

**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

**NAAS Youssouf**

Sur le thème

**Etude des dommages créés dans l'iridium irradié par la  
méthode de l'approximation des collisions binaires**

**Soutenu le 08/07/2021 devant le jury composé de :**

<b>Abdelkader ELIAS</b>	<b>Pr</b>	<b>Université Dr. Tahar Moulay de Saida</b>	<b>Président</b>
<b>Abdelkader DJAAFRI</b>	<b>MCB</b>	<b>Université Dr. Tahar Moulay de Saida</b>	<b>Encadreur</b>
<b>Tayeb DJAAFRI</b>	<b>MCA</b>	<b>Université Dr. Tahar Moulay de Saida</b>	<b>Co-encadreur</b>
<b>Mohamed MESKINE</b>	<b>MCA</b>	<b>Université Dr. Tahar Moulay de Saida</b>	<b>Examineur</b>
<b>Fatiha SAADAoui</b>	<b>MCB</b>	<b>Université Dr. Tahar Moulay de Saida</b>	<b>Examineur</b>

**Année Universitaire 2020 - 2021**



A decorative border with intricate floral and vine patterns, featuring stylized leaves and flowers, framing the central text.

# DEDICACE

*Je dédie ce travail à mes parents qui  
m'ont chaleureusement supporté et encouragé  
tout au long de mon parcours; ma mère et mon père.*

*À mes sœurs et mes frères.*

*À tous mes amis ainsi que les familles Naas et Merabti.*

*À toute la promotion « 2020-2021 »*

*Youssef Naas*



# REMERCIEMENTS

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

Je tiens à remercier mon encadreur le docteur Abdelkader DJAAFRI et mon co-encadreur le docteur Tayeb DJAAFRI pour leur aide, assistance et conseils.

J'adresse mes sincères remerciements à monsieur le président de jury le Professeur Abdelkader ELIAS et aux membres de jury le Docteur Mohamed MESKINE et le Docteur Fatiha SAADAOUI d'avoir porté intérêt à mon travail et accepté de le juger.

Je voudrais présenter un grand merci à nos chers professeurs pour leur aide et leur disponibilité permanente.

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

---

---

# Résumés

---

---

# دراسة الأضرار المتشكلة جراء تعريض الايريديوم للإشعاعات بواسطة نموذج تقريب التصادم الثنائي

## الملخص

لمعرفة الآثار المترتبة عن تعريض معدن الايريديوم للإشعاع، قمنا بإجراء محاكاة باستخدام برنامج مارلو الذي يعتمد على نموذج تقريب التصادم الثنائي. مكّنا ذلك من حساب عدد العيوب المتشكلة، دراسة توزّعها الفضائي و كذا معرفة الحجم التقريبي للمنطقة المخربة جراء الإشعاع. يتم بدأ سلسلة التصادمات الذرية بإرسال ذرة من موقعها في الشبكة بطاقة حركية يمكن أن تصل حتى 30 كيلو إلكترون فولت. تبدد هذه الطاقة في تصادمات مرنة بين ذرات الايريديوم يحكمها ما يعرف بكمون زيغلر-بيرسك-ليتمارك و موليير في تصادمات غير المرنة يتمّ حسابه باستخدام تقريب أوين-روبينسون. أثناء التصادمات تقتلع العديد من الذرات من أماكنها تاركة فراغات ورائها فتتشكل بذلك عيوباً بنيوية في المعدن. تظهر نتائج المحاكاة أنّ نسبة ذرات الشبكة المزاحة التي تشكل عيوباً دائمة لا تتجاوز 10%. كما أنّ الحجم الأكثر احتمالية للمنطقة المشوهة و إن كان يرتبط بالكمون فهو لا يتعدى 300 مرة حجم الخلية الأولية للمعدن.

## الكلمات المفتاحية

عيوب فرنكل، الايريديوم ، إشعاع ، تقريب التصادم الثنائي

## **Study of damage production in irradiated iridium by the binary collision approximation model**

### **Abstract**

To study the point defects generated in irradiated iridium, we simulated the formation of displacement cascades using the Marlowe code based on the binary collision approximation model. This allowed us to calculate the number of Frenkel defects formed and the volume of the damaged region. A cascade is initiated by a primary which is an atom launched from its lattice position with kinetic energy up to 30 keV. This energy is dissipated in elastic collisions between iridium atoms governed by the Ziegler-Bersk-Litmark and Molière potentials and inelastic collisions whose energy loss is estimated by the Owen-Robinson approximation. During collisions, many atoms are ejected from their lattice positions leaving vacancies and forming interstitials. The simulation results show that the proportion of displaced atoms which form permanent defects does not exceed 10%. The most probable volume of the damaged region although it depends on the used potential does not exceed 300 times the volume of the cell unit.

### **Keywords:**

Frenkel defects, iridium, irradiation, Binary collision approximation

## **Etude des dommages créés dans l'iridium irradié par la méthode de l'approximation des collisions binaires**

### **Résumé**

Pour étudier les défauts ponctuels formés dans l'iridium irradié, nous avons simulé la formation des cascades de déplacements moyennant le code Marlowe qui est basé sur le modèle de l'approximation des collisions binaires. Ceci nous a permis de calculer le nombre de défauts de Frenkel formés et le volume de la zone endommagée. Une cascade est initiée par un primaire qui est un atome lancé de sa position du réseau avec une énergie cinétique allant jusqu'à 30 keV. Cette énergie est dissipée dans des collisions élastiques entre les atomes d'iridium régies par les potentiels de Ziegler-Bersk-Litmark et de Molière et des collisions inélastiques dont la perte d'énergie est estimée par l'approximation d'Owen-Robinson. Lors des collisions, de nombreux atomes sont éjectés de leurs positions du réseau laissant des lacunes et formant des interstitiels. Les résultats de la simulation montrent que la proportion d'atomes déplacés du réseau qui forment des défauts permanents ne dépasse pas 10%. Le volume le plus probable de la région endommagée bien qu'il dépend du potentiel utilisé ne dépasse pas 300 fois le volume de la maille élémentaire.

### **Mots clés**

Défauts de Frenkel, iridium, irradiation, approximation des collisions binaires



---

## 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
L	Système du laboratoire
CM	Centre de Masse
cfc	Cubique à faces centrées
KP	Kinchin-Pease
NRT	Norgett-Robinson-Torrens
dpa	Displacements per Atom
arc-dpa	Athermal Recombination-Corrected Displacement per Atom
ACP	Analyse en Composantes Principales
Ir	Iridium

*Liste des notations et des symboles*

Symbole	Signification	Symbole	Signification
$m_e$	Masse au repos de l'électron	$\theta_1$	Angle de diffusion du projectile après le choc
$e$	Charge élémentaire	$\theta_2$	Angle de diffusion de l'atome cible après le choc
$N_a$	Nombre d'avogadro	$\vartheta$	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	$A_i$	Poids atomique
$E_{th}$	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	$\eta$	Coefficient d'efficacité du déplacement
$a_0$	paramètre du réseau	$\beta$	Rapport entre la vitesse de la particule et la vitesse de la lumière
$a_{ZBL}$	paramètre d'écran du potentiel ZBL	$(-dE/dx)$	Pouvoir d'arrêt total du milieu
$k_B$	Constante de Boltzmann	$(-dE/dx)_N$	Pouvoir d'arrêt nucléaire du milieu
$\epsilon_0$	Permittivité du vide	$(-dE/dx)_e$	Pouvoir d'arrêt électronique du milieu
$T_D$	Température de Debye	$\rho$	Densité du milieu cible
$\sigma$	Section efficace de diffusion	$A$	Rapport entre la masse de la cible et la masse du projectile

## **Tables des matières**

Liste des figures.....	xii
Liste des tableaux.....	xiv
Introduction générale.....	1
Références bibliographiques.....	5

### **Chapitre 1 – Potentiels d’interactions atomiques**

1.1 Introduction.....	10
1.2 Potentiel de Born-Mayer .....	11
1.3 Potentiel coulombien .....	12
1.4 Potentiel de Coulomb écranté .....	13
1.4.1 Fonction de Sommerfeld .....	15
1.4.2 Fonction de Bohr .....	16
1.4.3 Fonction de Molière .....	18
1.4.4 Fonction Kr-C.....	19
1.4.5 Fonction de Ziegler-Biersack-Littmark .....	20
1.4.6 Fonction de Lenz-Jensen .....	21
1.4.7 Fonction de Lenz-Jensen modifiée .....	21
Références bibliographiques.....	23

### **Chapitre 2 – Modèle de simulation**

2.1 Introduction.....	27
2.2 Approximation des collisions binaires.....	27
2.2.1 Description de la cascade de déplacements.....	28
2.2.2 Séquences de remplacements.....	29
2.2.3 Cinématique d’une collision binaire.....	30
2.2.4 Energie transférée.....	32

2.2.5	Angle de diffusion .....	33
2.3	Perte d'énergie .....	35
2.3.1	Pertes d'énergie inélastiques.....	36
2.3.2	Pertes d'énergie élastiques.....	38
2.3.3	Perte d'énergie totale.....	39
2.4	Nombre de défauts de Frenkel permanents.....	40
2.4.1	Modèle de Kinchin-Pease.....	41
2.4.2	Modèle de Norgett-Robinson-Torrens.....	42
2.4.3	Modèle arc-dpa.....	43
	Références bibliographiques.....	45

### Chapitre 3 – Résultats et discussion

3.1	Introduction.....	49
3.2	Paramètres de simulation.....	49
3.3	Ajustement du nombre de paires de Frenkel.....	52
3.4	Atomes déplacés.....	58
3.5	Distribution spatiale des défauts.....	60
3.6	Volume de la cascade.....	62
	Références bibliographiques.....	65
	Conclusion générale .....	67

## Liste des figures

### Chapitre 1

Figure 1.1	Région de validité du potentiel de Born-Mayer.....	11
Figure 1.2	Région de validité du potentiel coulombien .....	13
Figure 1.3	Région de validité du potentiel coulombien écranté .....	14
Figure 1.4	Comportement de quelques potentiels en fonction de la distance de séparation entre les atomes du cuivre	17
Figure 1.5	Fonctions d'écran en fonction du rapport entre la distance interatomique et le paramètre d'écran.	22

### Chapitre 2

Figure 2.1	Représentation d'une cascade de déplacements dans un cristal.....	29
Figure 2.2	Schéma d'une séquence de remplacements .....	30
Figure 2.3	Schéma d'une collision binaire dans le système du laboratoire.....	31
Figure 2.4	Angle de diffusion $\vartheta$ dans le référentiel du centre de masse .....	34
Figure 2.5	Trajectoires de deux atomes en collision dans le référentiel du laboratoire	35
Figure 2.6	Représentation schématique du pouvoir d'arrêt des ions dans la matière	40
Figure 2.7	Nombre de déplacements en fonction de l'énergie du primaire.....	42

### Chapitre 3

Figure 3.1	Maille élémentaire de l'iridium .....	50
Figure 3.2	Potentiels de Molière et ZBL entre deux atomes de l'iridium.....	51
Figure 3.3	Lacunes et interstitiels produits dans une cascade de 30 keV dans l'iridium	53
Figure 3.4	Nombre moyen de paires distantes de Frenkel dans l'iridium irradié ....	54
Figure 3.5	Ajustement du rayon de recombinaison pour le potentiel de Molière.....	57
Figure 3.6	Ajustement du rayon de recombinaison pour le potentiel ZBL.....	57
Figure 3.7	Cascade de déplacements de 30 keV dans l'iridium après recombinaison	58
Figure 3.8	Histogramme d'atomes déplacés dans une cascade de 30 keV dans l'iridium	59

Figure 3.9	Distribution spatiale des défauts permanents dans une cascade de 30 keV dans l'iridium avec le potentiel de Molière	61
Figure 3.10	Distribution spatiale des défauts permanents dans une cascade de 30 keV dans l'iridium avec le potentiel de ZBL	62
Figure 3.11	Représentation de la méthode d'analyse en composantes principales	63
Figure 3.12	Distributions de volumes dans l'irradiation de l'iridium par un primaire de 30 keV	64

## Liste des tableaux

### Chapitre 2

Tableau 2.1	Valeurs du paramètre $c_{arc\,dpa}$ .....	44
Tableau 2.1	Valeurs de l'énergie seuil de déplacement pour certains éléments .....	44

### Chapitre 3

Tableau 3.1	Certaines propriétés de l'iridium .....	52
Tableau 3.2	Nombre de paires de Frenkel calculé pour le potentiel de Molière.....	56
Tableau 3.3	Nombre de paires de Frenkel calculé pour le potentiel ZBL.....	56
Tableau 3.4	Taux de déplacements permanents dans l'iridium irradié.....	60
Tableau 3.5	Certaines caractéristiques des distributions des volumes dans l'iridium irradié	64



---

# Introduction générale

---

---

L'iridium (Ir) est un métal de transition de la famille des métaux du groupe du platine. Il est d'aspect blanc argenté. Il est dur et lourd. Son numéro atomique est 77 [1] et sa masse atomique est 192.217 uma [2]. Il est rare sur notre planète. Il est caractérisé par une très grande dureté et une forte inélasticité, ce qui le rend difficile à usiner, le mettre en forme et à travailler. Son caractère cassant peut être combattu en lui ajoutant de faibles quantités de titane ou de zirconium. Il a une structure cubique compacte de type cubique à faces centrées, ce qui explique pourquoi il a une densité très élevée. Il est le deuxième plus dense corps simple après l'osmium avec une densité de  $22.562 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  [3-5]. Il a un point de fusion très élevé ; 2719 K [4, 6, 7]. Il peut en un sens large être qualifié de métal réfractaire. Ses alliages avec le platine sont très peu sensibles aux déformations thermiques. Parmi les éléments connus, l'iridium est le plus résistant à la corrosion. Il est très peu réactif chimiquement et résistant à tous les acides. L'iridium pur possède une réflectance lumineuse qui n'est dépassée que par celle de l'argent [8].

L'iridium, de part ses propriétés, est utilisé dans la fabrication d'alliages à haute résistance et pouvant supporter les hautes températures. Il apporte aux alliages qu'il forme avec l'acier ou le platine une amélioration de la résistance mécanique de ces matériaux. Les étalons du mètre et du kilogramme conservés au bureau international des poids et mesures (Sèvres) sont à base de platine iridié. On sert, également, de l'iridium dans les pièces et les ustensiles scientifiques comme les creusets et les spatules d'analyse chimique, les aiguilles hypodermiques, les thermocouples électriques. On le trouve, aussi, dans les contacts électriques, les contacteurs techniques et notamment les bougies des moteurs à allumage commandé, en particulier les électrodes de bougies de moteurs d'avions. L'alliage avec l'osmium est utilisé dans les pointes de plume métallique, les roulements de compas et les balances à hautes précision [9].

L'étude des défauts produits dans l'iridium irradié s'insère dans l'étude systématique des éléments de transition tels que le tantale, le tungstène et le hafnium [10-14]. Ces métaux possèdent des propriétés physiques et chimiques particulièrement attrayantes ce qui les rends des matériaux de choix pour des applications dans des domaines variés notamment l'électronique et le nucléaire. L'irradiation de ces matériaux par des particules énergétiques conduit à la formation de 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, altèrent à long terme les propriétés physico-chimiques et mécaniques des matériaux notamment les conductivités électrique et thermique, la résistance à la corrosion, la fragilisation et le gonflement [15-20]. La compréhension des mécanismes de vieillissement des matériaux irradiés est d'un grand intérêt technologique et économique puisqu'elle permet d'estimer la durée de vie et d'améliorer la performance des composants fabriqués à base de ces matériaux.

La modélisation des interactions entre des particules énergétiques et la matière peut être accomplie par deux modèles : l'approximation des collisions binaires (BCA pour Binary Collision Approximation) et la dynamique moléculaire (MD pour *Molecular Dynamics*). Notre choix pour l'étude des défauts induits par irradiation dans l'iridium s'est porté sur la BCA car elle nous offre les outils les plus appropriés pour atteindre nos objectifs. En effet, elle permet, en un temps relativement court, l'accumulation d'une quantité importante de statistiques nécessaires à une étude adéquate des caractéristiques des cascades qui présentent un haut degré de variabilité [21]. Le modèle de la BCA est fréquemment utilisé dans la modélisation des phénomènes liés à l'irradiation des matériaux tels que la pulvérisation, l'implantation ionique, la canalisation, la rétrodiffusion et la production de défauts [22-28].

Le présent travail a pour objectif l'étude, par simulation basée sur la BCA, des cascades de déplacements dans l'iridium suite à une irradiation interne. Le code Marlowe est

utilisé pour calculer les différentes grandeurs d'intérêt [29-35]. Nous prêtons attention en particulier à la production de défauts de Frenkel, leur configuration spatiale et l'estimation du volume de la zone endommagée. Nous souhaitons par cette étude, apporter une contribution à la connaissance du comportement de ce matériau lorsqu'il est utilisé dans un environnement de rayonnements intenses.

Ce manuscrit est organisé en trois chapitres. Le premier chapitre est consacré aux potentiels interatomiques utilisés pour modéliser les interactions entre les atomes présents au sein de la cascade de déplacements. Nous nous intéressons surtout aux potentiels les plus utilisés dans les simulations basées sur le modèle de l'approximation des collisions binaires. Le deuxième chapitre est dédié au modèle de simulation utilisé pour l'étude de l'irradiation du de l'iridium. Nous présentons la méthode de l'approximation des collisions binaires et les modèles théoriques les plus utilisés pour estimer le nombre de défauts permanents induits dans le matériau irradié. Dans le troisième chapitre, nous rapportons les résultats que nous avons obtenu par simulations des cascades de déplacements dans l'iridium. Nous examinons le nombre de défauts de Frenkel induits, la détermination du rayon de recombinaison, la fonction de distribution des défauts en fonction de la distance de séparation lacune-interstitiel et la distribution des volumes des cascades. Enfin, notre mémoire s'achève par une conclusion générale retraçant les principaux résultats obtenus et dressant les perspectives envisagées pour la poursuite de ce travail.

