

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

REGAGBA Mohamed Oualid

Sur le thème

**Création des défauts de Frenkel par collisions
atomiques dans le platine irradié**

Soutenu le 22/06/2022 devant le jury composé de :

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

Année Universitaire 2021 - 2022

DEDICACE

*Je dédie ce travail à mes chers parents ; à ceux qui
sont ma raison d'être et qui ont offert toute leur vie pour
moi par leurs sacrifices ; pour ma réussite dans mes études*

«que le bon dieu les protège »

À mes chers frères

À ma chère sœur.

À tous mes amis ainsi que ma grande famille « Regagba ».

À toute la promotion « 2021-2022 »

Mohamed Oualid REGAGBA



REMERCIEMENTS

À l'échéance de ce projet de fin d'études, nous devons en premier lieu l'énorme remerciement à notre dieu miséricorde qui nous a permis d'acquérir un tel savoir.

Tout d'abord, ce travail ne serait pas aussi riche et n'aurait pas pu voir le jour sans l'aide et l'encadrement du Docteur Abdelkader DJAAFRI. Je le remercie, ainsi que mon co-encadrant le Docteur Tayeb DJAAFRI pour leur aide, assistance et conseils.

J'adresse aussi mes sincères remerciements à monsieur le président de jury et aux membres de jury d'avoir porté intérêt à mon travail et accepté de le juger.

Enfin, à tous ce qui ont contribué de près ou de loin à bien simplifier la réalisation de ce projet.

Résumés

إنتاج عيوب فرنكل عن طريق الإصطدامات الذرية في البلاتين المعرض للإشعاع

الملخص

من أجل دراسة تكوين أزواج فرنكل في البلاتين المعرض للإشعاع ، قمنا بمحاكاة شلالات الإزاحة باستخدام كود مارلو الذي يعتمد على نموذج تقريب التصادم الشنائي. يتم بدأ سلسلة التصادمات الذرية بإرسال ذرة من موقعها في الشبكة بالطاقات الحركية 10 ، 15 ، 20 ، 25 و 30 كيلو إلكترون فولت. لكل واحدة من هذه الطاقات قمنا بألف محاكاة. يتم نمذجة التفاعلات بين ذرات البلاتين المتصادمة بواسطة كيون الأزواج زيجلر-بيرسك-ليتارك. يتم تقييم الطاقة المفقودة في الاصطدامات غير المرنة التي تعكس إثارة وتأيين إلكترونات المادة من تقريب أوين-روبنسون. نتيجة للتصادم الذري ، يتم دفع العديد من الذرات خارج مواقعها الشبكية ، مما يؤدي إلى حدوث عيوب فرنكل. سمحت لنا نتائج المحاكاة بتحديد عدد العيوب الناتجة وتوزيعها الفضائي وكذلك الحجم الأكثر احتمالاً للمنطقة المتضررة من الإشعاع.

الكلمات المفتاحية

البلاتين، عيوب فرنكل، إشعاع ، تقريب التصادم الشنائي

Creation of Frenkel defects by atomic collisions in irradiated platinum

Abstract

In order to study the creation of Frenkel pairs in irradiated platinum, we have simulated displacement cascades using the Marlowe code based on the binary collision approximation. The cascades are initiated by primaries of kinetic energy 10, 15, 20, 25 and 30 keV. For each of these energies, we simulated 1000 cascades. Interactions between colliding platinum atoms are modeled by the interatomic potential of Ziegler-Bersk-Litmark. The energy lost in the inelastic collisions reflecting the excitation and the ionization of the electrons of the material is evaluated from the Owen-Robinson approximation. As a result of atomic collisions, many atoms are pushed out of their lattice positions, creating Frenkel defects. The results of the simulation allowed us to determine the number of the produced defects, their spatial distribution as well as the most probable volume of the zone damaged by the irradiation.

