques et sur l’aptitude au frittage de l’alumine alpha*, Génie des procédés, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 1997.
- [23] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 8th edition, John Willey & Sons, Inc, 2005.
- [24] R. Collongues, *Le solide cristallin*, Presses Universitaires de France, 1973.
- [25] L. Smart, *Introduction à la chimie de l’état solide*, Dunod, 1997.
- [26] J. L. Martin, *Dislocations et plasticité des cristaux*, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 2000.
- [27] J.W. Jr Morris, *Defects in Crystals*, In: *Materials Science and Engineering: An Introduction*. Ed. Wiley, pp. 76–107, 2013.
- [28] 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.
- [29] figure disponible sur : <https://www.oxfordsparks.ox.ac.uk/content/materials-nuclear-fusion-how-do-you-confine-sun-box>
- [30] W. Takeuchi, Y. Yamamura, *Radiat. Eff.* **71**, 53 (1983).
- [31] A. Kuzmichev, V. Perevertaylo, L. Tsybulsky, O. Volpian, *J. Phys. Conf. Ser.* **729**, 012005 (2016).
- [32] T. T. Nuver, H. Rudolph, P.A. Zeijlmans van Emmichoven, A. Niehaus, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **164-165**, 785 (2000).
- [33] A. De Backer, A. Sand, C.J. Ortiz, C. Domain, P. Olsson, E. Berthod, C.S. Becquart, *Phys. Scr.* 2016 (T167), 014018 (2016).
- [34] L. Bukonte, F. Djurabekova, J. Samela, K. Nordlund, S.A. Norris, M.J. Aziz, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **297**, 23 (2013).

- [35] P. Arnolda, *La création de défauts de déplacements atomiques dans le silicium et son impact sur les composants électroniques à applications spatiales*, thèse de doctorat en génie électrique, Université de Toulouse, 2010.
- [36] F. Soisson, *Composés ordonnés sous irradiation*, Thèse de doctorat, Institut national polytechnique de Grenoble, 1993.
- [37] W. Eckstein, *Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1991.
- [38] M.T. Robinson, I. Torrens, Phys. Rev. **B 9**, 5008 (1974).
- [39] M. Ruha, *Etude de l'effet de l'implantation ionique dans le CuInSe₂ et autres ternaires*, Thèse de doctorat, Université Ferhat ABBAS de Setif, 2014.
- [40] H. Hijazi, *Interaction ions-surfaces : étude de la pulvérisation du fluorure de lithium LiF par technique d'imagerie XY-TOF-SIMS*, Thèse de doctorat, Université de Caen, 2006.
- [41] P. Salou, *Interaction ion-surface: simulation de l'interaction plasma-paroi (ITER)*, Thèse de Doctorat, l'Université de Caen Basse-Normandie, France, 2013.
- [42] A. Scholtz, C. Lehmann, Phys. Rev. **B6**, 813 (1972).
- [43] G. Vizkelently, S.M. Foiles, Nucl. Instrum. Methods, **B 371**, 111 (2015).
- [44] C.H.M. Broeders, A.Yu. Konobeyev, J. Nucl. Mater., **336**, 201 (2005).
- [45] P. J. Griffin, *Relationship between Metrics Used to Represent Displacement Damage in Materials*, SANDIA REPORT, Sandia National Laboratories USA, 2014.
- [46] A.Y. Konobeyev, U. Fischer, Y. A. Korovin, S. P. Simakov, Nuclear Energy and Technology, **3**, 169 (2017).
- [47] A. Djaafri, T. Djaafri, A. Elias, M. Driss-Khodja, Afric. Rev. Phys. **8**, 365 (2013).
- [48] A. Djaafri, A. Kadoun, M. Driss-Khodja, A. Elias, T. Djaafri, Acta Physica Polonica **A133**, 39 (2018).
- [49] A. Djaafri, A. Kadoun, M. Driss-Khodja, Arab. J. Sci. Eng. **43**, 3837 (2018).
- [50] M. Hou, C.J. Ortiz, C.S. Becquart, C. Domain, U. Sarkar, A. De Backer, J. Nucl. Mater. **403**, 89 (2010).
- [51] M. T. Robinson, Phys. Rev. B **40**, 10717 (1989).
- [52] M. T. Robinson, Nucl. Instrum. Method **B48**, 408 (1990).
- [53] M. T. Robinson, Nucl. Instrum. Method **67**, 396 (1992).
- [54] M. T. Robinson, Radiat. Eff. Defects Solids, **141**, 1 (1997).
- [55] M. T. Robinson : MARLOWE: *Computer Simulation of Atomic Collisions in Crystalline Solids*, RSICC Code Package PSR-137, 2002.
- [55] R. Russell, J. Appl. Phys., **24**, 232 (1953).

Références bibliographiques

- [56] O.S. Oen, M.T. Robinson, Nucl. Instrum. Methods **132**, 647 (1976).
- [57] C.Y. Ho, R.W. Powell, P.E. Liley, J. Phys. Chem. Ref. Data **3**, I-10 (1974).
- [58] A. Seeger, Proc. 2nd. U.N. Conf on Peaceful Uses of Atomic Energy, IAEA, Geneva, Vol 6, p. 250, 1958.
- [59] L.A. Beavan, R.M. Scanlan, D.N. Seidman, Acta Met. **19**, 1339 (1971).
- [60] M. Hou, Nucl. Instrum. Methods **182-183**, 153 (1981).