---

---

# Références bibliographiques

---

---

- [1] N. G. Connelly, T. Damhus, R. M. Hartshorn, A. T. Hutton, *Nomenclature of Inorganic Chemistry*, Cambridge: RSC Publishing, 2005.
- [2] M. E. Wieser, T. B. Coplen, *Pure and Applied Chemistry*, **83**, 359 (2011).  
doi:10.1351/PAC-REP-10-09-14
- [3] J. W. Arblaster, *Osmium, the Densest Metal Known*, *Platinum Metals Review*, **39**, (4), 164 (1995).
- [4] D. R. Lide, *Handbook of Chemistry and Physics*, Edition 88, Boca Raton, Florida: Taylor & Francis Group, 2008.
- [5] J. W. Arblaster, *Crystallographic Properties of Iridium: Assessment of Properties from Absolute Zero to the Melting Point*, *Platinum Metals Review*, **54**, (2), 93 (2010).  
doi:10.1595/147106710X493124
- [6] J. W. Arblaster, *Vapour Pressure Equations for the Platinum Group Elements*, *Platinum Metals Review*, **51**, (3), 130 (2007)  
doi:10.1595/147106707X213830
- [7] G. W. H. Höhne, W. F. Hemminger, H.-J. Flammersheim, *Differential Scanning Calorimetry*, 2nd edition, Berlin : Springer-Verlag, 2003.
- [8] G. V. Samsonov, *Handbook of the Physicochemical Properties of the Elements*, New York: Plenum Publishing Corporation, 1968.
- [9] J. Emsley, *Nature's Building Blocks : An A-Z guide to the elements*, deuxième édition, Oxford University Press, New York, 2011.
- [10] A. Djaafri, T. Djaafri, A. Elias, M. Driss-Khodja, *Afric. Rev. Phys.* **8**, 365 (2013).
- [11] A. Djaafri, A. Kadoun, M. Driss-Khodja, A. Elias, T. Djaafri, *Acta Physica Polonica A***133**, 39 (2018).  
doi: 10.1088/1757-899X/110/1/012003
- [12] A. Djaafri, A. Kadoun, M. Driss-Khodja, *Arab. J. Sci. Eng.* **43**, 3837 (2018).

doi.org/10.1007/s13369-018-3127-0

- [13] B. Derkaoui, *Etude des defaults induits par irradiation dans le tungsten*, mémoire de Master, Université Dr Moulay Tahar, Saida, 2019.
- [14] M. Mancer, *Production des defaults ponctuels dans le hafnium irradié*, mémoire de Master, Université Dr Moulay Tahar de Saida, 2020.
- [15] 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.
- [16] Y. Adda, J.P. Mustelier, Y. Quéré, *Comportement de l'uranium sous irradiation*, A Conf. 28/P/62 Genève, Rapport CEA-R 2671, 1964.
- [17] C.H. de Novion, *Effets d'irradiation dans les matériaux (métaux, alliages, verres)*, 26<sup>e</sup> Colloque de Métallurgie, Saclay, Paris, 1984.
- [18] 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.
- [19] 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.
- [20] J.L. Boutard, *Endommagement des alliages métalliques par des neutrons rapides*, *Reflats de la physique* **38**, 17 (2014).
- [21] C.P. Race, *The Modelling of Radiation Damage in Metals using Ehrenfest Dynamics*, Springer Theses, Springer-Verlag, Berlin 2010.
- [22] A. Souidi, A. Elias, A. Djaafri, C.S. Becquart, M. Hou, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **193**, 341 (2002).
- [23] W. Takeuchi, Y. Yamamura, *Radiat. Eff.* **71**, 53 (1983).

- [24] A. Kuzmichev, V. Perevertaylo, L. Tsybulsky, O. Volpian, *J. Phys. Conf. Ser.* **729**, 012005 (2016).
- [25] T.T. Nuver, H. Rudolph, P.A. Zeijlmans van Emmichoven, A. Niehaus, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **164-165**, 785 (2000).
- [26] A. De Backer, A. Sand, C.J. Ortiz, C. Domain, P. Olsson, E. Berthod, C.S. Becquart, *Phys. Scr.* **2016** (T167), 014018 (2016).
- [27] M. Hou, C.J. Ortiz, C.S. Becquart, C. Domain, U. Sarkar, A. De Backer, *J. Nucl. Mater.* **403**, 89 (2010).
- [28] L. Bukonte, F. Djurabekova, J. Samela, K. Nordlund, S.A. Norris, M.J. Aziz, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **297**, 23 (2013).
- [29] M.T. Robinson, I. Torrens, *Phys. Rev. B* **9**, 5008 (1974).
- [30] M.T. Robinson, *Phys. Rev. B* **40**, 10717 (1989).
- [31] M.T. Robinson, *Nucl. Instrum. Methods B* **48**, 408 (1990).
- [32] M.T. Robinson, *Radiat. Eff. Defects Solids* **141**, 1 (1997).
- [33] M.T. Robinson, *J. Nucl. Mater.* **216**, 1 (1994).
- [34] M.T. Robinson, *MARLOWE: computer simulation of atomic collisions in crystalline solids*, (Version 15a), RSICC Code Package PSR-137 (Report).
- [35] M.T. Robinson, *K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd.* **43**, 27 (1993).



---

# Chapitre 1 : Potentiels d'interactions atomiques

---

## 1.1 Introduction

L'étude par simulation des défauts ponctuels générés dans les matériaux irradiés nécessite la connaissance des forces agissant entre les atomes en interaction. Les interactions entre les atomes au sein d'une cascade déclenchée suite à l'irradiation sont modélisées par un potentiel interatomique. C'est une fonction qui dépend, généralement, des positions relatives des atomes et des charges des noyaux. Cette fonction est invariante sous des opérations géométriques telles que les translations et les rotations d'ensemble. Il n'y a pas pour le potentiel une expression analytique unique qui couvre toute la plage de valeurs que peut prendre la distance de séparation entre deux atomes en interaction. Les efforts consentis pour développer des potentiels décrivant adéquatement les interactions atomiques ont mené à des expressions déterminées soit de manière semi-empirique ou par des calculs théoriques. La justesse et la complexité de ces expressions influencent grandement la qualité des résultats des simulations et le temps de calcul nécessaire à leur obtention.

Dans ce chapitre, nous présentons les potentiels interatomiques de paires les plus utilisés dans l'étude des défauts par le modèle de la BCA.

Le potentiel interatomique est fonction de la distance,  $r$ , qui sépare les deux atomes en interaction. Il est attractif à longue distance et répulsif à courte distance. Lorsque les deux atomes se trouvent l'un loin de l'autre, le potentiel est quasiment nul. Lorsque la distance de séparation diminue, le potentiel décroît et la stabilité augmente. Si l'on réduit davantage la distance séparant les deux atomes, les forces de répulsion dominent, le potentiel croît et la stabilité diminue. Ainsi, le potentiel passe par un minimum qui correspond à la distance interatomique pour laquelle les forces d'attraction et de répulsion s'équilibrent. Cette distance est dite distance d'équilibre et notée  $r_e$ .

L'interaction à caractère répulsif entre deux atomes voisins est caractérisée par la contribution de deux parties, la première est due à la répulsion électrostatique entre les deux

noyaux chargés positivement et la deuxième est attribuée à répulsion électronique qui empêche l'interpénétrabilité des nuages électroniques. La domination de l'une des contributions dépend de la distance de séparation entre les deux atomes [1].

## 1.2 Potentiel de Born-Mayer

Lorsque la distance de séparation entre les deux atomes est un peu plus petite que la distance d'équilibre  $r_e$ , (qui est de l'ordre de la constante du réseau  $a_0$ ), les couches internes complètes commencent à s'interpénétrer (voir figure 1.1). L'excès de charge amené dans le voisinage de chaque atome par l'autre est placé dans des niveaux d'énergie plus élevés et inoccupés pour respecter le principe d'exclusion de Pauli (stipulant que deux électrons ne peuvent pas occuper le même état). L'énergie fournie pour forcer les distributions de charge à s'interpénétrer croît lorsque la distance interatomique décroît car un plus grand nombre d'électrons des couches internes complètes deviennent affectés. L'interaction à caractère répulsif ainsi décrite est bien représentée par le potentiel de Born-Mayer qui a pour expression [1-3] :

$$V(r) = A_{BM}e^{-r/a_{BM}}, \quad (1.1)$$

où  $a_{BM}$  est le paramètre d'écran et  $A_{BM}$  est un paramètre qui a la dimension d'une énergie.

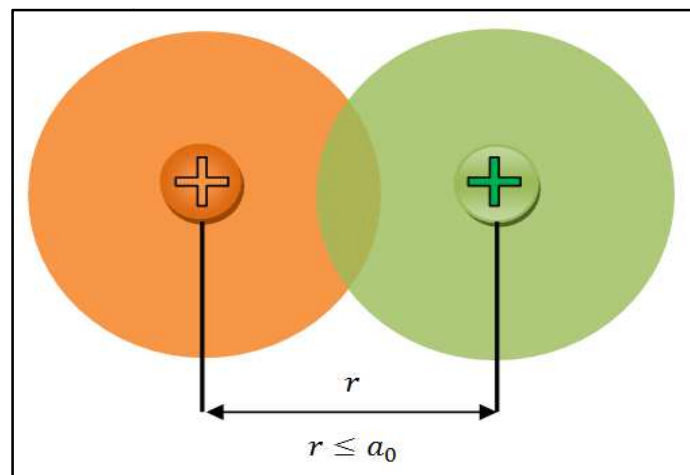


Figure 1.1. Région de validité du potentiel de Born-Mayer.

Les valeurs des paramètres  $A_{BM}$  et  $a_{BM}$  de ce potentiel peuvent être évaluées à partir des propriétés à l'équilibre du solide. Elles sont tabulées pour des interactions homonucléaires [2, 4, 5]. Il est à noter que le paramètre  $A_{BM}$  croît avec le nombre atomique  $Z$ , alors le paramètre d'écran dépend faiblement de celui-ci. Pour des interactions hétéronucléaires,  $A_{BM}$  et  $a_{BM}$  peuvent être évalués comme suit [2] :

$$\begin{aligned} V(r) = A_{BM} e^{-r/a_{BM}} &\cong \sqrt{(A_{BM})_{11} e^{-r/(a_{BM})_{11}} (A_{BM})_{22} e^{-r/(a_{BM})_{22}}} \\ &= \sqrt{(A_{BM})_{11}(A_{BM})_{22}} e^{-\frac{r}{2}\left(\frac{1}{(a_{BM})_{11}} + \frac{1}{(a_{BM})_{22}}\right)}, \end{aligned} \quad (1.2)$$

ce qui donne

$$\begin{cases} A_{BM} = \sqrt{(A_{BM})_{11}(A_{BM})_{22}} \\ a_{BM} = \frac{2(a_{BM})_{11}(a_{BM})_{22}}{(a_{BM})_{11} + (a_{BM})_{22}} \end{cases} \quad (1.3)$$

où  $(A_{BM})_{ii}$  et  $(a_{BM})_{ii}$  sont les valeurs tabulées pour l'interaction homonucléaire de l'élément  $i$ .

Les valeurs les plus utilisées des paramètres  $A_{BM}$  et  $a_{BM}$  dans l'étude par simulation des défauts dans les matériaux irradiés sont celles données par Andersen et Sigmund [2, 6] :

$$\begin{cases} A_{BM} = 52 (Z_1 Z_2)^{3/4} \quad (eV) \\ a_{BM} = 0.219 \quad (\text{Å}) \end{cases}, \quad (1.4)$$

où  $Z_1$  et  $Z_2$  dénotent les numéros atomiques des deux atomes en collision.

### 1.3 Potentiel coulombien

À des distances de séparation entre les deux atomes plus petites que les rayons des couches K,  $r_K$  (voir figure 1.2), les noyaux atomiques sont peu écartés et la répulsion est

dominée par la force électrostatique entre les deux noyaux. L'interaction est modélisée de façon satisfaisante par le potentiel coulombien dont la forme est [1] :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r}, \quad (1.5)$$

$e$  désigne la charge élémentaire.

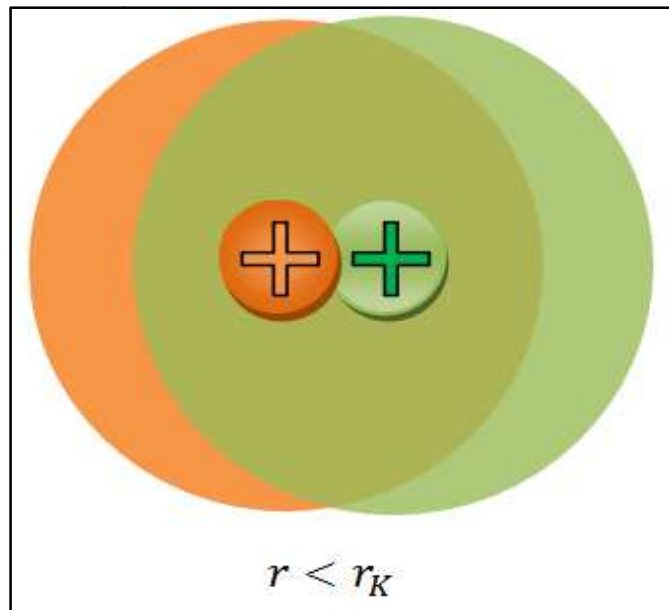


Figure 1.2. Région de validité du potentiel coulombien.

#### **1.4 Potentiel de Coulomb écranté**

Lorsque la distance interatomique est dans la région intermédiaire, montrée sur la figure 1.3, il devient difficile de modéliser l'interaction entre les deux atomes avec précision. En effet, dans cette région, la répulsion coulombienne et la répulsion électronique ont des magnitudes comparables. L'interaction dans ce cas est décrite par un potentiel coulombien écranté qui traduit la diminution de la répulsion coulombienne entre les deux noyaux due à l'écrantage des charges positives par les nuages électroniques [1].

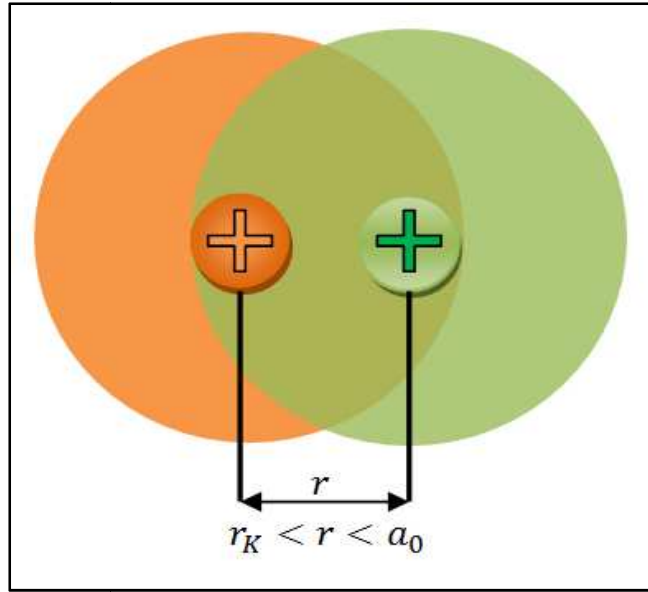


Figure 1.3. Région de validité du potentiel coulombien écranté.

L'une des approches utilisées pour développer analytiquement un potentiel d'interaction entre deux atomes est de se baser sur le modèle statistique de Thomas-Fermi de l'atome singulier. Le potentiel coulombien écranté de Thomas-Fermi d'un atome singulier de numéro atomique  $Z$  a pour expression [7] :

$$V(r) = \frac{Ze}{r} \Phi\left(\frac{r}{a_{TF}}\right), \quad (1.6)$$

$a_{TF}$  étant le rayon d'écran de Thomas-Fermi régi par la relation :

$$a_{TF} = \frac{0.88534 a_B}{Z^{1/3}} (\text{\AA}), \quad (1.7)$$

où  $a_B$  désigne le rayon de Bohr ( $a_B = 0.529 \text{\AA}$ ) et  $\Phi$  dans l'expression (1.6) représente la fonction d'écran solution de l'équation de Thomas-Fermi [7] :

$$x^{\frac{1}{2}} \frac{d^2\phi}{dx^2} = \phi^{\frac{3}{2}}(x). \quad (1.8)$$

À très longue distance, la fonction  $\Phi$  tend vers zéro contrairement aux courtes distances où elle tend vers l'unité. Pour l'interaction de deux atomes de numéros atomiques  $Z_1$  et  $Z_2$ , le potentiel de Coulomb écranté s'écrit sous la forme [2] :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi\left(\frac{r}{a_{12}}\right), \quad (1.9)$$

$a_{12}$  étant le rayon d'écran fonction des numéros atomiques  $Z_1$  et  $Z_2$  et du rayon de Bohr  $a_B$ .

Parmi les premiers travaux portant sur l'extension du potentiel de Thomas-Fermi à un potentiel interatomique entre deux atomes est celui de Firsov. Il a proposé pour l'interaction entre deux atomes le rayon d'écran suivant [8] :

$$a_{\text{Firsov}} = \frac{0.88534 a_B}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}} \text{ (\AA)}. \quad (1.10)$$

L'expression (1.10) pour le rayon d'écran montre que celui-ci décroît lorsque les numéros atomiques des atomes augmentent. On trouve dans la littérature une autre expression pour le paramètre d'écran suggérée par Lindhard [9] :

$$a_{\text{Lindhard}} = \frac{0.8853 a_B}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}} \text{ (\AA)}. \quad (1.11)$$

Les relations (1.10) et (1.11) donnent des valeurs très peu différentes.

### **1.4.1 Fonction de Sommerfeld**

En l'absence de solution exacte de l'équation différentielle de Thomas-Fermi, les efforts ont été portés pour trouver des solutions analytiques approchées de cette équation. La forme asymptotique de Sommerfeld [10] fut l'une des premières solutions proposées. Elle est donnée par l'expression :

$$\Phi(x) = \left\{ 1 + \left( \frac{x}{\alpha} \right)^d \right\}^{-c}, \quad (1.12)$$

où  $\alpha = 144^{1/3}$ ,  $d = 0.8034$ ,  $cd = 3$  et  $x = r/a_{\text{Lindhard}}$ .

### 1.4.2 Fonction de Bohr

La fonction de Bohr constitue la forme la plus simple de la fonction d'écran  $\Phi$ . Elle s'écrit :

$$\Phi\left(\frac{r}{a_{\text{Bohr}}}\right) = e^{-\frac{r}{a_{\text{Bohr}}}}. \quad (1.13)$$

où le rayon d'écran  $a_{\text{Bohr}}$  se calcule de l'expression :

$$a_{\text{Bohr}} = \frac{0.8853 a_B}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}}. \quad (1.14)$$

Le potentiel de Bohr s'écrit donc :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi\left(\frac{r}{a_{\text{Bohr}}}\right) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} e^{-\frac{r}{a_{\text{Bohr}}}}, \quad (1.15)$$

et se réduit pour des distances de séparation très petites au potentiel de Coulomb. La figure 1.4 montre l'utilisation des trois potentiels, Coulomb, Bohr et Born-Mayer, pour couvrir une plage assez large de la distance interatomique.