Keywords:

Platinum, Frenkel defects, irradiation, binary collision approximation

Création des défauts de Frenkel par collisions atomiques dans le platine irradié

Résumé

Dans le but d'étudier la création des paires de Frenkel dans le platine irradié, nous avons simulé des cascades de déplacements en utilisant le code Marlowe qui est basé sur l'approximation des collisions binaires. Les cascades sont initiées par des primaires d'énergie cinétique 10, 15, 20, 25 et 30 keV. Pour chacune de ces énergies nous avons simulé 1000 cascades. Les interactions entre les atomes du platine en collision sont modélisées par le potentiel interatomique de paires de Ziegler-Bersk-Litmark. L'énergie perdue dans les collisions inélastiques traduisant l'excitation et l'ionisation des électrons du matériau est évaluée de l'approximation d'Owen-Robinson. Suite aux collisions atomiques de nombreux atomes sont évincés de leurs positions du réseau créant ainsi des défauts de Frenkel. Les résultats de la simulation nous ont permis de déterminer le nombre de défauts produits, leur distribution spatiale ainsi que le volume le plus probable de la zone endommagée par l'irradiation.

Mots clés

Platine, défauts de Frenkel, irradiation, approximation des collisions binaires

Liste des symboles et des notations utilisés

Liste des acronymes

| | |
|---------|---|
| Pt | Platine |
| BCA | Binary Collision Approximation |
| MD | Molecular Dynamics |
| KMC | Kinetic Monte Carlo |
| PKA | Primary Knock-on Atom |
| cfc | Cubique à faces centrées |
| L | Système du laboratoire |
| CM | Centre de Masse |
| ZBL | Ziegler-Biersack-Littmark |
| LSS | Lindhard-Scharff -Schiott |
| RCS | Remplacement Collision Sequences |
| KP | Kinchin-Pease |
| NRT | Norgett-Robinson-Torrens |
| dpa | Displacements per Atom |
| arc-dpa | Athermal Recombination-Corrected Displacement per Atom |
| ACP | Analyse en Composantes Principales |

Liste des notations et des symboles

| Symbole | Signification | Symbole | Signification |
|--------------|------------------------------------|--------------|--|
| m_e | Masse au repos de l'électron | θ_1 | Angle de diffusion du projectile après le choc |
| e | Charge élémentaire | θ_2 | Angle de diffusion de l'atome cible après le choc |
| N_a | Nombre d'avogadro | ϑ | Angle de diffusion dans le système du centre de masse |
| h | Constante de Planck | r | Distance interatomique |
| \hbar | Constante de Planck réduite | E_0 | Energie initiale du projectile |
| a_B | Rayon de Bohr | E_1 | Energie du projectile après le choc |
| m_1 | Masse du projectile | E_2 | Energie de l'atome cible après le choc |
| m_2 | Masse de l'atome cible | v_B | Vitesse de Bohr |
| Z_1 | Numéro atomique du projectile | E_{dam} | Energie disponible pour le déplacement atomique |
| Z_2 | Numéro atomique de l'atome cible | N_{NRT} | Nombre de paires de Frenkel dans le modèle NRT |
| uma | Unite de masse atomique | v_0 | Vitesse initiale du projectile |
| C | Vitesse de la lumière dans le vide | v_1 | Vitesse du projectile après le choc |
| E_d | Energie seuil de déplacement | v_2 | Vitesse de l'atome cible après le choc |
| E_c | Energie de coupure | A_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 | η | Coefficient d'efficacité du déplacement |
| a_0 | paramètre du réseau | β | 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 |
| ϵ_0 | Permittivité du vide | $(-dE/dx)_e$ | Pouvoir d'arrêt électronique du milieu |
| T_D | Température de Debye | ρ | Densité du milieu cible |
| σ | Section efficace de diffusion | A | Rapport entre la masse de la cible et la masse du projectile |