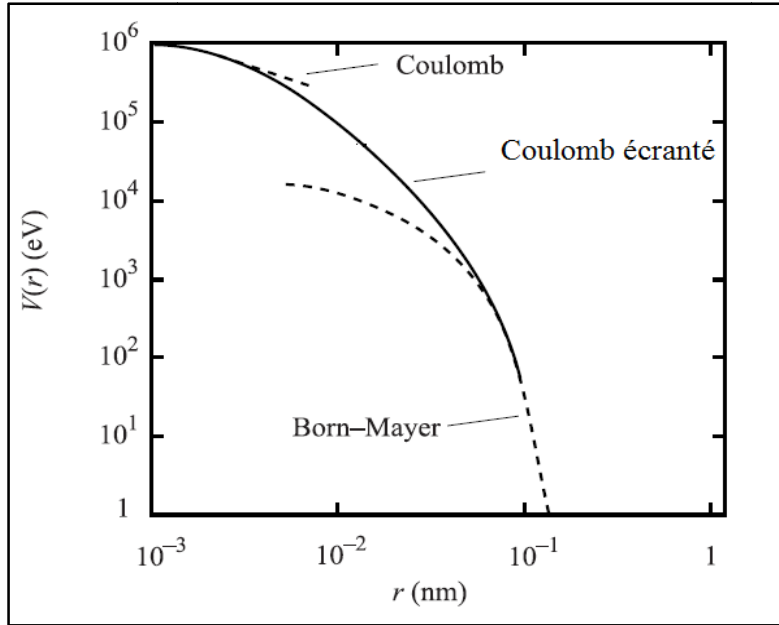


Figure 1.4. Comportement de quelques potentiels en fonction de la distance de séparation entre les atomes du cuivre.

Sur la base des travaux effectués sur les métaux nobles Cu, Ag et Au, Brinkman [11] a proposé une expression pour l'utilisation conjointe des potentiels de Born-Mayer et de Bohr qui s'écrit [3] :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} e^{-\frac{r}{a_{Bohr}}} + A_{BM} e^{-r/a_{BM}}, \quad (1.16)$$

où les paramètres  $A_{BM}$  et  $a_{BM}$  sont donnés par les relations empiriques suivantes :

$$\begin{cases} A_{BM} = 2.58 \times 10^{-5} (Z_1 Z_2)^{11/4} \text{ (eV)} \\ a_{BM} = 1.5 a_B / (Z_1 Z_2)^{1/6} \end{cases}. \quad (1.17)$$

Pour reproduire le comportement du potentiel de Born-Mayer pour les grandes valeurs de la distance interatomique, et d'un potentiel de répulsion coulombien pour les petites valeurs de cette distance, Brinkman a suggéré le potentiel empirique dont l'expression [3] :

$$V(r) = \frac{A Z_1 Z_2 e^2 e^{-B r}}{1 - e^{-A r}}, \quad (1.18)$$

et les paramètres sont donnés par :

$$\begin{cases} A = (0.95 \times 10^{-6} Z_{eff}^{7/2})/a_B \\ B = Z_{eff}^{1/3}/(P a_B) \\ Z_{eff} = \sqrt{Z_1 Z_2} \end{cases}, \quad (1.19)$$

où la valeur de  $P$  est fixée comme suit :  $P = 1$  pour  $Z_{eff} \leq 30$  et  $P = 1.5$  pour  $Z_{eff} > 30$ . Nous retrouvons ainsi le potentiel coulombien pour les très faibles valeurs de  $r$  :

$$\lim_{r \rightarrow 0} V(r) \rightarrow \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r}$$

et le potentiel de Born-Mayer pour les grandes valeurs de  $r$  :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} V(r) \rightarrow A Z_1 Z_2 e^2 e^{-B r}$$

### **1.4.3 Fonction de Molière**

L'approximation de Molière à la fonction d'écran de Thomas-Fermi est la somme de trois termes en exponentielle. Elle est gouvernée par [12] :

$$\Phi\left(\frac{r}{a_M}\right) = \sum_{i=1}^3 c_i e^{-(d_i r/a_M)}, \quad (1.20)$$

où  $a_M$  est le paramètre d'écran et les coefficients  $c_i$  et  $d_i$  sont donnés par  $c_i = (0.35, 0.55, 0.1)$  et  $d_i = (0.3, 1.2, 6.0)$ . Les  $c_i$  vérifient la relation :

$$\sum_{i=1}^3 c_i = \Phi(0) = 1. \quad (1.21)$$

Donc le Potentiel de Molière à la forme :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \left[ 0.35 e^{-\left(0.3 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.55 e^{-\left(1.2 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.1 e^{-\left(6.0 \frac{r}{a_M}\right)} \right]. \quad (1.22)$$

Le paramètre d'écran utilisé habituellement pour la fonction de Molière est celui de Firsov donné par la relation (1.10). Toutefois, certains auteurs utilisent pour ce paramètre une valeur déduite de l'ajustement du potentiel de Molière au potentiel de Born-Mayer à la distance du plus proche voisin :

$$A_{BM} e^{-r_e/a_{BM}} = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r_e} \left[ 0.35 e^{-\left(0.3 \frac{r_e}{a_M}\right)} + 0.55 e^{-\left(1.2 \frac{r_e}{a_M}\right)} + 0.1 e^{-\left(6.0 \frac{r_e}{a_M}\right)} \right]. \quad (1.23)$$

C'est le cas de Robinson qui a suggéré une valeur approchée « universelle » du rayon d'écran pour les interactions homonucléaires  $a_{\text{Robinson}} = 0.0750 \text{ \AA}$  [13].

#### **1.4.4 Fonction Kr-C**

L'utilisation de distributions de charges basées sur le modèle atomique quantique de Hartree-Fock a permis de concevoir de nouveaux potentiels interatomiques écrantés. Parmi ceux-ci, on cite celui de Wilson *et al.*, appelé potentiel Kr-C [14]. Sa fonction d'écran a pour expression :

$$\Phi(x) = \sum_{i=1}^3 c_i e^{-d_i x} \quad (1.24)$$

avec  $x = r/a_{\text{Firsov}}$ ,  $c_i = (0.1909451, 0.473674, 0.335381)$  et  $d_i = (0.278544, 0.63717, 1.919249)$ .

Il est à noter que l'utilisation du potentiel **Kr-C** avec le paramètre d'écran de Firsov le rend très proche du potentiel de Molière.

#### **1.4.5 Fonction de Ziegler-Biersack-Littmark**

En se basant sur le travail de Wilson *et al.*, Ziegler, Biersack et Littmark ont effectué des calculs poussés des potentiels interatomiques sur 522 paires d'atomes ce qui leur permis de formuler une expression analytique approximative pour un potentiel moyen dit potentiel universel ou potentiel *ZBL*. La fonction d'écran *ZBL* composée de quatre exponentielles s'écrit [15] :

$$\Phi\left(\frac{r}{a_{ZBL}}\right) = \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r/a_{ZBL})} \quad (1.25)$$

où les coefficients  $c_i$  et  $d_i$  ont pour valeurs  $c_i = (0.028171, 0.28022, 0.50986, 0.18175)$  et  $d_i = (0.20162, 0.4029, 0.94229, 3.1998)$ . Le rayon d'écran,  $a_{ZBL}$ , est fonction des numéros atomiques  $Z_1$  et  $Z_2$  et se calcule de l'expression :

$$a_{ZBL} = \frac{0.8853 a_B}{Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23}} \quad (1.26)$$

L'expression complète du potentiel *ZBL* est donc :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r/a_{ZBL})}. \quad (1.27)$$

Notons que le potentiel Kr-C lorsqu'il est utilisé avec le rayon d'écran  $a_{ZBL}$  devient très proche du potentiel *ZBL*.

### 1.4.6 Fonction de Lenz-Jensen

La fonction d'écran de Lenz et Jensen fut parmi les premières fonctions d'écran développées pour le potentiel de Coulomb [16]. Elle est caractérisée par sa forme qui diffère de la plupart des fonctions d'écran présentées précédemment. Elle est donnée par l'expression :

$$\Phi(x) = (1 + y + 0.3344y^2 + 0.485 y^3 + 0.002647y^4) e^{-y}, \quad (1.28)$$

avec

$$\begin{cases} x = r/a_{Lindhard} \\ y = \sqrt{9.67 x} \end{cases} \quad (1.29)$$

### 1.4.7 Fonction de Lenz-Jensen modifiée

Le potentiel moyen modifié de Lenz-Jensen (AMLJ) est un potentiel développé par Nakagawa et Yamamura par des calculs similaires à ceux du potentiel ZBL et en faisant des corrections relativistes [17 -19]. La fonction d'écran s'écrit :

$$\Phi(x) = e^{-\alpha_1 x + \alpha_2 x^{3/2} - \alpha_3 x^2}, \quad (1.30)$$

où les paramètres  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$  ont pour expressions :

$$\begin{cases} \alpha_1 = 1.51 \\ \alpha_2 = 0.763 \left( \frac{Z_1^{0.169} + Z_2^{0.169}}{Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307}} \right) \\ \alpha_3 = 0.191 \left( \frac{Z_1^{0.0418} + Z_2^{0.0418}}{Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307}} \right)^{4/3} \end{cases} \quad (1.31)$$

Dans la relation (1.30),  $x = r/a_{AMLJ}$  et le paramètre d'écran  $a_{AMLJ}$  est fonction des numéros atomiques  $Z_1$  et  $Z_2$  :

$$a_{AMLJ} = \frac{0.8853 a_B}{(Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307})^{2/3}}, \quad (1.31)$$

Il est à noter que contrairement aux coefficients  $c_i$  et  $d_i$  du potentiel ZBL, les  $\alpha_i$  du potentiel AMLJ dépendent des numéros atomiques des deux atomes en interaction.

La figure 1.5 illustre la variation de cinq fonctions d'écran en fonction du rapport entre la distance interatomique et le paramètre d'écran ;  $x=r/a$ . On constate que c'est la fonction de Sommerfeld qui prend les plus grandes valeurs pour toutes les valeurs de  $x$ . La fonction d'écran ZBL prend les plus petites valeurs jusqu'à environ  $x = 12$ . La fonction d'écran de AMLJ a approximativement les mêmes valeurs que celle de Molière pour  $x < 6$  puis elle décroît brutalement. Sur tout l'intervalle d'étude, la fonction d'écran de Kr-C a des valeurs assez proches de celles de Molière [7].

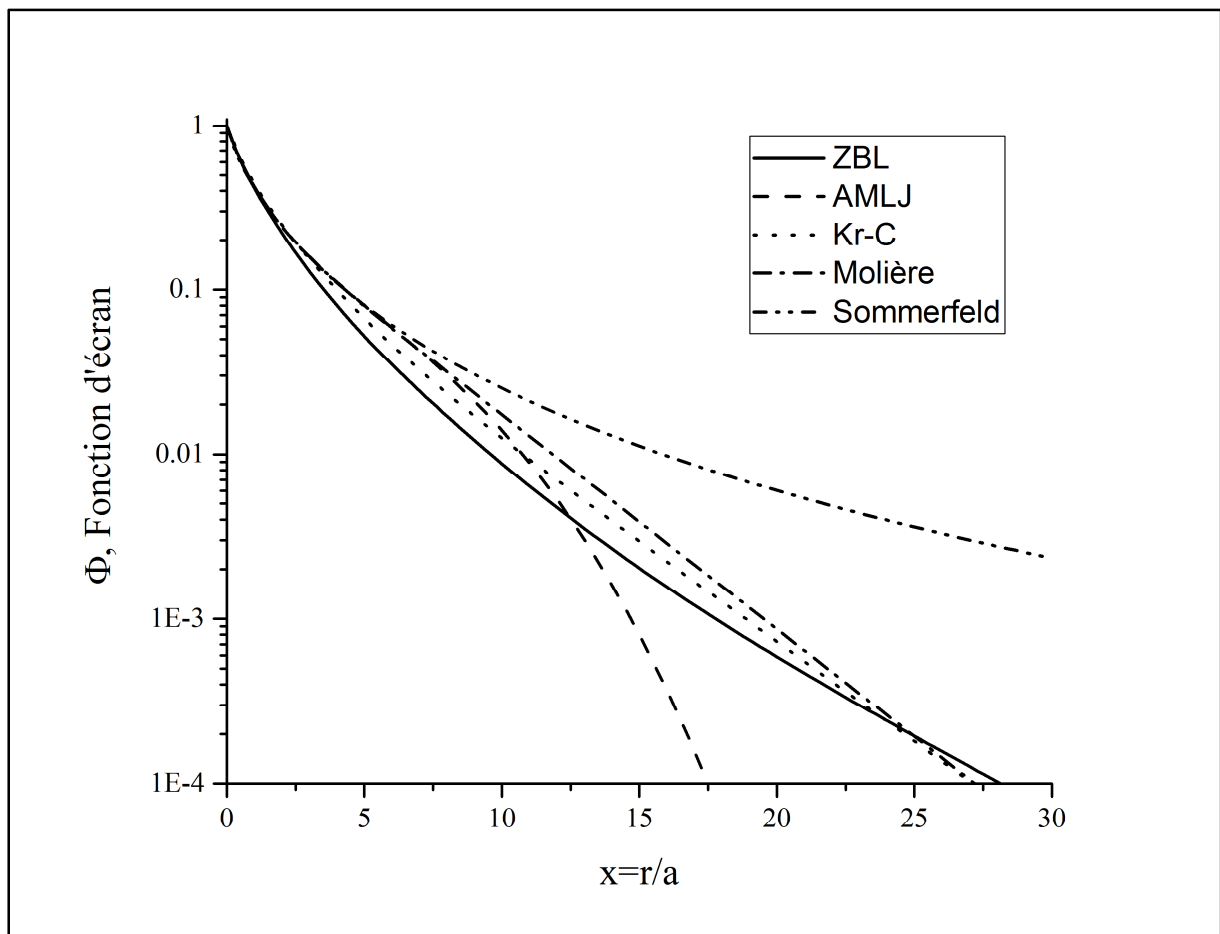


Figure 1.5. Fonctions d'écran en fonction du rapport entre la distance interatomique et le paramètre d'écran.

---

## Références bibliographiques

---

- [1] D.R. Olander, *Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements*, Ed. Technical Information Center, Office of Public Affairs and Energy Research and Development Administration, 1976.
- [2] W. Eckstein, *Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1991.
- [3] G.S. Was, *Fundamentals of Radiation Materials Science*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007.
- [4] A.A. Abrahamson, *Phys. Rev.* **178**, 76 (1969).
- [5] V.I. Gaydaenko, V K. Nikulin, *Chem. Phys. Lett.* **7**, 360 (1970).
- [6] H.H. Andersen, P. Sigmund, *Nucl. Instrum. Methods* **38**, 238 (1965).
- [7] Y. Yamamura, W. Takeuchi, T. Kawamura, *The Screening Length of Interatomic Potential in Atomic Collisions*, Rapport de Recherche, NIFS-DATA-45, Nagoya, Japan, 1998.
- [8] O.B. Firsov, *Sov. Phys. JETP* **6**, 534 (1958).
- [9] J. Lindhard, V. Nielson, M. Scharff, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.* **36**, (No.10) (1968).
- [10] A. Sommerfeld, *Z. Phys.* **78**, 283 (1932).
- [11] J.A. Brinkman, *Radiation Damage in Solids*. Academic Press, New York, 1962.
- [12] G. Molière, *Z. Naturforsch A* **2**, 133 (1947).
- [13] M.T. Robinson, In: *Sputtering by Particle Bombardment I*, Ed. R. Behrisch, *Topics Appl. Phys.* Vol. **47**, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1981.
- [14] W.D. Wilson, L.G. Haggmark, J.P. Biersack, *Phys. Rev. B* **15**, 2458 (1977).
- [15] J.P. Ziegler, J.P. Biersack, U. Utunark, *The Stopping and Range of Ions in Solids, Series: The Stopping and Range of Ions in Matter*, Vol. **1**, Ed. J.P. Ziegler, Pergamon, New York, 1985.
- [16] W. Lenz, *Z. Phys.* **77**, 713 (1932)
- [17] S.T. Nakagawa, Y. Yamamura, *Radiat. Eff.* **105**, 239 (1988).



[18] S.T. Nakagawa, *Radiat. Eff.* **112**, 1 (1990).

[19] S.T. Nakagawa, *Radiat. Eff.* **116**, 21 (1991).

---

# Chapitre 2 : Modèle de simulation

---

## **2.1 Introduction**

Lorsqu'une particule énergétique traverse un milieu, elle entre en collision avec les atomes formant ce milieu entraînant l'excitation des électrons atomiques et le déplacement des atomes du réseau. Ainsi des défauts ponctuels sont produits. L'agglomération des défauts de même nature mène à la formation d'amas qui peuvent évoluer et donner à long terme des cavités et des boucles de dislocations. Tous ces processus qui ne se prêtent pas à l'observation expérimentale directe peuvent être assez bien simulés par la méthode de la dynamique moléculaire ou la méthode de l'approximation des collisions binaires.

La dynamique moléculaire est une méthode permettant de simuler l'évolution temporelle d'un système moléculaire à basse énergie. Elle est basée 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 sont [1] :

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

## **2.2 Approximation des collisions binaires**

Ce modèle basé sur des hypothèses simples est utilisé pour expliquer les phénomènes physiques qui se rapportent à l'interaction des particules énergétiques avec la matière comme par exemple l'implantation ionique, la canalisation, la rétrodiffusion et la production de défauts par irradiation [2 - 6]. Les deux hypothèses de base de ce modèle sont :

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

### **2.2.1 Description de la cascade de déplacements**

Lorsqu'une particule irradiante énergétique pénètre dans un solide, elle cède une partie de son énergie aux atomes composant le matériau provoquant leur déplacement. Tout atome du réseau déplacé directement par la particule incidente est communément appelé 'Primaire' ou désigné par l'acronyme PKA (pour Primary Knock-on Atom). Chaque primaire interagit avec les atomes du matériau se trouvant le long de sa trajectoire. S'il a suffisamment d'énergie, il peut les éjecter de leur positions produisant ainsi des atomes secondaires qui peuvent à leur tour déloger d'autres atomes du réseau et ainsi de suite. L'avalanche de collisions atomiques qui se succèdent est appelée cascade de déplacements (figure 2.1).

Il est communément admis qu'un atome du réseau, ayant subi une collision, est déplacé définitivement de sa position d'équilibre s'il acquiert une quantité d'énergie dépassant l'énergie seuil de déplacement  $E_d$  du matériau. L'estimation du nombre d'atomes déplacés du réseau est liée à cette énergie seuil de déplacement [7]. La perte d'énergie perpétuelle des atomes mobiles suite aux collisions élastiques et inélastiques fait qu'ils ralentiront et qu'à long terme finiront par s'immobiliser, ce qui se traduit par l'arrêt de l'expansion de la cascade. À la fin de la cascade, un désordre structural dans la zone irradié du matériau règne ; il y a présence de lacunes et d'atomes en positions interstitiels. Le processus de recombinaison qui s'enclenche tente à minimiser les dégâts ; les interstitiels se trouvant à proximité des lacunes combleront celles-ci.