Tables des matières

| | |
|----------------------------------|------|
| Liste des figures..... | xiii |
| Liste des tableaux..... | xv |
| Introduction générale..... | 1 |
| Références bibliographiques..... | 6 |

Chapitre1 – Défauts cristallins

| | |
|--|----|
| 1.1 Introduction..... | 12 |
| 1.2 Défauts ponctuels..... | 13 |
| 1.2.1 Lacunes..... | 13 |
| 1.2.2 Auto-interstitiels..... | 14 |
| 1.2.3 Défauts extrinsèques..... | 15 |
| 1.2.4 Défauts de Schottky et de Frenkel..... | 17 |
| 1.3 Défauts linéaires..... | 19 |
| 1.3.1 Dislocation coin..... | 20 |
| 1.3.2 Dislocation vis..... | 21 |
| 1.3.3 Dislocation mixte..... | 21 |
| 1.4 Défauts plans..... | 22 |
| 1.4.1 Joints de grains et joints de phases..... | 22 |
| 1.4.2 Joints de macle..... | 23 |
| 1.4.3 Défauts d'empilement..... | 24 |
| 1.4.4 Parois d'antiphase..... | 24 |
| 1.5 Défauts volumiques..... | 25 |
| 1.5.1 Pores..... | 25 |
| 1.5.2 Inclusions..... | 26 |
| 1.5.3 Précipités..... | 26 |
| 1.6 Effets d'irradiation dans les matériaux..... | 27 |

| | |
|--|----|
| Références bibliographiques..... | 28 |
| Chapitre 2 – Modèle de simulation | |
| 2.1 Introduction..... | 33 |
| 2.2 Approximation des collisions binaires..... | 33 |
| 2.2.1 Description de la cascade de déplacements..... | 34 |
| 2.2.2 Canalisation..... | 36 |
| 2.2.3 Focalisation..... | 36 |
| 2.2.4 Séquences de remplacements..... | 37 |
| 2.2.5 Cinématique d’une collision binaire..... | 37 |
| 2.2.6 Energie transférée à l’atome cible..... | 40 |
| 2.2.7 Angle de diffusion..... | 40 |
| 2.3 Potentiels d’interactions atomiques..... | 42 |
| 2.3.1 Potentiel de Molière..... | 42 |
| 2.3.2 Potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark..... | 43 |
| 2.4 Perte d’énergie | 44 |
| 2.4.1 Pertes d’énergie inélastiques..... | 45 |
| 2.4.2 Pertes d’énergie élastiques..... | 47 |
| 2.4.3 Perte d’énergie totale..... | 48 |
| 2.5 Nombre de paires de Frenkel..... | 49 |
| 2.5.1 Modèle de Kinchin-Pease..... | 50 |
| 2.5.2 Modèle de Norgett-Robinson-Torrens..... | 51 |
| 2.5.3 Modèle arc-dpa..... | 52 |
| Références bibliographiques..... | 54 |
| Chapitre 3 – Résultats et discussion | |
| 3.1 Introduction..... | 61 |

| | |
|--|----|
| 3.2 Paramètres de simulation..... | 62 |
| 3.3 Détermination du rayon de recombinaison..... | 65 |
| 3.4 Atomes de réseau déplacés..... | 73 |
| 3.5 Distribution spatiale des défauts..... | 75 |
| 3.6 Volume de la zone endommagée..... | 76 |
| Références bibliographiques..... | 79 |
| Conclusion générale | 82 |
| Appendice..... | 84 |