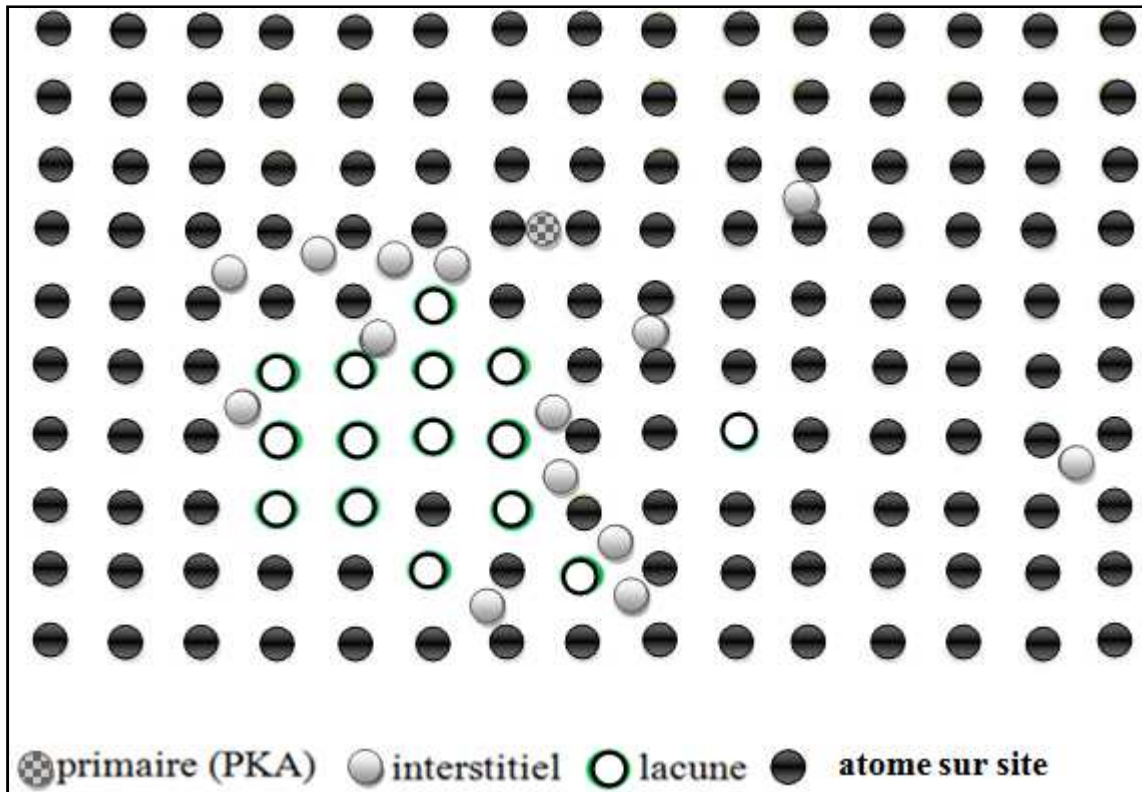


Figure 2.1. Représentation d'une cascade de déplacements dans un cristal.

Dans une cascade de déplacements plusieurs phénomènes peuvent se produire ; la canalisation, la focalisation et les séquences de remplacements.

### 2.2.2 Séquences de remplacements

On parle d'un événement de remplacement, lorsque le projectile donne la totalité de son énergie à l'atome cible, le déloge de sa position et s'immobilise à sa place. Plusieurs événements de remplacement peuvent se produire consécutivement formant une séquence qui peut être très longue. Les séquences de remplacements (RCS) se produisent le plus souvent à basses énergies le long des rangées atomiques de bas indice (figure 2.2). Lorsqu'elles sont longues et nombreuses, elles contribuent efficacement à la création des défauts de Frenkel permanents. En effet, elles transportent les atomes du réseau à des positions interstitiels assez lointaines des sites vacants et défavorisent ainsi la recombinaison [1].

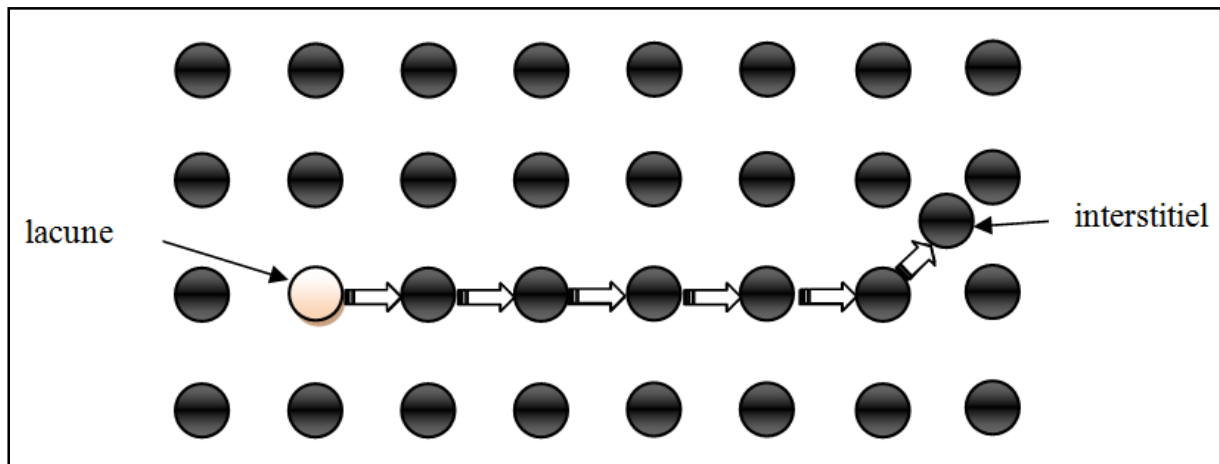


Figure 2.2. Schéma d'une séquence de remplacements.

### 2.2.3 Cinématique d'une collision binaire

Le modèle de l'approximation des collisions binaires est fondé sur la collision de deux atomes en faisant abstraction de la présence des autres atomes les entourant. Dans ce qui suit, nous allons examiner de près une collision binaire en calculant différentes grandeurs physiques qui se rapportent à cette collision. Pour cette analyse, nous allons utiliser conjointement la mécanique des chocs et la diffusion d'une particule par un champ de force centrale. Les calculs seront élaborés dans le référentiel du laboratoire (L) et dans le référentiel du centre de masse (CM). Dans la plage d'énergie qui nous intéresse (ordre du keV) et les atomes massifs étudiés, 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  $m_2$  immobile. Dénotons 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).

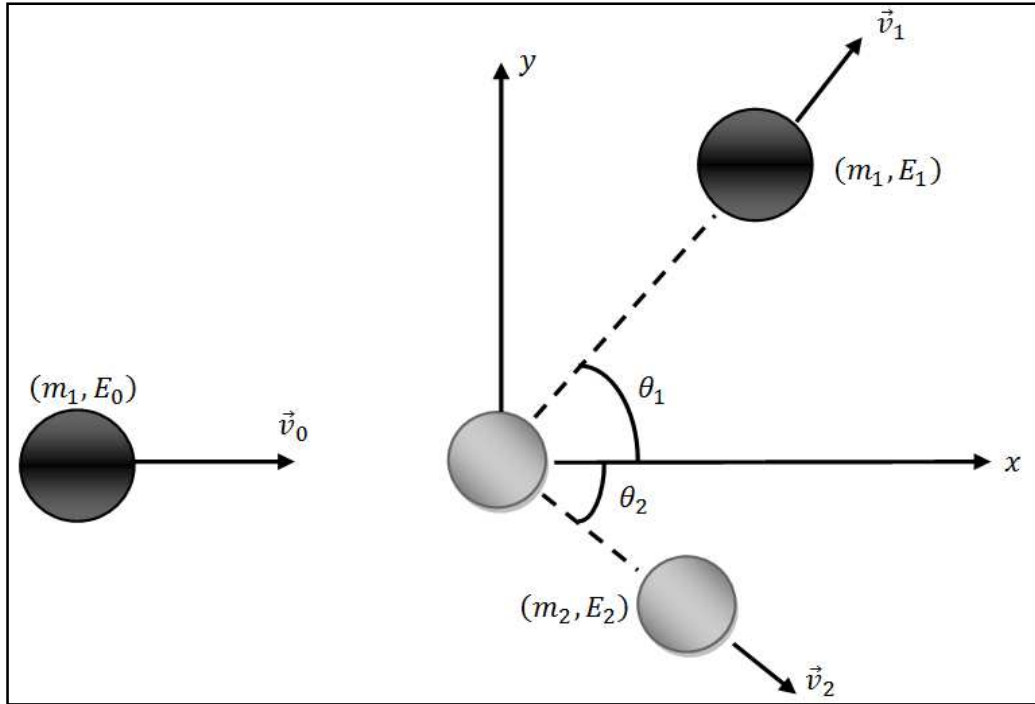


Figure 2.3. Schéma d'une collision binaire dans le système du laboratoire.

D'après les lois de conservation de l'énergie totale et de la quantité de mouvement du système (projectile-cible) dans (L) nous avons [8] :

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

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

La projection de la relation vectorielle (2.2) sur les deux axes  $Ox$  et  $Oy$  nous donne :

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

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

où  $\theta_1$  et  $\theta_2$  représentent, respectivement, l'angle de diffusion du projectile et l'angle de diffusion de l'atome cible par rapport à la direction d'incidence. En combinant les relations (2.1), (2.3) et (2.4), nous pouvons extraire les expressions des angles de diffusion [8] :

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

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

où  $E_0$  et  $E_1$  dénotent, respectivement, l'énergie cinétique du projectile avant et après la collision,  $E_2$  l'énergie cinétique de l'atome cible après la collision et  $A$  représente le rapport entre les masses des deux atomes :  $A = m_2/m_1$ . Les relations entre les angles  $\theta_i$  et l'angle de diffusion dans le système de centre de masse,  $\vartheta$ , ont pour expression [8] :

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

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

où le coefficient  $f$  est fonction de  $Q$  et de l'énergie relative  $E_r = (A E_0)/(1+A)$  :

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

$$E_r = \frac{A}{1+A} E_0. \quad (2.10)$$

#### 2.2.4 Energie transférée

Utilisons, maintenant, les relations (2.5) et (2.6) pour trouver l'expression de l'énergie cinétique du projectile et l'énergie cinétique de l'atome cible après la collision [8] :

$$\frac{E_1}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} \left( \cos\theta_1 \pm \sqrt{A^2 f^2 - \sin^2\theta_1} \right)^2 = \left( \frac{v_1}{v_0} \right)^2, \quad (2.11)$$



$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{A}{(1+A)^2} \left( \cos\theta_2 \pm \sqrt{f^2 - \sin^2\theta_2} \right)^2 = A \left( \frac{v_2}{v_0} \right)^2, \quad (2.12)$$

Pour exprimer ses énergies en fonction de l'angle de diffusion dans le système (CM), servons-nous des relations (2.7) et (2.8) :

$$\frac{E_1}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} \left( (1 + Af)^2 - 4 Af \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right), \quad (2.13)$$

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{A}{(1+A)^2} \left( (1 - f)^2 + 4 f \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right), \quad (2.14)$$

De (2.14), nous déduisons l'énergie transférée à l'atome cible pendant la collision :

$$E_2 = T = \frac{E_r}{(1+A)} \left( (1 - f)^2 + 4 f \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right), \quad (2.15)$$

Cette énergie transmise à l'atome cible prend une valeur maximale lorsque la perte d'énergie inélastique est nulle ; ce qui correspond à  $Q = 0$  ( $f = 1$  et  $\sin^2(\vartheta/2) = 1$ ) :

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

### **2.2.5 Angle de diffusion**

Les expressions donnant les grandeurs physiques caractérisant une collision binaire (2.7), (2.8), (2.13) et (2.14) et qui représentent les angles de diffusion et les énergies du projectile et de la cible après collision dans le système (L) sont toutes fonction de l'angle de diffusion  $\vartheta$ . Cet angle dépend du potentiel interatomique,  $V$ , qui modélise l'interaction entre les deux atomes en collision. En effet, la théorie du mouvement d'une particule dans un champ de force centrale (voir figure 2.4) permet d'établir l'expression de cette dépendance [8]

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

$g(r)$  dans (2.17) est une fonction donnée par :

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

La solution de l'équation  $g(r) = 0$  est notée  $R$ . Elle représente la distance minimale d'approche (figure 2.4). Le paramètre  $s$  dans l'expression (2.17) est appelé paramètre d'impact. C'est la distance entre la cible et la direction de la vitesse initiale du projectile.

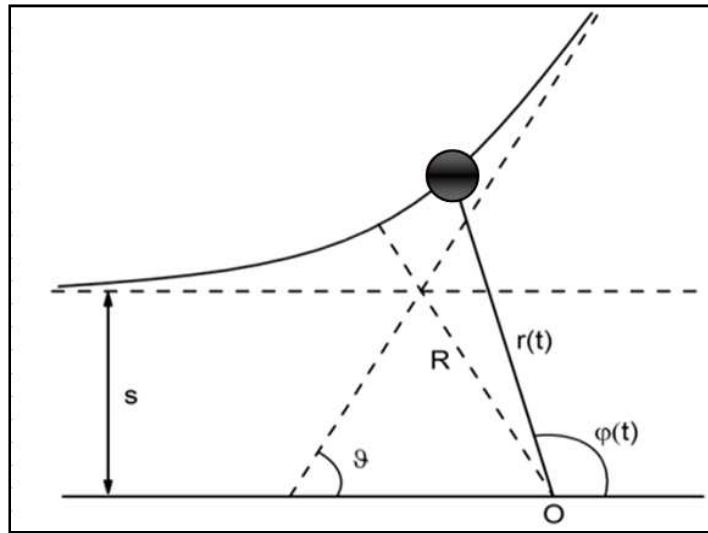


Figure 2.4. Angle de diffusion  $\vartheta$  dans le référentiel du centre de masse.

Les abscisses  $x_1$  et  $x_2$  des points d'intersection des asymptotes du projectile et de l'atome cible (voir figure 2.5) sont données par [9] :

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

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

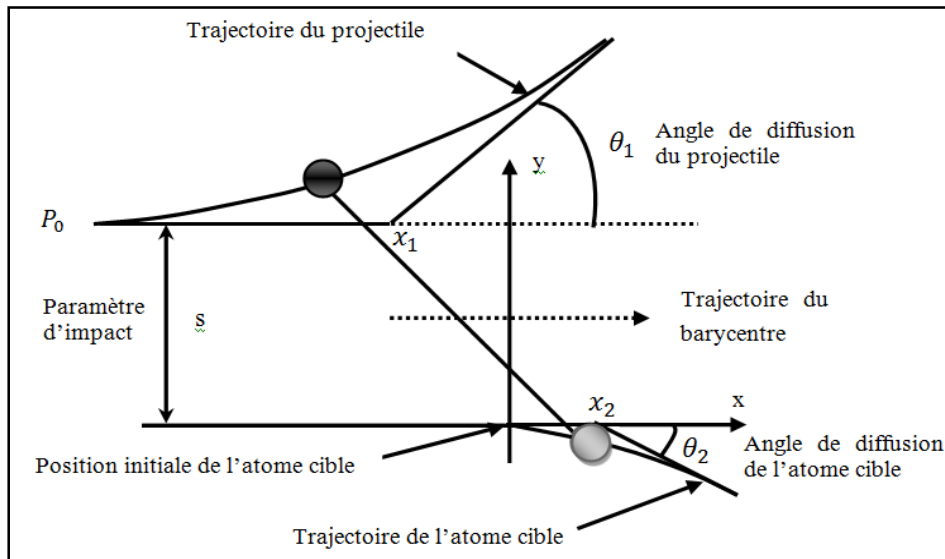


Figure 2.5. Trajectoires de deux atomes en collision dans le référentiel du laboratoire.

### 2.3 Perte d'énergie

Lorsqu'une particule irradiante traverse un milieu, elle perd perpétuellement son énergie par différents mécanismes, pour s'immobiliser à l'intérieur du milieu cible, rebondir à sa surface ou le traverser entièrement. Dans la région énergétique qui nous intéresse, il y a essentiellement deux mécanismes responsables de la perte d'énergie de la particule dans les matériaux : les collisions élastiques et les collisions inélastiques [10]. Les collisions élastiques ou nucléaires traduisent les collisions avec les noyaux du milieu alors que les collisions inélastiques se rapportent à l'interaction entre le projectile et les électrons atomiques du milieu causant l'excitation et l'ionisation de ces derniers.

On définit pour le milieu traversé le pouvoir d'arrêt linéaire (ou le pouvoir de ralentissement) qui représente la perte d'énergie de la particule par unité de distance parcourue du matériau cible. Il est désigné 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 :

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

L'utilisation du pouvoir d'arrêt massique est aussi fréquente dans la littérature. Il est obtenu en rapportant le pouvoir d'arrêt linéaire à la masse volumique,  $\rho$ , 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 plusieurs paramètres parmi ceux-ci on trouve la vitesse  $v$  du projectile. On distingue trois domaines de vitesse, définis par rapport à la quantité  $V_B Z_1^{2/3}$  où  $Z_1$  est le numéro atomique du projectile et  $V_B$  est la vitesse orbitale de Bohr donnée par  $V_B = e^2/(4\pi\epsilon_0\hbar)$  avec  $e$  la charge élémentaire,  $\epsilon_0$  la permittivité du vide et  $\hbar$  la constante de Planck réduite :

1-Le 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  $A_2$  pour une particule chargée lourde est donné par la formule approximative de Bethe et Bloch [1] :

$$\left( -\frac{dE}{dx} \right)_e = NS_{BB} = \frac{e^4}{4\pi\epsilon_0^2 m_e c^2} \frac{Z_1^2}{\beta^2} \frac{\mathcal{N}_a \rho Z_2}{A_2} \left[ \ln \left( \frac{2 m_e c^2 \beta^2}{I} \right) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 - \frac{C_K}{Z} - \frac{\delta}{2} \right], \quad (2.23)$$

avec :

$m_e$  : la masse au repos de l'électron

$I$  : le potentiel moyen d'excitation de l'atome cible

$\mathcal{N}_a$  : le nombre d'Avogadro

$\beta$  :  $\beta = v/C$  où  $C$  est la vitesse de la lumière dans le vide

$C_K$  : une correction introduite pour tenir compte du fait que les électrons de la couche  $K$  sont bien liés pour pouvoir être éjectés facilement

$\delta$  : 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 chargées d'énergie allant de quelques MeV jusqu'à des centaines de GeV.