Liste des figures

| Chapitre 1 | | |
|-------------------|--|----|
| Figure 1.1 | Représentation schématique d'un cristal..... | 12 |
| Figure 1.2 | Schéma d'une lacune dans un cristal | 13 |
| Figure 1.3 | Diffusion d'une lacune par déplacements successifs d'atomes | 14 |
| Figure 1.4 | Schéma de défaut auto-interstitiel..... | 15 |
| Figure 1.5 | Défaut extrinsèque substitutionnel..... | 16 |
| Figure 1.6 | Positions interstitielles dans la structure c.f.c. (a) site tétraédrique. (b) site octaédrique | 17 |
| Figure 1.7 | Positions interstitielles dans la structure c.c. (a) site octaédrique. (b) site tétraédrique | 17 |
| Figure 1.8 | Défaut de Schottky..... | 18 |
| Figure 1.9 | Défaut de Frenkel..... | 19 |
| Figure 1.10 | Représentation schématique d'une dislocation coin..... | 20 |
| Figure 1.11 | Représentation schématique d'une dislocation vis..... | 21 |
| Figure 1.12 | Représentation schématique d'une dislocation mixte..... | 22 |
| Figure 1.13 | Représentation schématique d'un joint de grains et d'un joint de phases. | 23 |
| Figure 1.14 | Schéma d'un joint de macle..... | 24 |
| Figure 1.15 | Défaut d'empilement..... | 24 |
| Figure 1.16 | Schéma d'un cristal traversé par une paroi d'antiphase..... | 25 |
| Figure 1.17 | Formation de pores dans un matériau..... | 26 |
| Chapitre 2 | | |
| Figure 2.1 | Représentation d'une cascade de déplacements..... | 35 |
| Figure 2.2 | Schéma d'une séquence de focalisation..... | 37 |
| Figure 2.3 | Schéma d'une séquence de remplacements..... | 37 |
| Figure 2.4 | Schéma d'une collision binaire dans le système du laboratoire..... | 38 |

| | | |
|------------|--|----|
| Figure 2.5 | Angle de diffusion ϑ dans le référentiel du centre de masse | 41 |
| Figure 2.6 | Trajectoires de deux atomes en collision dans le référentiel du laboratoire | 42 |
| Figure 2.7 | Représentation schématique du pouvoir d'arrêt des ions dans la matière. | 49 |
| Figure 2.8 | Nombre de déplacements en fonction de l'énergie du primaire selon le modèle de Kinchin-Pease | 51 |

Chapitre 3

| | | |
|-------------|---|----|
| Figure 3.1 | Maille élémentaire du platine..... | 62 |
| Figure 3.2 | Potentiel d'interaction atomique ZBL entre deux atomes de platine..... | 63 |
| Figure 3.3 | Lacunes et interstitiels dans le platine irradié avant recombinaison..... | 66 |
| Figure 3.4 | Nombre moyen de paires de Frenkel distantes dans le platine irradié.... | 67 |
| Figure 3.5 | Ajustement du rayon de recombinaison | 71 |
| Figure 3.6 | Cascades de déplacements dans le platine irradié après recombinaison.. | 72 |
| Figure 3.7 | Histogrammes d'atomes déplacés dans le platine irradié..... | 74 |
| Figure 3.8 | Distribution spatiale des défauts permanents dans une cascade de 30 keV dans le platine | 76 |
| Figure 3.9 | Représentation de la méthode d'analyse en composantes principales... | 77 |
| Figure 3.10 | Distributions de volumes dans le platine irradié..... | 78 |

Liste des tableaux

Chapitre 2

| | | |
|-------------|---|----|
| Tableau 2.1 | Valeurs des paramètres $b_{arc\ dpa}$, $c_{arc\ dpa}$ et E_d | 53 |
|-------------|---|----|

Chapitre 3

| | | |
|-------------|---|----|
| Tableau 3.1 | Certaines propriétés du platine..... | 64 |
| Tableau 3.2 | Nombre de paires de Frenkel obtenu de différents modèles..... | 68 |
| Tableau 3.3 | Nombre moyen de paires de Frenkel calculé par arc-dpa et Marlowe... | 70 |
| Tableau 3.4 | Quelques propriétés des cascades dans le platine irradié..... | 75 |
| Tableau 3.5 | Certaines caractéristiques des distributions de volumes dans le platine irradié | 78 |