2-Le domaine  $v \ll Z_1^{2/3} e^2/\hbar$  : Dans ce domaine, deux modèles basés sur les collisions binaires sont, habituellement, utilisés pour estimer le pouvoir d'arrêt du milieu; le modèle de Lindhard, Scharff et Schiott (LSS) et le modèle de Firsov.

Dans le modèle LSS, le milieu dans lequel se produit l'interaction est décrit comme un gaz d'électrons libres. Les échanges d'électrons entre le projectile et les atomes cibles se manifestent par une transmission d'énergie au nuage électronique produisant des vibrations thermiques au sein de celui-ci. Le pouvoir d'arrêt électronique dans ce modèle se calcule de l'expression [1, 11] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = NS_{LS} = \frac{2 e^2 N a_B Z_1^{7/6} Z_2}{\varepsilon_0 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2} V_B} v, \quad (2.24)$$

Si l'on prend en considération la relation entre l'énergie cinétique d'une particule et sa vitesse, on peut écrire la formule précédente sous la forme :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = k\sqrt{E}, \quad (2.25)$$

où  $k$  est une constante. Il est clair dans ce domaine de vitesses que la perte d'énergie du projectile croit avec son énergie.

Dans le modèle de Firsov, le projectile et l'atome cible forment une quasi-molécule durant l'interaction. Cette interaction provoque des échanges électroniques qui nécessitent l'acquisition d'impulsion provenant de la collision. Le pouvoir d'arrêt linéaire dans ce modèle a pour expression [1] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = 5.15 \cdot 10^{-15} N (Z_1 + Z_2) \frac{v}{v_B}, \quad (2.26)$$

3-Le domaine des vitesses intermédiaires  $v \approx Z_1^{2/3} e^2 / \hbar$  : il est difficile d'élaborer un modèle pour calculer le pouvoir d'arrêt dans ce domaine. Il est approché à partir de ceux des deux autres domaines par une interpolation dont la forme est donnée par [8] :

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

### **2.3.2 Pertes d'énergie élastiques**

Pour les collisions élastiques responsables de la création des défauts, le pouvoir d'arrêt nucléaire d'un milieu est donné par [12] :

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

où  $T$  représente l'énergie transférée à l'atome heurtée et utilisée pour le déloger de sa position et créer une lacune,  $\sigma$  dénote la section efficace de diffusion,  $T_{min}$  et  $T_{max}$  désignent,

respectivement, l'énergie minimale et l'énergie maximale qui peuvent être transmises à l'atome cible. Lorsque l'interaction entre les deux atomes en collision est modélisée par un potentiel coulombien, le pouvoir d'arrêt nucléaire se calcule de la relation suivante :

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

Lorsqu'un un potentiel écranté de type Thomas-Fermi est utilisé, Biersack suggéra pour le pouvoir d'arrêt du milieu l'expression [1] :

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

où  $a_{12}$  représente le paramètre d'écrantage de Thomas-Fermi dont l'expression est :

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

$\epsilon$  étant l'énergie réduite donnée par la relation :

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

### **2.3.3 Perte d'énergie totale**

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

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

La contribution des deux pouvoirs d'arrêt dépend de l'énergie du projectile. À haute énergie, la perte d'énergie inélastique domine complètement, alors qu'à basse énergie la perte d'énergie est presque exclusivement élastique (figure 2.6) [1].

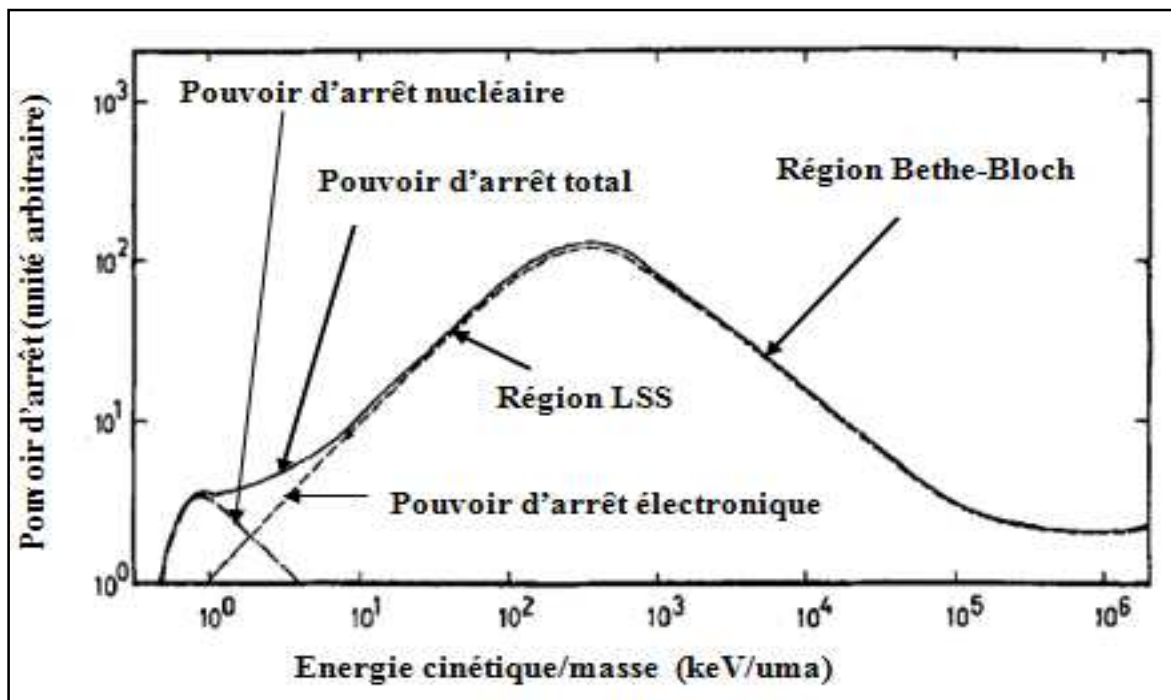


Figure 2.6. Représentation schématique du pouvoir d'arrêt des ions dans la matière.

## 2.4 Nombre de défauts de Frenkel permanents

Il est primordial dans l'étude du comportement d'un matériau lorsqu'il est utilisé dans un environnement de radiation intense de connaître le nombre de défauts permanents produits. Il est connu que ce nombre est considérablement petit lorsqu'il est comparé au nombre de déplacements initiaux. Le processus de guérison impliquant les interstitiels et les lacunes voisins est le responsable de la réduction de ce nombre.



Dans les simulations basées sur la BCA, une paire de Frenkel est considérée comme stable ou permanente si la distance séparant l'interstitiel et la lacune associée est supérieure à une certaine distance appelée rayon de recombinaison [12, 13].

Des efforts considérables ont été déployés pour développer des modèles théoriques capables de prédire avec justesse le nombre de paires de Frenkel permanentes générées dans un matériau par un primaire. On cite parmi les modèles connus ; 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 le plus simple développé pour prédire le nombre de défauts de Frenkel permanents induits dans un matériau irradié est celui de Kinchin-Pease (KP). Il se base sur l'approximation des collisions binaires et stipule que le nombre de déplacements est donné par [1] :

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

où  $E$  désigne l'énergie cinétique du primaire,  $E^*$  représente l'énergie seuil qui sépare les deux régions ;  $E \geq E^*$  où la perte d'énergie est principalement inélastique et  $E < E^*$  où la perte d'énergie est essentiellement élastique (figure 2.7).

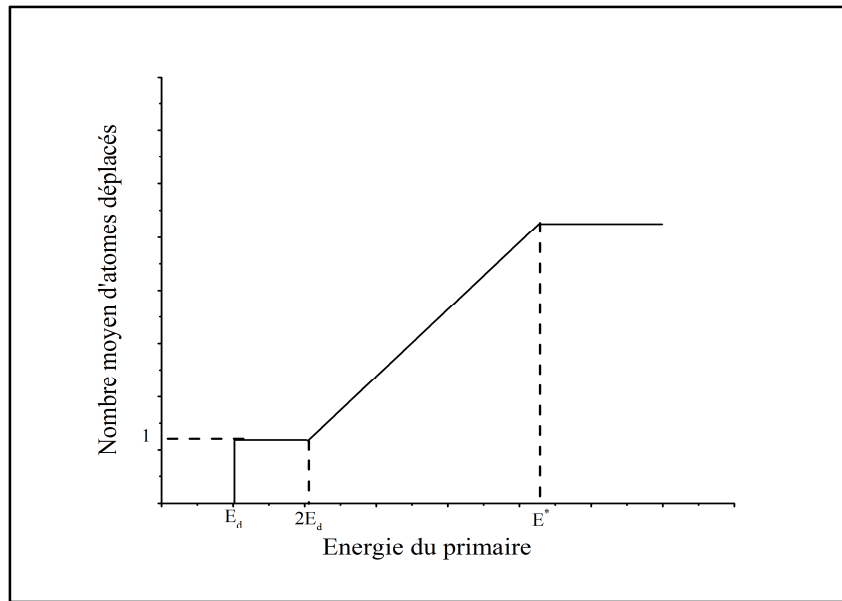


Figure 2.7. Nombre de déplacements en fonction de l'énergie du primaire.

Les prédictions données par le modèle KP s'avère loin des résultats obtenus par des études effectuées sur les métaux irradiés. En effet, il y a une surestimation du nombre de défauts de Frenkel calculé à partir du modèle KP d'un facteur de 2 à 10 [1].

#### **2.4.2 Modèle de Norgett-Robinson-Torrens**

Pour améliorer le modèle KP, Norgett, Robinson et Torrens (NRT) ont suggéré un modèle qui permet un passage en douceur entre les deux régimes de perte d'énergie élastique et inélastique. Selon ce modèle, le nombre de défauts de Frenkel induits par un primaire d'énergie cinétique initiale  $E$  est donné par l'expression [14] :

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

où  $E_d$  représente l'énergie seuil de déplacement du matériau et  $E_{dam}$  dénote l'énergie disponible pour le déplacement atomique (énergie dissipée par collisions élastiques menant à la formation des défauts). L'énergie  $E_{dam}$  est fonction de l'énergie cinétique du primaire  $E$ . Elle est donnée par l'expression [14] :

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

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.

### 2.4.3 Modèle arc-dpa

Le modèle arc-dpa (Athermal Recombination-Corrected Displacement) suggéré récemment est établi pour améliorer les résultats du modèle NRT qui surestime, lui aussi, le nombre de défauts de Frenkel. Selon ce modèle, le nombre de déplacements permanents est donné par [15, 16]:

$$N_d(E_{dam}) = \begin{cases} 0 & E_{dam} < E_d \\ 1 & E_d < E_{dam} < 2 E_d / 0.8 \\ \frac{0.8}{2 E_d} \xi_{arc dpa}(E_{dam}) \cdot E_{dam} & E_{dam} > 2 E_d / 0.8 \end{cases}, \quad (2.38)$$

où l'efficacité de génération de défauts  $\xi_{arc dpa}$  est donnée par la relation :

$$\xi_{arc dpa}(E_{dam}) = \frac{1 - c_{arc dpa}}{(2 E_d / 0.8)^{b_{arc dpa}}} E_{dam}^{b_{arc dpa}} + c_{arc dpa}, \quad (2.39)$$

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 2.1 [16]. La valeur moyenne de l'énergie seuil de déplacement pour certains éléments est donnée dans le tableau 2.2.

Tableau 2.1. Valeurs du paramètre  $c_{arc\delta pa}$

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

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 A	68 Er	37 ± 7
11 Na	17 ± 4	41 Nb	78 ± 16 A	69 Tm	36 ± 7
12 Mg	20 ± 4 A	42 Mo	65 ± 13 A	70 Yb	27 ± 5
13 Al	27 ± 5 A	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 A
16 S	20 ± 4	46 Pd	41 ± 8 A	74 W	90 ± 18 A
19 K	16 ± 4	47 Ag	39 ± 8 A	75 Re	60 ± 12 A
20 Ca	23 ± 5	48 Cd	30 ± 6 A	76 Os	69 ± 14
21 Sc	33 ± 7	49 In	12 ± 2 A	77 Ir	58 ± 12
22 Ti	30 ± 6 A	50 Sn	20 ± 10	78 Pt	44 ± 9 A
23 V	57 ± 11 A	51 Sb	22 ± 6	79 Au	43 ± 9 A
24 Cr	40 ± 8 A	52 Te	20 ± 5	80 Hg	20 ± 5
25 Mn	33 ± 7	53 I	16 ± 4	81 Tl	24 ± 5
26 Fe	40 ± 8 A	55 Cs	15 ± 4	82 Pb	25 ± 5 A
27 Co	36 ± 7 A	56 Ba	22 ± 4	83 Bi	23 ± 5
28 Ni	33 ± 7 A	57 La	29 ± 6	84 Po	22 ± 4
29 Cu	30 ± 6 A	58 Ce	28 ± 6	85 At	22 ± 4
30 Zn	29 ± 6 A	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 A
34 Se	23 ± 5	63 Eu	24 ± 5	91 Pa	43 ± 7
35 Br	19 ± 4	64 Gd	35 ± 7	92 U	39 ± 8

---

---

# Références bibliographiques

---

---

- [1] A. DJAAFRI, *Etude des dommages créés dans le tantale (Ta) et les composés TaC et Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> par l'approximation des collisions binaires (BCA)*, Thèse de Doctorat, Université Djillali LIABES de Sidi-Bel-Abbes, Algérie, 2018.
- [2] W. Takeuchi, Y. Yamamura, *Radiat. Eff.* **71**, 53 (1983).
- [3] A. Kuzmichev, V. Perevertaylo, L. Tsybulsky, O. Volpian, *J. Phys. Conf. Ser.* **729**, 012005 (2016).
- [4] T. T. Nuver, H. Rudolph, P.A. Zeijlmans van Emmichoven, A. Niehaus, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **164-165**, 785 (2000).
- [5] A. De Backer, A. Sand, C.J. Ortiz, C. Domain, P. Olsson, E. Berthod, C.S. Becquart, *Phys. Scr.* 2016 (T167), 014018 (2016).
- [6] L. Bukonte, F. Djurabekova, J. Samela, K. Nordlund, S.A. Norris, M.J. Aziz, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **297**, 23 (2013).
- [7] 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.
- [8] W. Eckstein, *Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1991.
- [9] M.T. Robinson, I. Torrens, *Phys. Rev.* **B 9**, 5008 (1974).
- [10] 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.
- [11] P. Salou, *Interaction ion-surface: simulation de l'interaction plasma-paroi (ITER)*, Thèse de Doctorat, l'Université de Caen Basse-Normandie, France, 2013.
- [12] A. Scholtz, C. Lehmann, *Phys. Rev.* **B6**, 813 (1972).
- [13] G. Vizkelently, S.M. Foiles, *Nucl. Instrum. Methods*, **B 371**, 111 (2015).
- [14] C.H.M. Broeders, A.Yu. Konobeyev, *J. Nucl. Mater.*, **336**, 201 (2005).

[15] P. J. Griffin, *Relationship between Metrics Used to Represent Displacement Damage in Materials*, SANDIA REPORT, Sandia National Laboratories USA, 2014.

[16] A.Y. Konobeyev, U. Fischer, Y. A. Korovin, S. P. Simakov, *Nuclear Energy and Technology*, **3**, 169 (2017).

---

## Chapitre 3 : Résultats et discussion

---



### **3.1 Introduction**

Nous reportons dans ce chapitre les résultats de la simulation de l'irradiation de l'iridium. Le code Marlowe basé sur le modèle de l'approximation des collisions binaires a été utilisé dans ces calculs. Nous donnons le nombre d'atomes déplacés suite à l'irradiation, le nombre de défauts qui subsistent après la recombinaison, leur distribution spatiale ainsi que le volume de la zone endommagée.

Afin d'accumuler une quantité suffisante de statistiques pour une étude adéquate des caractéristiques de la cascade de déplacements, nous avons simulé à chaque énergie étudiée une série de 1000 cascades. Chaque cascade de déplacement est initiée avec un atome d'iridium du réseau lancé avec une énergie cinétique choisie. Dans cette irradiation interne, la direction de l'impulsion initiale de mouvement du primaire est choisie isotrope dans tout l'espace. Deux potentiels d'interaction atomique sont utilisés dans la simulation. Les vibrations thermiques des atomes du réseau autour de leurs positions d'équilibre sont prises en compte et décrites 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. Un atome du réseau collisionné est considéré en mouvement s'il surmonte une énergie de liaison égale à l'énergie de cohésion du matériau (notée  $E_{\text{th}}$ ). Les énergies de liaison des atomes cibles dans les événements de remplacement et redéplacement sont dénotées, respectivement par  $E_r$  et  $E_b$ . Tous les atomes en mouvement dans une cascade sont suivis jusqu'à ce que leur énergie cinétique soit inférieure à une énergie de coupure  $E_c$ .

### **3.2 Paramètres de simulation**

L'iridium est un métal de transition lourd de masse atomique  $m=192.217$  uma [1] et de numéro atomique  $Z = 77$ . C'est un métal très dur et cassant d'aspect brillant et argenté. Il est très rare sur notre planète mais abondant dans les météorites. Il a une haute température de

fusion ; 2719 K [2]. Il est le deuxième plus dense corps simple (naturel) après l'osmium. Sa densité est de  $22.562 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ . Il a une structure cristalline cubique à faces centrées avec une constante du réseau  $a_0 = 3.839 \text{ \AA}$  [3] (voir figure 3.1).

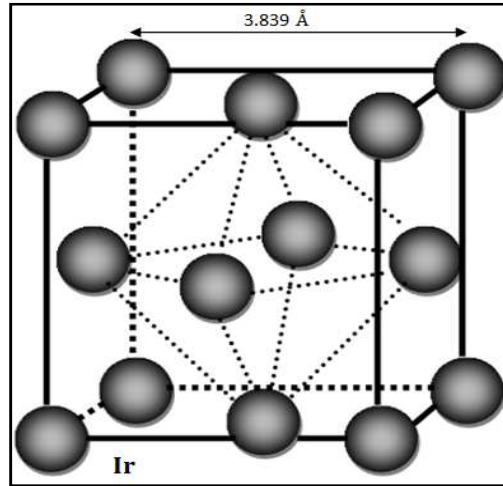


Figure 3.1. Maille élémentaire de l'iridium.

Les interactions entre les atomes de l'iridium sont modélisées par des potentiels de paires de type répulsif. Ce sont l'approximation de Molière au potentiel de Thomas-Fermi et le potentiel universel dit aussi potentiel ZBL. Pour l'interaction Ir-Ir ( $Z_1=Z_2=77$ ), le potentiel de Molière a pour expression :

$$V(r) = \frac{85375.525}{r} \left[ 0.35 e^{-\left(0.3 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.55 e^{-\left(1.2 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.1 e^{-\left(6.0 \frac{r}{a_M}\right)} \right]. \quad (3.1)$$

Le paramètre d'écran pour ce potentiel est  $a_M = 0.0693724 \text{ \AA}$ . Il est évalué par le programme de la relation de Firsov (1.10). Le potentiel ZBL pour l'interaction Ir-Ir est gouverné par :

$$V(r) = \frac{85375.525}{r} \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r/a_{ZBL})}. \quad (3.2)$$

Les valeurs des coefficients  $c_i$  et  $d_i$  sont  $c_i = (0.02817, 0.28018, 0.50986, 0.18179)$  et  $d_i = (0.2016, 0.4029, 0.9423, 3.2)$ . Le rayon d'écran estimé de la relation (1.26) a pour valeur  $a_{ZBL} = 0.0862543 \text{ \AA}$ .

La variation des deux potentiels en fonction de la distance entre les atomes en collision est illustrée sur la figure 3.2.

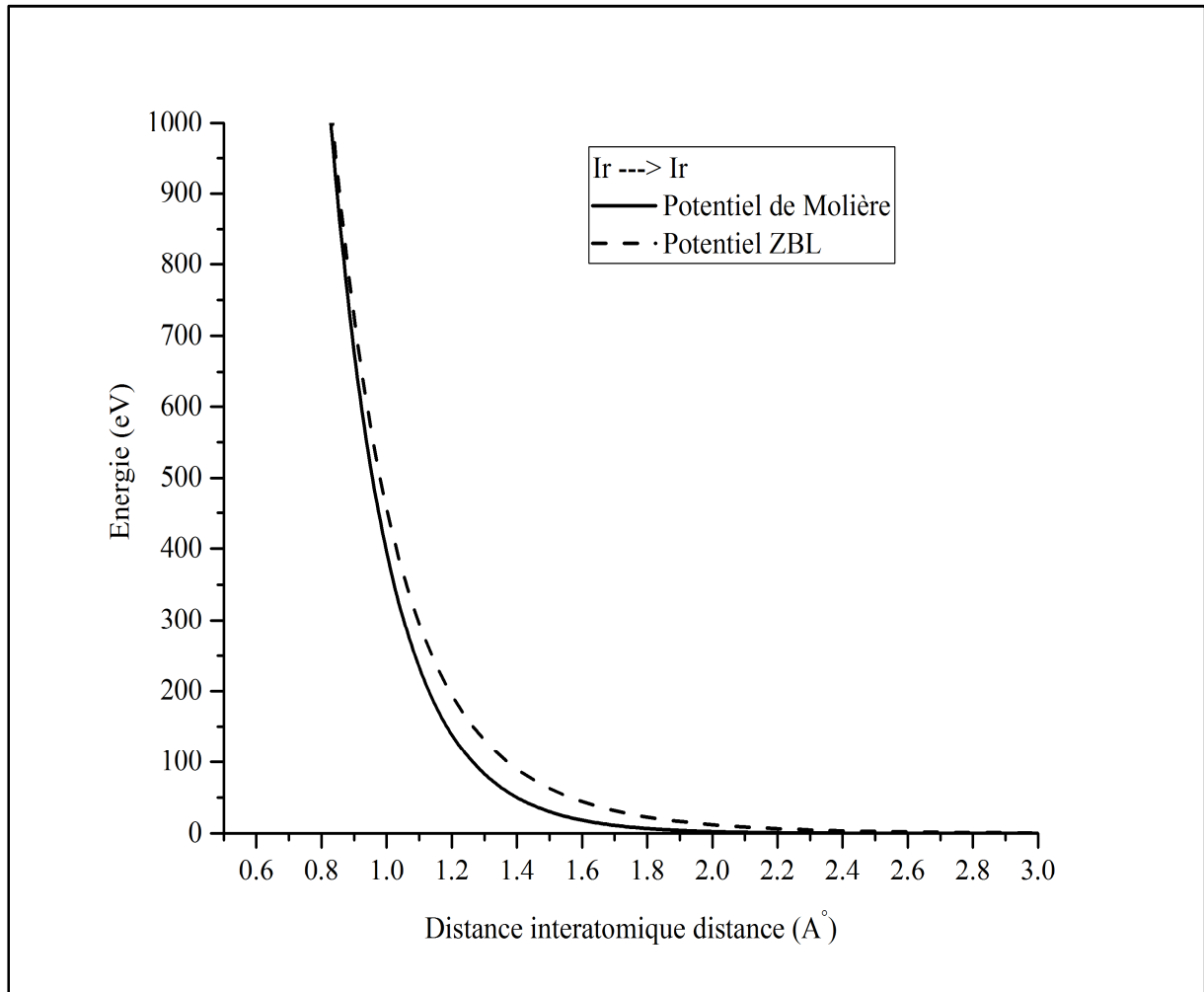


Figure 3.2. Potentiels de Molière et ZBL entre deux atomes de l'iridium.

Le nombre de collisions qu'un projectile peut faire est réglé par le paramètre d'impact maximum qui est fixé à  $s_{\max} = 0.71 a_0$ . Les énergies de liaison utilisées sont pour le déplacement  $E_{\text{th}} = 6.94 \text{ eV}$  [4], le redéplacement  $E_b = 0 \text{ eV}$  et le remplacement  $E_r = 0.2 \text{ eV}$ . L'énergie de coupure est prise  $E_c = E_{\text{th}}$ . Les simulations sont effectuées pour une température

du matériau de 300 K. La température de Debye de l'iridium à la température ambiante est  $T_D = 228.0$  K [5]. Nous portons sur le tableau 3.1 les principales propriétés de l'iridium.

Tableau 3.1. Certaines propriétés de l'iridium

Symbole	Ir
Numéro atomique	77
Masse atomique	$192.217 \pm 0,003$ uma
Point de fusion	2719 K
Groupe	9
Configuration électronique	[Xe] $4f^{14} 5d^7 6s^2$
Groupe de symétrie	Fm $\bar{3}m$ (N° 225)
Rayon atomique	136 pm
Énergies d'ionisation	1 <sup>re</sup> : 8,96702 eV
Masse volumique	$22.562 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ (20 °C)
État ordinaire	Solide
Système cristallin	Cubique à faces centrées $a = b = c = 3.839 \text{ \AA}$ , $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$
Point de fusion	2719 K
Point d'ébullition	4898 K
Conductivité électrique	$19,7 \times 10^6 \text{ S} \cdot \text{m}^{-1}$
Conductivité thermique	$147 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
Energie de cohésion	6.94 eV/atome
Température de Debye (à 298 K)	228.0 K

### 3.3 Ajustement du nombre de paires de Frenkel

À la fin de la phase balistique, les lacunes et les interstitiels sont arrangés selon la distance de séparation lacune-interstitiel en trois classes de paires de Frenkel. Dans la première, nommée “paires proches”, le site le plus proche de l'interstitiel est vide. Dans la deuxième classe, appelée “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 paires restantes sont rangées dans la classe “paires distantes”. Les paires classées proches et voisines sont considérées instables et les interstitiels et les lacunes les formant se recombinent.

La figure 3.3 montre les lacunes et les interstitiels produits durant la phase balistique dans l’iridium irradié par un primaire de 30 keV après recombinaison des paires proches et des paires voisines.

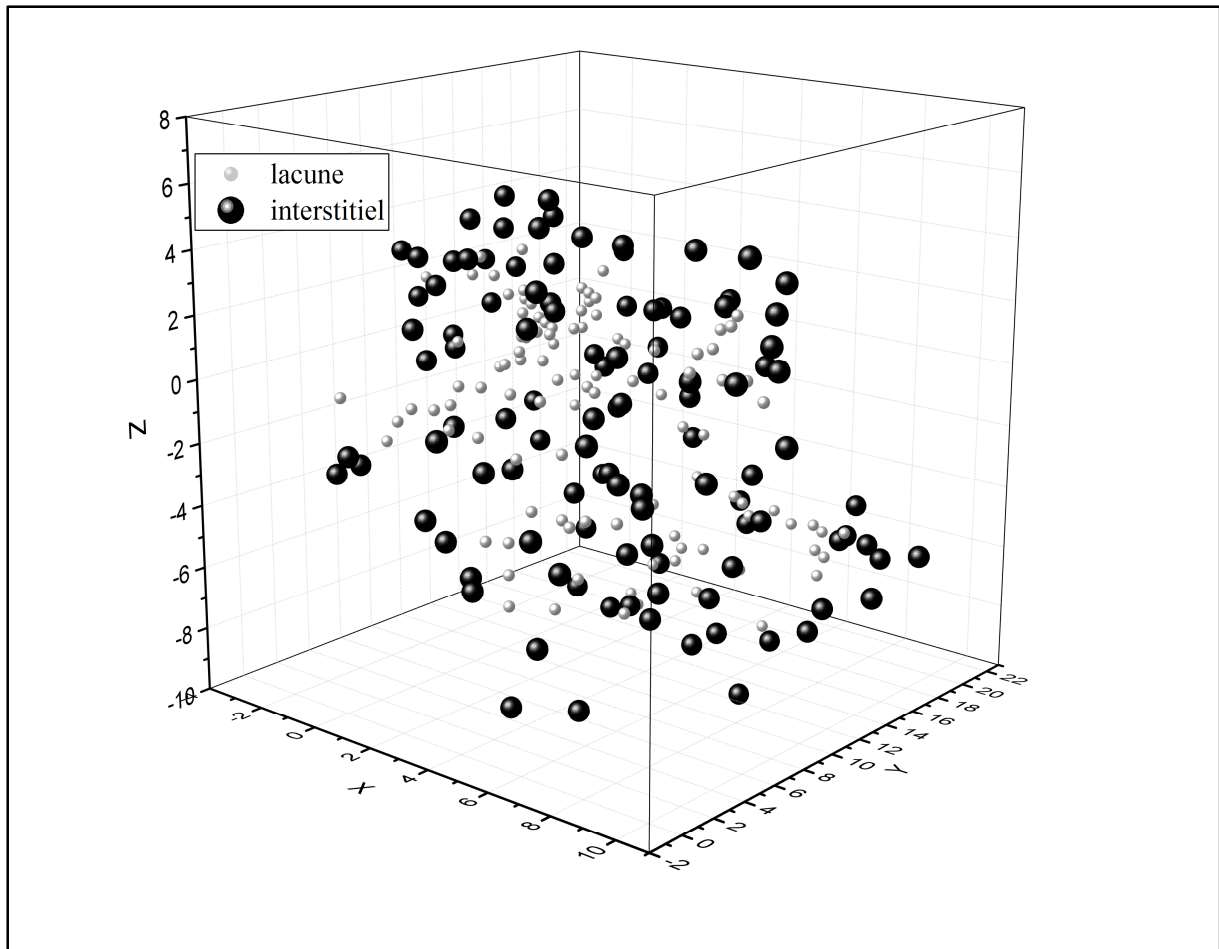


Figure 3.3. Lacunes et interstitiels produits dans une cascade de 30 keV dans l’iridium.

À partir des coordonnées des défauts ponctuels, le code construit une fonction de distribution des paires distantes de Frenkel. Cette fonction représente pour une distance de

séparation lacune-interstitiel,  $r_{VI}$ , le nombre de paires dont la distance de séparation est supérieure à  $r_{VI}$ . Nous illustrons sur la figure 3.4 cette fonction pour les paires distantes dans l'iridium irradié avec un primaire d'énergie 30 keV. On constate pour les deux potentiels utilisés que le nombre de paires de Frenkel décroît rapidement pour les faibles distances de séparation lacune-interstitiel. Ceci reflète le fait qu'un grand nombre d'atomes éjectés de leurs sites sont immobilisés à proximité immédiate des sites vacants.

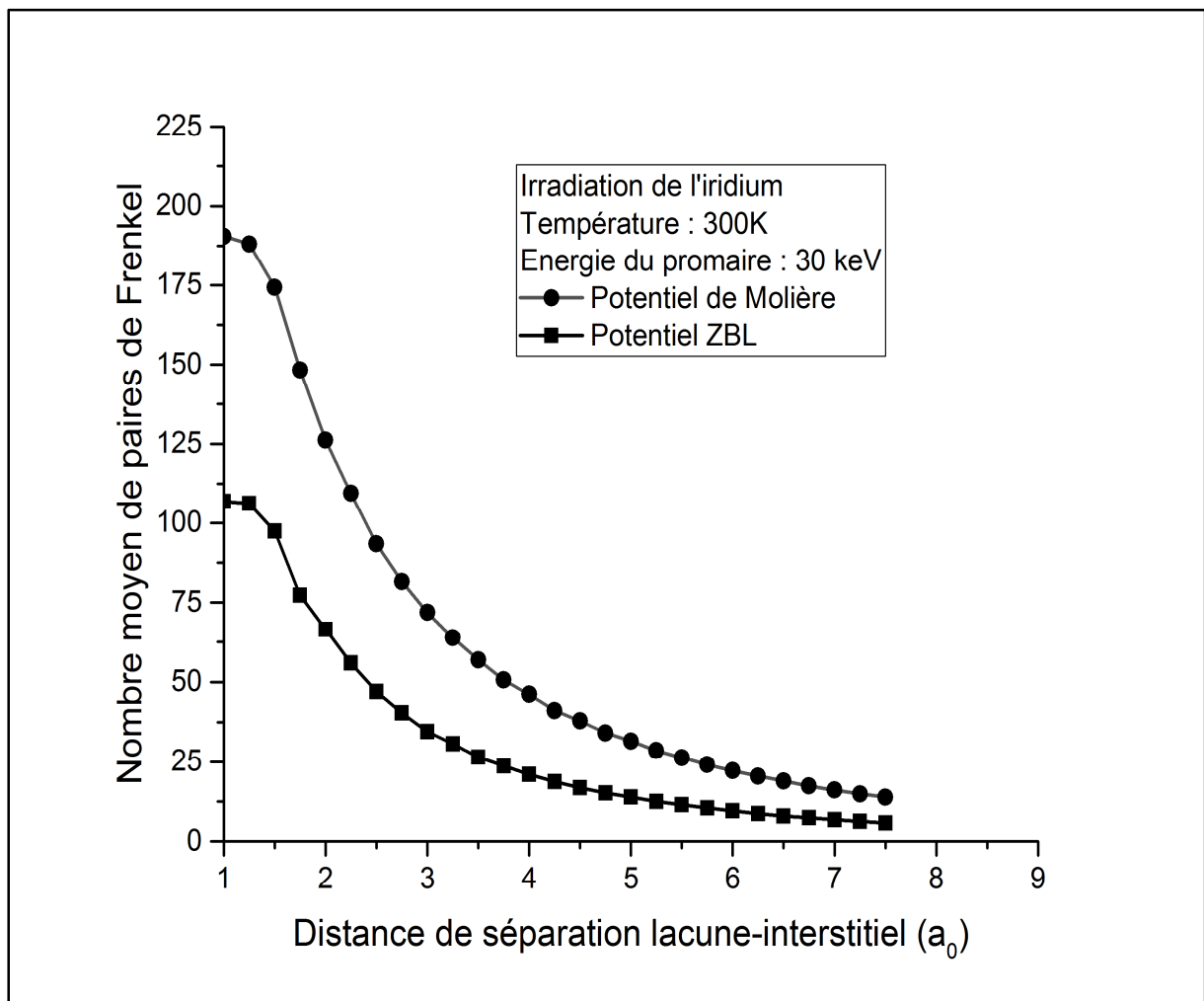


Figure 3.4. Nombre moyen de paires distantes de Frenkel dans l'iridium irradié.

La diffusion thermique des défauts ponctuels dans le matériau joue un rôle crucial dans le processus de guérison qui se produit dans la cascade. Les études menées sur les

matériaux irradiés montrent clairement que le nombre de paires de Frenkel permanentes est beaucoup plus faible que celui trouvé par la simulation basée sur la BCA. Cette dernière n'intègre pas la diffusion thermique des défauts dans son modèle. Pour pallier ce problème, on introduit dans Marlowe un volume d'instabilité [6 - 8]. On considère alors qu'une paire de Frenkel est stable si la distance de séparation lacune-interstitiel est supérieure au rayon de ce volume d'instabilité,  $r_v$ , appelé aussi rayon de recombinaison. Autrement, il y a recombinaison entre la lacune et l'interstitiel. La recombinaison ainsi définie est athermique et isotrope. Ainsi, le destin final d'une paire de Frenkel dépend de la distance de séparation entre ses membres. Il est à noter que le rayon de recombinaison dépend du potentiel d'interaction atomique utilisé [9].

Pour déterminer le rayon de recombinaison dans l'irradiation de l'iridium, nous procédons comme suit : nous évaluons, dans un premier temps, à partir de l'expression (2.38) le nombre de paires de Frenkel stables prédit par le modèle arc-dpa pour les énergies du primaire 10, 15, 20, 25 et 30 keV. Les paramètres de ce modèle pour l'irradiation de l'iridium sont l'énergie seuil de déplacement  $E_d = 58$  eV [10], et les coefficients  $b_{arc\,dpa} = -1$  et  $c_{arc\,dpa} = 0.5$  [10]. Pour chaque énergie du primaire, nous lançons Marlowe avec différentes valeurs de rayon de recombinaison et nous notons le nombre de paires de Frenkel stables. Les résultats des calculs pour les deux potentiels sont résumés dans les tableaux 3.2, 3.3 et les figures 3.5 et 3.6.

Tableau 3.2. Nombre de paires de Frenkel calculé pour le potentiel de Molière.

	Nombre moyen de paires de Frenkel			
	arc-dpa	Marlowe avec le potentiel de Molière		
Energie (keV)	$b_{\text{arc dpa}} = -1$ $c_{\text{arc dpa}} = 0.5,$ $E_d = 58 \text{ eV}$	$r_V = 2.00 a_0$	$r_V = 2.50 a_0$	$r_V = 3.00 a_0$
10	28	41	30	24
15	41	59	44	35
20	54	76	57	44
25	67	93	69	54
30	80	110	81	64

Tableau 3.3. Nombre de paires de Frenkel calculé pour le potentiel ZBL.