Introduction générale

Le présent travail portant sur la formation des dégâts dans le platine suite à son irradiation s'insère dans l'étude systématique de l'irradiation des éléments de transition tels que le tantale, le tungstène, le hafnium et l'iridium [1-6]. Les propriétés physiques et chimiques très intéressantes de ces métaux font d'eux des matériaux de choix pour plusieurs applications dans des domaines très variés. La compréhension des mécanismes de vieillissement de ces matériaux lorsqu'ils sont utilisés dans un environnement de rayonnement intense 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. Le passage des particules énergétiques dans milieu provoque le déplacement des atomes et la formation par cet effet de défauts ponctuels notamment des lacunes et des interstitiels. Sous l'agitation thermique, ces défauts peuvent se diffuser et s'agglomérer pour former des amas qui se transforment à des dislocations et des cavités. Ces changements dans la structure des matériaux, qui commencent à l'échelle atomique et évoluent à l'échelle macroscopique, influent à long terme sur les propriétés physico-chimiques et mécaniques des matériaux notamment les conductivités électrique et thermique, la résistance à la corrosion, la fragilisation et le gonflement [7-12].

Le platine (Pt) est un élément chimique de numéro atomique 78 [13] et de masse atomique 195.084 uma [14]. C'est un métal de transition, noble avec l'argent et l'or. Il est dur, malléable, ductile et rare, et est donc très cher. Il est de couleur gris-blanc brillante. Il est lourd de densité avoisinant 21.5 g/cm^3 (à 20 °C) [15, 16]. Il a un point de fusion élevé dont la valeur est 2041.3 K [17]. Il est un bon conducteur de la chaleur et de l'électricité. Son coefficient de dilatation thermique est proche de celui du verre. Il est souvent associé à certains minerais de cuivre ou de nickel. Le platine réagit avec de nombreuses molécules, ce qui en fait de lui un catalyseur particulièrement recherché. À température ambiante, il résiste à de nombreuses agressions chimiques. Il ne s'oxyde pas à l'air libre, et n'est corrodé que par le

cyanure, les halogènes, le soufre et les alcalins caustiques. Il est insoluble dans l'acide chlorhydrique et dans l'acide nitrique [18].

Les propriétés physico-chimiques intéressantes du platine font de lui un matériau de choix pour des applications techniques que décoratives. Ainsi, dans le secteur médical, et en raison de sa qualité de matériau hypoallergénique, ce métal recouvre les cathéters et autres instruments chirurgicaux, et il est, aussi, présent dans certaines prothèses. L'alliage platine-osmium est utilisé dans la fabrication des stimulateurs et les valvules artificielles cardiaques. On trouve, également, du platine dans les médicaments antinéoplasiques, qui aident à stopper la croissance des tumeurs en bloquant l'ADN des cellules cancéreuses.

Le platine est employé comme revêtement de surface. Il recouvre le nez des missiles, les injecteurs des moteurs à réaction, dans les creusets et dans les fourneaux électriques et des systèmes qui doivent pouvoir fonctionner durablement à haute température [18].

À cause de ses propriétés catalytiques, il est utilisé dans les industries chimique, pétrochimique et automobile :

-il est présent dans la fabrication d'anodes, notamment les anodes dites insolubles, qui offrent une large échelle de densités de courant, une grande résistance à la corrosion et une durée de vie élevée. On le trouve dans les thermomètres et dans les thermocouples.

-des catalyseurs au platine sont utilisés dans le raffinage et la transformation du pétrole, mais aussi dans d'autres processus de la production d'essence et de composés aromatiques dans l'industrie pétrochimique.

-il entre dans la fabrication des pots d'échappement et les moteurs à combustion interne des véhicules.