	Nombre moyen de paires de Frenkel			
	arc-dpa	Marlowe avec le potentiel ZBL		
Energie (keV)	$b_{\text{arc dpa}} = -1$ $c_{\text{arc dpa}} = 0.5,$ $E_d = 58 \text{ eV}$	$r_V = 1.40 a_0$	$r_V = 1.45 a_0$	$r_V = 1.50 a_0$
10	28	31	29	28
15	41	45	42	41
20	54	59	56	53
25	67	72	68	65
30	80	85	81	77

Nous constatons que pour le potentiel de Molière il y a concordance des résultats pour un rayon de recombinaison de  $2.50a_0$ , alors que pour le potentiel ZBL il y a concordance pour un rayon de recombinaison de  $1.45a_0$ .



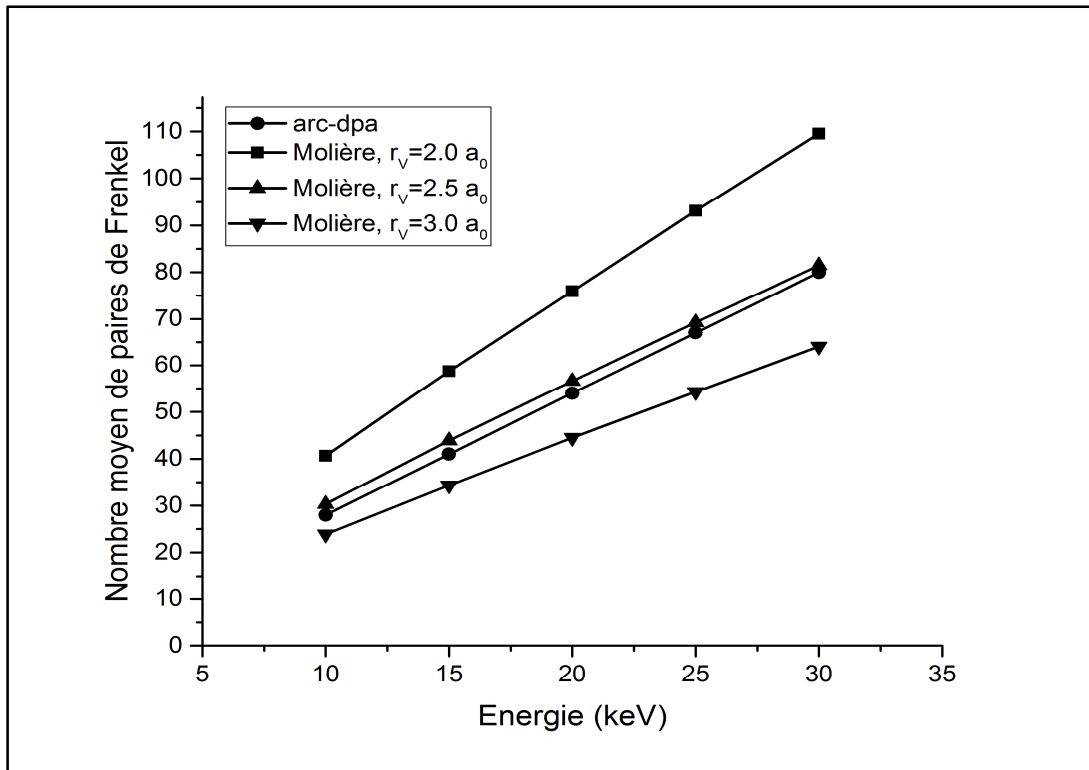


Figure 3.5. Ajustement du rayon de recombinaison pour le potentiel de Molière.

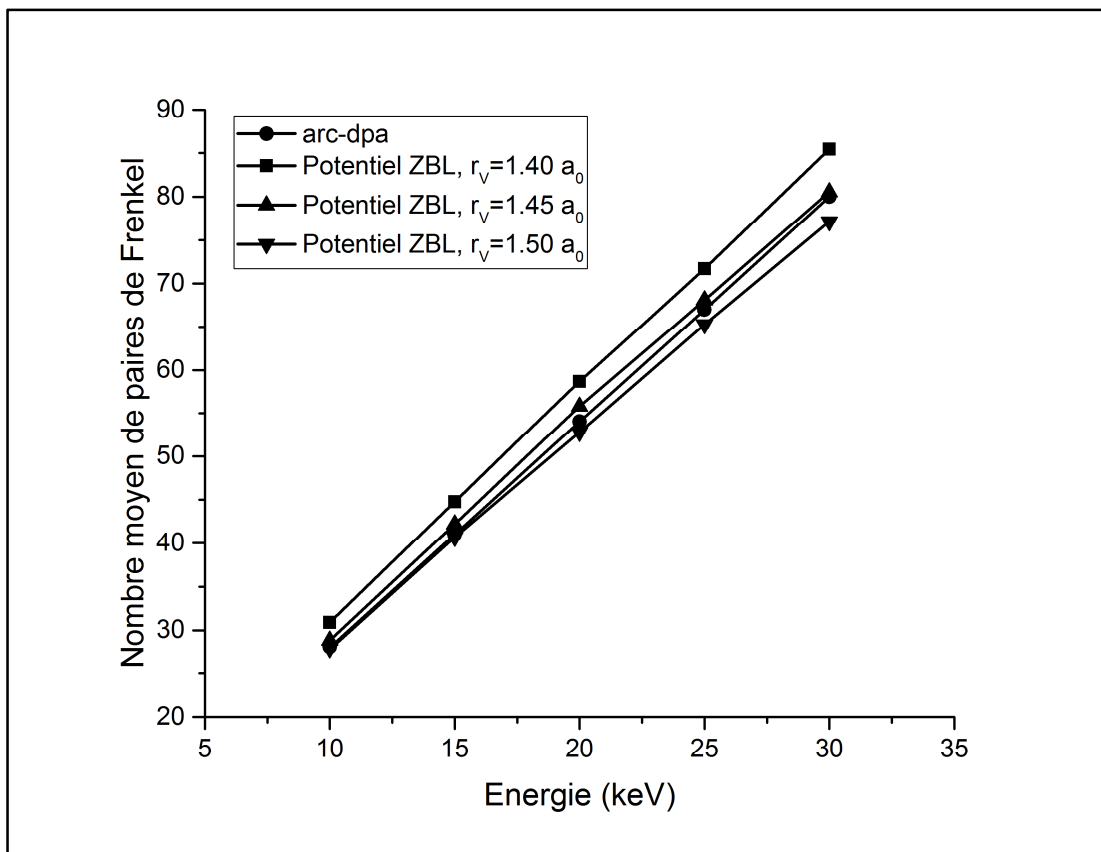


Figure 3.6. Ajustement du rayon de recombinaison pour le potentiel ZBL.

La figure 3.7 schématise la configuration finale c'est-à-dire après recombinaison d'une cascade dans l'iridium irradié avec un primaire de 30 keV. La comparaison de cette figure avec la figure 3.3 montre clairement qu'à l'état final, les défauts permanents sont beaucoup moins nombreux que les déplacements initiaux.

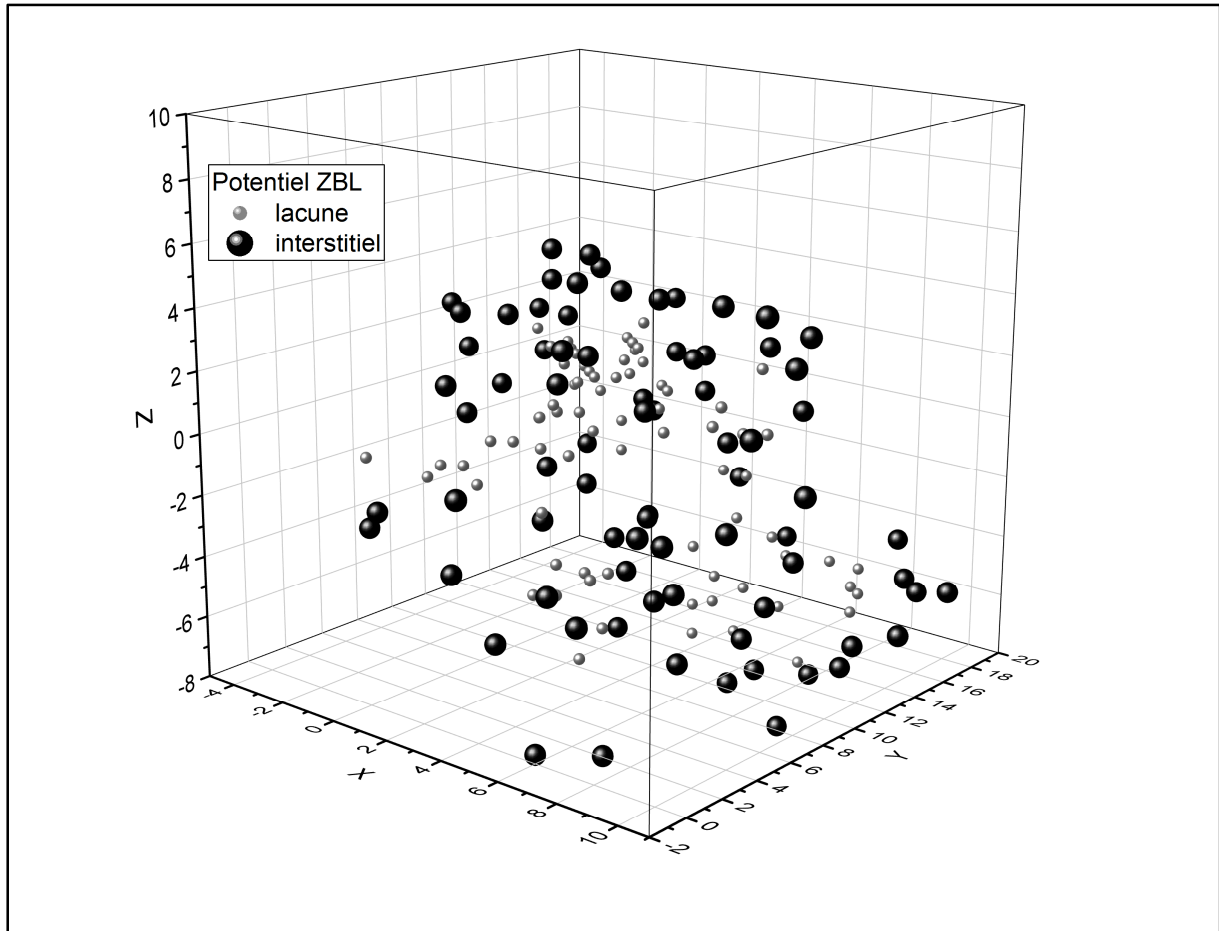


Figure 3.7. Cascade de déplacements de 30 keV dans l'iridium après recombinaison.

### **3.4 Atomes déplacés**

La figure 3.8 illustre le nombre d'atomes d'iridium déplacés dans des intervalles de temps réguliers de 10 fs pour les potentiels de Molière et ZBL. La cascade de déplacements est initiée par un primaire d'énergie cinétique de 30 keV. Cette énergie est dissipée dans la cascade par des collisions élastiques avec les atomes du réseau et des collisions inélastiques

traduisant l'excitation des électrons atomiques. Tout d'abord, le primaire déplace les atomes du réseau se trouvant le long de sa trajectoire. Les atomes secondaires déplacent à leur tour les atomes adjacents et ainsi de suite. Dans chaque déplacement atomique une énergie de 6.94 eV est consommée. On enregistre alors une augmentation du nombre d'atomes déplacés. Cette augmentation se maintiendra tant que les projectiles ont suffisamment d'énergie pour déloger les atomes du réseau. Le maximum est atteint entre 80 et 90 fs. La dissipation continue de l'énergie cinétique des atomes mobiles fait que l'énergie transmise aux atomes cibles diminue au fur du temps et le nombre d'atomes déplacés décroît jusqu'à ce qu'il n'y aura aucun déplacement. Les résultats de la simulation montrent que le nombre d'atomes déplacés dans le cas de l'irradiation de l'iridium n'est pas très sensible au potentiel utilisé.

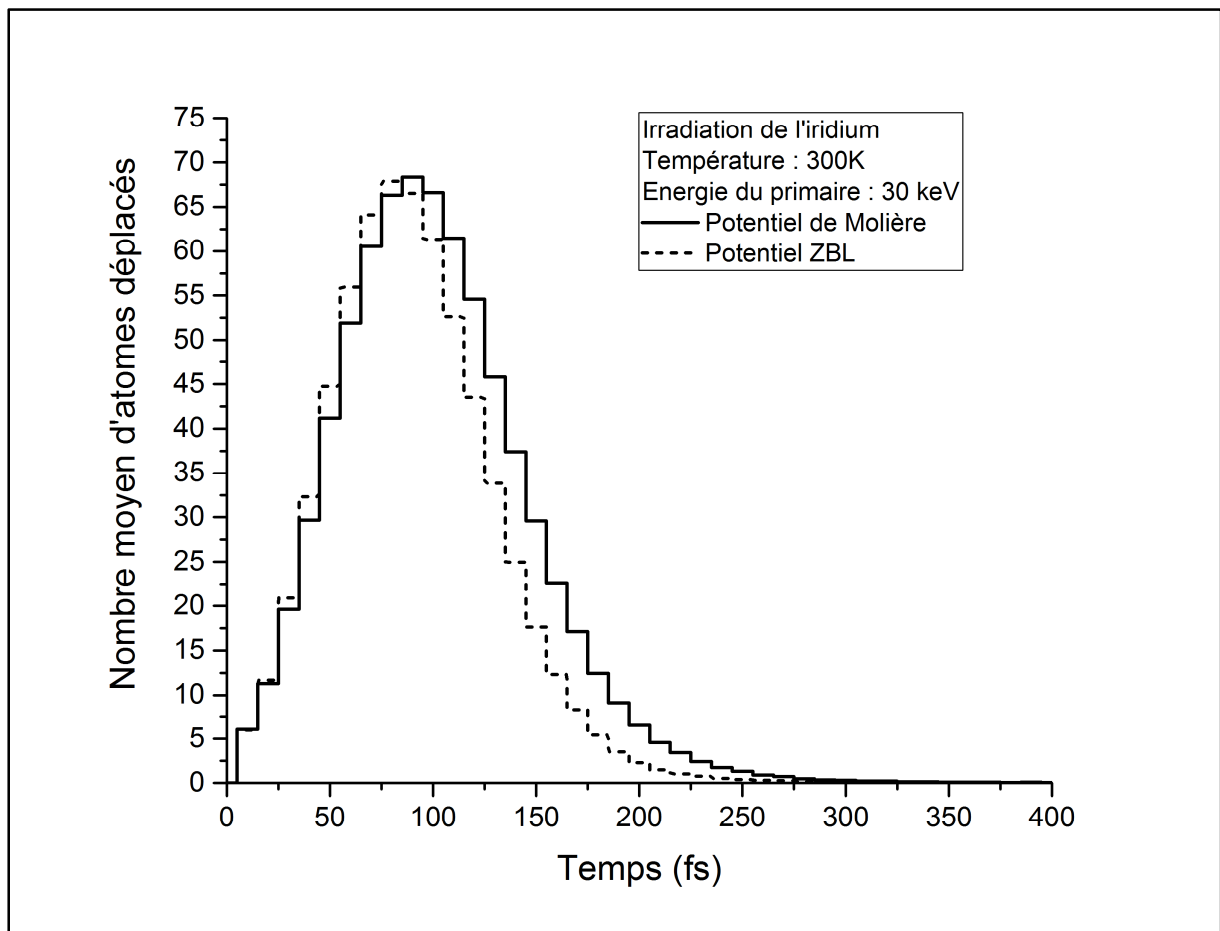


Figure 3.8. Histogramme d'atomes déplacés dans une cascade de 30 keV dans l'iridium.

Comme nous l'avons rapporté précédemment, ce n'est pas tous les atomes déplacés qui constituent des défauts permanents. Le tableau 3.4 montre le pourcentage des atomes du réseau éjectés qui restent en positions interstitiels après la recombinaison. Il n'y a que 6% des atomes déplacés qui constituent des défauts permanents dans le cas du potentiel de Molière et environ 8% dans le cas du potentiel ZBL.

Tableau 3.4. Taux de déplacements permanents dans l'iridium irradié.

Potentiel de Molière					
Energie du primaire (keV)	10	15	20	25	30
Nombre total d'atomes déplacés	474	704	929	1153	1375
Nombre de paires de Frenkel stables	30	44	57	70	82
Taux	6.3%	6.3%	6.1%	6.1%	6.0%
Potentiel ZBL					
Energie du primaire (keV)	10	15	20	25	30
Nombre total d'atomes déplacés	359	531	701	869	1036
Nombre de paires de Frenkel stables	29	42	55	68	81
Taux	8.1%	7.9%	7.8%	7.8%	7.8%

### 3.5 Distribution spatiale des défauts

La figure 3.9 donne une représentation visuelle de la distribution spatiale des lacunes et des interstitiels qui subsistent après recombinaison dans une cascade de 30 keV dans l'iridium pour les potentiels de Molière et de ZBL. Puisque les collisions atomiques ont un caractère aléatoire, deux cascades simulées avec les mêmes conditions initiales n'auront pas

la même configuration finale. Cependant toutes les cascades partagent une caractéristique commune comme l'indique les figures 3.9 et 3.10. Il y a une séparation manifeste entre les lacunes et les interstitiels. Les lacunes occupent majoritairement le cœur de la cascade, alors que les interstitiels peuplent la périphérie de la cascade. Cette disposition des défauts ponctuels dans les cascades de déplacements confirme l'image prédite par Seeger [11] et confirmée expérimentalement par microscopie ionique [12].