Associé à l'iridium, le platine a été retenu pour l'élaboration du premier kilogramme étalon et du premier mètre étalon conservés au bureau international des poids et mesures (Sèvres,

France). En fin, sa malléabilité et sa grande résistance à la corrosion et à la décoloration le rend populaire dans la confection des bijoux.

Trois modèles sont utilisés pour étudier les interactions entre des particules énergétiques et la matière ; l'approximation des collisions binaires (BCA pour *Binary Collision Approximation*), la dynamique moléculaire (MD pour *Molecular Dynamics*) et la méthode de Monté-Carlo cinétique (KMC pour *Kinetic Monte Carlo*). Pour l'étude de la formation des défauts de Frenkel dans le platine irradié nous avons adopté la méthode de l'approximation des collisions binaires. Vu le caractère aléatoire des collisions atomiques, une accumulation massives de statistiques devient nécessaire pour que l'étude soit fiable [19]. La BCA satisfait ce besoin d'autant plus que le temps de simulation se basant sur cette méthode est très court. La BCA est largement utilisé dans l'étude des phénomènes liés à l'irradiation des matériaux notamment la pulvérisation, l'implantation ionique, la canalisation, la rétrodiffusion et la production de défauts [20-25].

L'objectif du présent travail est l'étude, par simulation, la création des défauts de Frenkel dans le platine irradié. Le programme Marlowe basé sur la BCA est utilisé pour simuler des cascades de déplacements dans le platine suite à son irradiation interne [26]. À partir de données décrivant la particule irradiante et le matériau irradié, le code Marlowe permet de calculer différentes grandeurs physiques caractérisant les cascades de déplacements [27-32]. Nous examinons, en particulier, la génération de paires de Frenkel, la configuration spatiale finale des cascades et le volume de la région endommagée par l'irradiation.

Ce manuscrit est organisé en trois chapitres. Le premier chapitre est dédié aux rappels sur les défauts dans les cristaux. Nous abordons, également, les défauts induits par irradiation et leurs effets sur les propriétés physiques et mécaniques des matériaux. Le deuxième chapitre est consacré au modèle largement utilisé pour simuler l'irradiation des matériaux. Nous détaillons le modèle de l'approximation des collisions binaires. Nous passons en revue les

modèles existants pour évaluer les pertes des énergies nucléaire et électronique, ainsi que le nombre de défauts produits. Dans le troisième chapitre, nous rapportons les résultats obtenus par simulations des cascades de déplacements dans le platine. Nous examinons le nombre de paires de Frenkel générées, la fonction de distribution des ces paires en fonction de la distance de séparation lacune-interstitiel et la distribution des volumes des cascades. Enfin, notre manuscrit 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] A. Djaafri, T. Djaafri, A. Elias, M. Driss-Khodja, “*Computer Simulation Studies of Collision Cascade in Tantalum*”, *Afric. Rev. Phys.* **8**, 365 (2013).
- [2] A. Djaafri, A. Kadoun, M. Driss-Khodja, A. Elias, T. Djaafri, “*Study of Point Defect Distributions in Tantalum*”, *Acta Physica Polonica*, **A133**, 39 (2018).
Doi: 10.1088/1757-899X/110/1/012003
- [3] A. Djaafri, A. Kadoun, M. Driss-Khodja, “*Study of Defects Produced by Displacement Cascades in Tantalum Monocarbide*”, *Arab. J. Sci. Eng.* **43**, 3837 (2018).
Doi : 10.1007/s13369-018-3127-0
- [4] B. Derkaoui, “*Etude des defaults induits par irradiation dans le tungsten*”, mémoire de Master, Université Dr Moulay Tahar, Saida, 2019.
- [5] M. Mancer, “*Production des defaults ponctuels dans le hafnium irradié*”, mémoire de Master, Université Dr Moulay Tahar de Saida, 2020.
- [6] Y. Naas, “*Etude des dommages créés dans l’iridium irradié par la méthode de l’approximation des collisions binaires*”, mémoire de Master, Université Dr Moulay Tahar de Saida, 2021.
- [7] 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.
- [8] Y. Adda, J.P. Mustelier, Y. Quéré, “*Comportement de l’uranium sous irradiation*”, A Conf. 28/P/62 Genève, Rapport CEA-R 2671, 1964.
- [9] C.H. de Novion, “*Effets d’irradiation dans les matériaux (métaux, alliages, verres)*”, 26^e Colloque de Métallurgie, Saclay, Paris, 1984.

[10] 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.

[11] 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.

[12] J.L. Boutard, “*Endommagement des alliages métalliques par des neutrons rapides*”, *Reflats de la physique* **38**, 17 (2014).

Doi : 10.1051/refdp/201438017

[13] N. J. Connelly, T. Damhus, R. M. Hartshorn, A. T. Hutton, “*Nomenclature of Inorganic Chemistry: IUPAC Recommendations 2005*”, Cambridge: RSC Publishing, 2005.

[14] M. E. Wieser, T. B. Coplen, “*Atomic weights of the elements 2009 (IUPAC Technical Report)*”, *Pure and Applied Chemistry*, **83**, 359(2011).

Doi:10.1351/PAC-REP-10-09-14

[15] D. R. Lide, “*CRC Handbook of Chemistry and Physics*”, CRC Press Inc, 90^e édition, 2009.

[16] C. L. Yaws, “*The Yaws Handbook of Physical Properties for Hydrocarbons and Chemicals*”, Houston, TX: Gulf Publishing Company, 2005.

[17] J. W. Arblaster, “*Vapour Pressure Equations for the Platinum Group Elements*”, *Platinum Metals Review*, **51**, 130 (2007).

Doi:10.1595/147106707X213830

[18] A. Saniere, S. Vinot, P. Christmann, “*Li, Ni, Pt, Pd : des métaux critiques*”, notes de synthèse, rédigées par des experts d'IFP Énergies nouvelles, 2009.

http://www.ifpenergiesnouvelles.fr/content/download/69132/1492226/version/2/file/Panorama2010_09-VF_Metaux-critiques.pdf

[19] C.P. Race, “*The Modelling of Radiation Damage in Metals using Ehrenfest Dynamics*”, Springer Theses, Springer-Verlag, Berlin, 2010.

[20] W. Takeuchi, Y. Yamamura, “*Computer studies of the energy spectra and reflection coefficients of light ions*”, *Radiat. Eff.* **71**, 53 (1983).

Doi : 10.1080/00337578308218603

[21] A. Kuzmichev, V. Perevertaylo, L. Tsybulsky, O. Volpian, “*Characteristics of flows of energetic atoms reflected from metal targets during ion bombardment*”, *J. Phys. Conf. Ser.* **729**, 012005 (2016).

Doi : 10.1088/1742-6596/729/1/012005

[22] T.T. Nuver, H. Rudolph, P.A. Zeijlmans van Emmichoven, A. Niehaus, “*Preferential ejection of high-energy sputtered Cu atoms in keV atom–Cu (110) collisions*”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **164-165**, 785 (2000).

Doi : 10.1016/S0168-583X(99)01011-3

[23] A. De Backer, A. Sand, C.J. Ortiz, C. Domain, P. Olsson, E. Berthod, C.S. Becquart, “*Primary damage in tungsten using the binary collision approximation, molecular dynamic simulation, and the density functional theory*”, *Phys. Scr.* **2016** (T167), 014018 (2016).

Doi : 10.1088/0031-8949/T167/1/014018

[24] M. Hou, C.J. Ortiz, C.S. Becquart, C. Domain, U. Sarkar, A. De Backer, “*Microstructure evolution of irradiated tungsten: Crystal effects in He and H implantation as modelled in the Binary Collision Approximation*”, *J. Nucl. Mater.* **403**, 89 (2010).