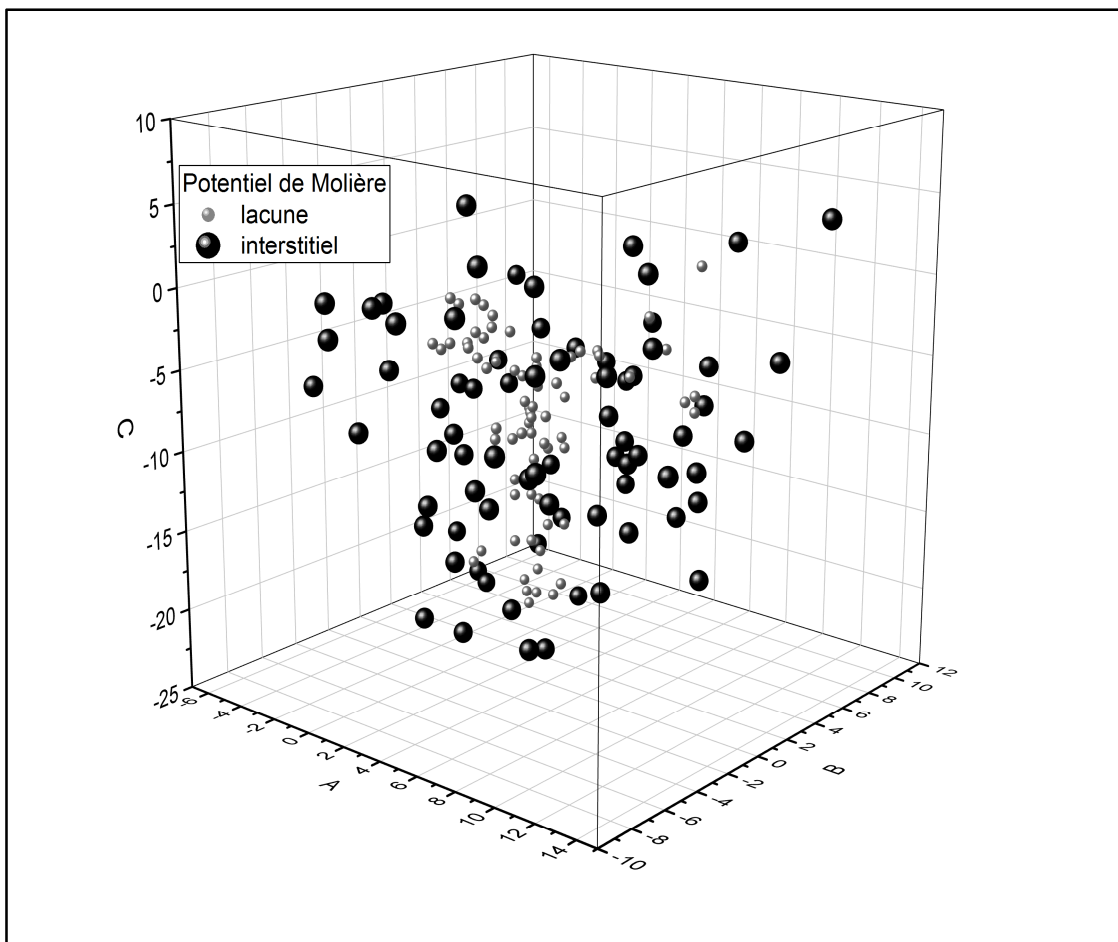


Figure 3.9. Distribution spatiale des défauts permanents dans une cascade de 30 keV dans l'iridium avec le potentiel de Molière.

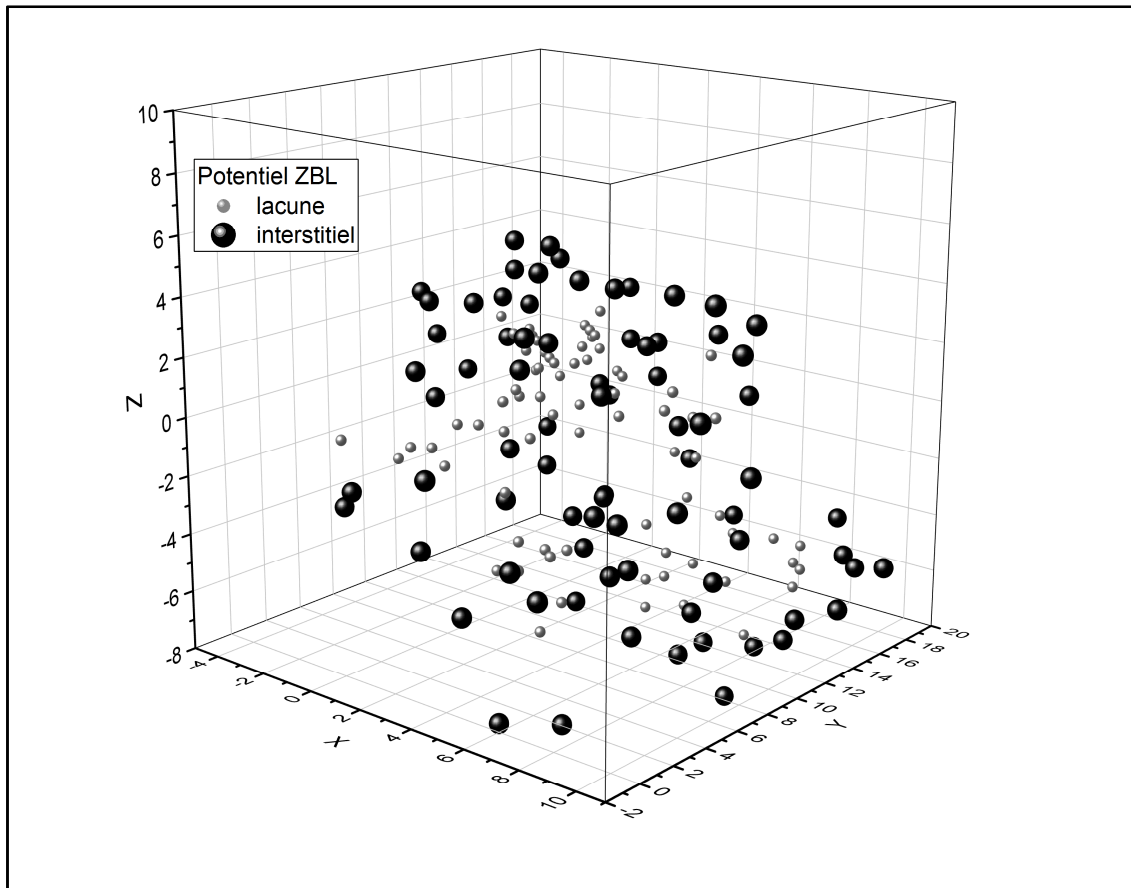


Figure 3.10. Distribution spatiale des défauts permanents dans une cascade de 30 keV dans l'iridium avec le potentiel ZBL.

### 3.6 Volume de la cascade

Il est intéressant dans l'étude des dégâts induits par irradiation d'estimer le volume de la zone qui a subi des dommages. Cette zone formée de lacunes et d'interstitiels n'a pas, en général, une forme géométrique régulière. Ce qui rend l'estimation du volume une tâche ardue d'autant plus que le caractère aléatoire des collisions atomiques fait que la morphologie d'une cascade change d'une cascade à une autre. Pour mener à bien cette étude, nous simulons plusieurs cascades de déplacements, nous évaluons le volume de chaque cascade puis nous faisons une distribution des volumes pour tirer des informations sur la région endommagée. Plusieurs méthodes sont exposées dans la littérature pour estimer le volume d'une cascade, mais la méthode d'analyse en composantes principales (ACP) est la plus commode [13, 14].

Elle consiste à substituer à la cascade un ellipsoïde défini par les longueurs de ses trois axes principaux ( $a$ ,  $b$ ,  $c$ ) (figure 3.11). Le volume de la cascade est alors approché par le volume de l'ellipsoïde ( $V=4\pi abc/3$ ). En appliquant cette technique sur chacune des 1000 cascades de déplacements, nous serons en mesure d'établir une distribution des volumes.

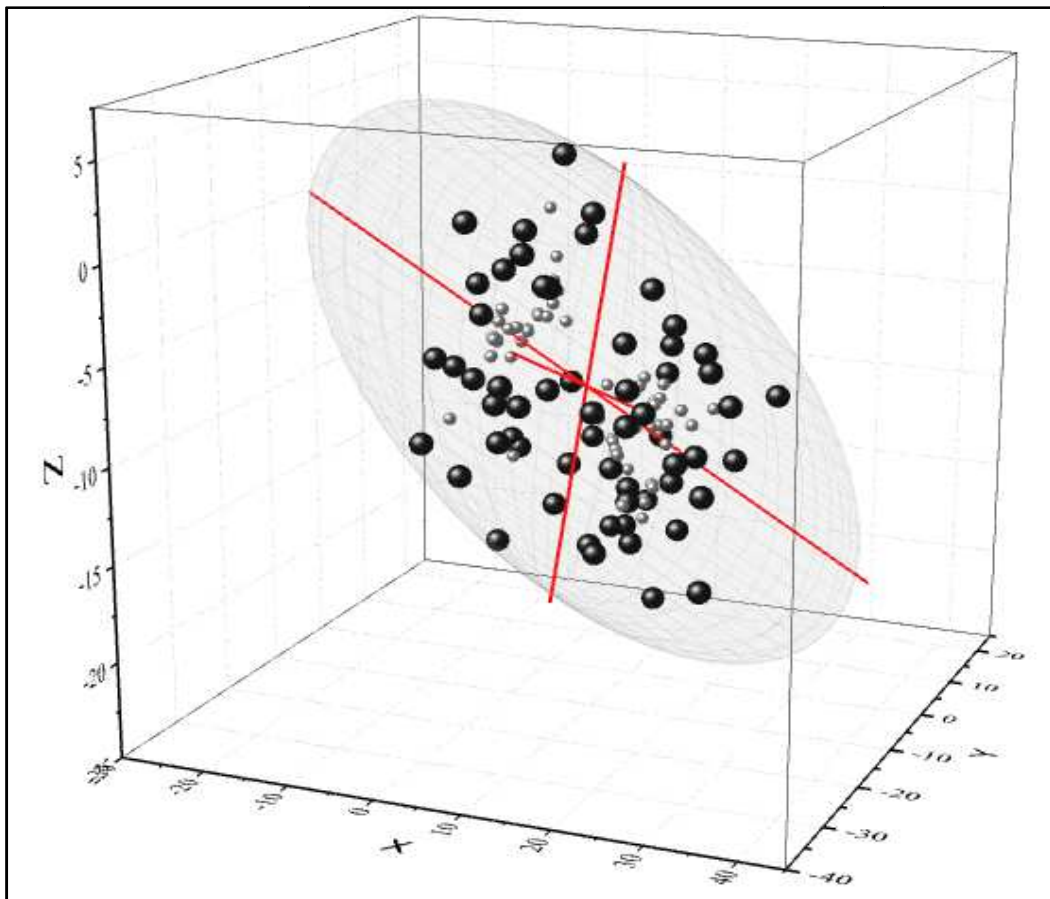


Figure 3.11. Représentation de la méthode d'analyse en composantes principales.

La figure 3.12 montre les distributions de volumes obtenues pour des primaires de 30 keV pour les potentiels de Molière et ZBL. Nous constatons une dépendance des distributions aux potentiels interatomiques utilisés. Un modèle avec le potentiel de Molière favorise la formation de cascades plus volumineuses qu'un modèle avec le potentiel ZBL (voir tableau 3.5). Les deux distributions sont asymétriques avec des queues très étirées vers les volumes les plus élevés ce qui témoigne d'une grande variabilité.

Tableau 3.5. Certaines caractéristiques des distributions des volumes dans l'iridium irradié.

	Potentiel de Molière	Potentiel ZBL
Volume minimum ( $a_0^3$ )	166.1568	84.3502
Volume moyen ( $a_0^3$ )	346.5195	204.1231
Volume maximum ( $a_0^3$ )	1538.0809	901.7209
Classe modale ( $a_0^3$ )	250 - 300	150 - 200

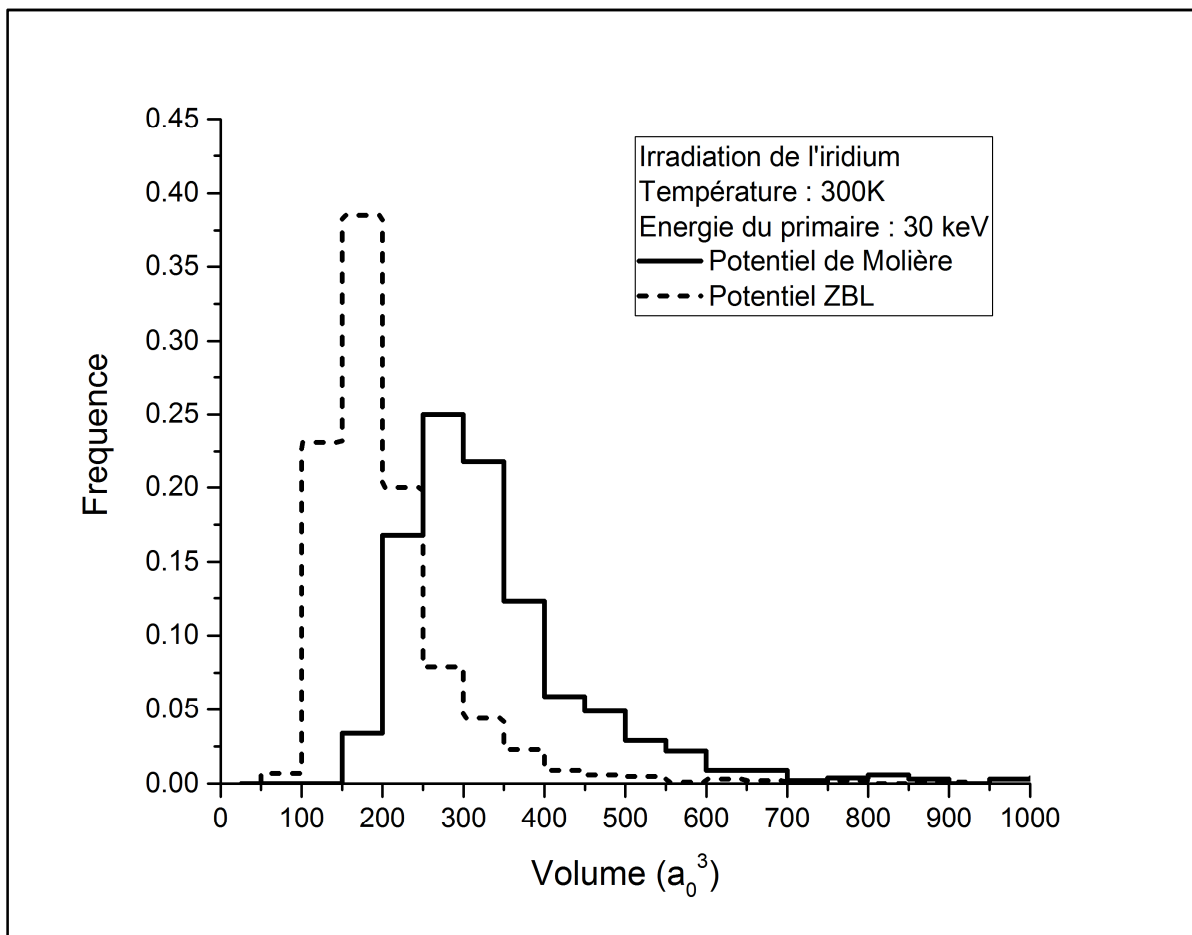


Figure 3.12. Distributions de volumes dans l'irradiation de l'iridium par un primaire de 30 keV.



---

## Références bibliographiques

---

- [1] M. E. Wieser, T. B. Coplen, *Pure and Applied Chemistry*, **83**, 359(2011).  
doi:10.1351/PAC-REP-10-09-14
- [2] J. W. Arblaster, *Platinum Metals Review*, **51**, 130 (2007).  
doi:10.1595/147106707X213830
- [3] H. P. Singh, *Acta Crystallogr*, **24A**, 469 (1968).
- [4] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 8<sup>th</sup> edition, John Willey & Sons, Inc, 2005.
- [5] C.Y. Ho, R.W. Powell, P.E. Liley, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **3**, I-10 (1974).
- [6] A. Scholtz, C. Lehmann, *Phys. Rev.* **B6**, 813 (1972).
- [7] G. Vizkelently, S.M. Foiles, *Nucl. Instrum. Methods*, **B 371**, 111 (2015).
- [8] M. Hou, C.J. Ortiz, C.S. Becquart, C. Domain, U. Sarkar, A. De Backer, *J. Nucl. Mater.* **403**, 89 (2010).
- [9] A. DJAAFRI, *Etude des dommages créés dans le tantale (Ta) et les composés TaC et Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> par l'approximation des collisions binaires (BCA)*, Thèse de Doctorat, Université Djillali LIABES de Sidi-Bel-Abbes, Algérie, 2018.
- [10] A.Y. Konobeyev, U. Fischer, Y. A. Korovin, S. P. Simakov, *Nuclear Energy and Technology*, **3**, 169 (2017).
- [11] A. Seeger, Proc. 2nd. U.N. Conf on Peaceful Uses of Atomic Energy, IAEA, Geneva, Vol **6**, p. 250, 1958.
- [12] L.A. Beavan, R.M. Scanlan, D.N. Seidman, *Acta Met.* **19**, 1339 (1971).
- [13] W. Eckstein, *Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1991.
- [14] M. Hou, *Nucl. Instrum. Methods*, **182-183**, 153 (1981).

---

## Conclusion générale

---

L'Iridium est un métal de transition rare et précieux doté de propriétés physiques et chimiques intéressantes qui trouvent des applications dans de nombreux domaines. Dans cette étude, nous avons simulé l'irradiation de ce matériau afin de connaître sa réponse lorsqu'il est utilisé dans un milieu de radiation intense. Nous nous sommes intéressés particulièrement à la production des défauts ponctuels, leur distribution spatiale et le volume de la région endommagée par l'irradiation. Pour atteindre nos objectifs, nous avons simulé l'irradiation de ce matériau en générant des cascades de déplacements moyennant le code Marlowe qui est fondé sur le modèle de l'approximation des collisions binaires. Chaque cascade est initiée par un primaire lancé depuis le site du réseau avec une énergie cinétique qui peut atteindre jusqu'à 30 keV. Les collisions atomiques au sein des cascades sont modélisées par les potentiels interatomiques de Ziegler-Biersack-Littmark et le potentiel de Molière. La perte d'énergie inélastique est évaluée par le modèle Owen-Robinson. Nous avons simulé pour chaque énergie 1000 cascades afin d'accumuler une quantité importante de statistiques nécessaires à une étude adéquate des caractéristiques des cascades.

Après avoir calculé le nombre de défauts de Frenkel permanents par la méthode arc-dpa, nous avons ajusté le rayon de recombinaison dans Marlowe afin d'avoir le même nombre de défauts. Les résultats des simulations pour des cascades de 30 keV montrent que la majorité des atomes déplacés du réseau ne survivent pas à la recombinaison. Une fraction ne dépassant pas 10% de ces atomes constituent des défauts permanents. Les interstitiels sont poussés vers l'extérieur de la cascade formant un genre de couronne qui entoure une région centrale riche en lacunes. Les distributions de volumes sont caractérisées par une asymétrie qui s'étend vers les plus grands volumes. Les cascades prédites avec le potentiel de Molière sont un peu plus volumineuses que les celles prédites avec le potentiel ZBL.

Au terme de cette étude, nous pensons avoir contribué de manière conséquente à l'étude des défauts ponctuels produits dans l'Iridium irradié. L'étude des défauts étendus et de leurs effets

sur les propriétés physiques et mécaniques pourra faire l'objet de développements futurs pour améliorer davantage notre compréhension du vieillissement de ce matériau.