Doi : 10.1016/j.jnucmat.2010.06.004

[25] L. Bukonte, F. Djurabekova, J. Samela, K. Nordlund, S.A. Norris, M.J. Aziz, “*Comparison of molecular dynamics and binary collision approximation simulations for atom displacement analysis*”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **297**, 23 (2013).

Doi : 10.1016/j.nimb.2012.12.014

[26] M.T. Robinson, *MARLOWE: “computer simulation of atomic collisions in crystalline solids”*, (Version 15a), RSICC Code Package PSR-137 (Report).

[27] M.T. Robinson, I. Torrens, “*Computer simulation of atomic-displacement cascades in solids in the binary-collision approximation*”, *Phys. Rev. B* **9**, 5008 (1974).

Doi : 10.1103/PhysRevB.9.5008

[28] M.T. Robinson, “*Slowing-down time of energetic atoms in solids*”, *Phys. Rev. B* **40**, 10717 (1989).

Doi : 10.1103/PhysRevB.40.10717

[29] M.T. Robinson, “*The temporal development of collision cascades in the binary-collision approximation*”, *Nucl. Instrum. Methods B* **48**, 408 (1990).

Doi : 10.1016/0168-583X(90)90150-S

[30] M.T. Robinson, “*Attractive interaction potentials and the binary collision approximation*”, *Radiat. Eff. Defects Solids*, **141**, 1 (1997).

Doi : 10.1080/10420159708211552

[31] M.T. Robinson, “*Basic physics of radiation damage production*”, *J. Nucl. Mater.* **216**, 1 (1994).

Doi : 10.1016/0022-3115(94)90003-5

[32] M.T. Robinson, *K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd.* **43**, 27 (1993).

Chapitre 1 : Défauts cristallins

1.1 Introduction

Le cristal parfait est un modèle idéal dans lequel l'assemblage des atomes, des ions ou des molécules le composant est régulier et périodique et s'étend suivant les trois dimensions de l'espace à l'infini (figure 1.1). La plus petite entité qui décrit l'empilement du cristal et qui se répète dans le volume entier est appelée une maille [1]. En réalité, la répétition indéfiniment de la maille élémentaire n'existe pas et tout cristal possède des défauts, le premier étant la surface extérieure qui présente une rupture de la succession de l'empilement [2].

Les matériaux cristallins répandus ont une forme polycristalline qui est un assemblage d'une multitude de petits cristaux de taille et d'orientation variées [3].

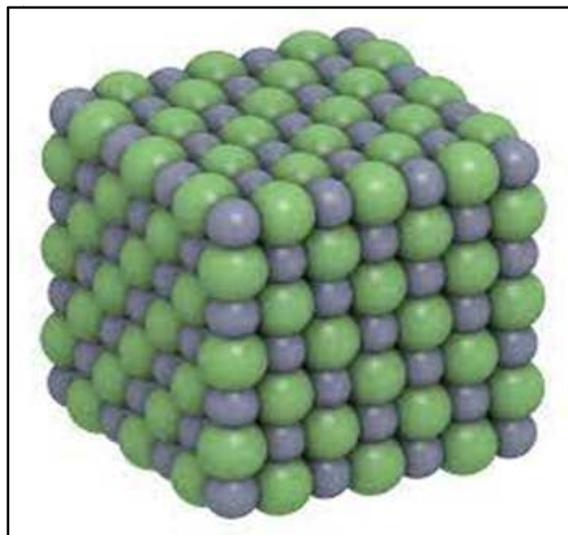


Figure 1.1. Représentation schématique d'un cristal.

Tout écart de la structure périodique d'un cristal constitue un défaut [4]. La présence des défauts influe sur certaines propriétés des matériaux, ils peuvent les améliorer ou les dégrader. Par exemple, la présence des impuretés de chrome dans le cristal de corindon lui donne sa valeur de rubis, le dopage du silicium par du phosphore permet d'obtenir un semi-conducteur avec des propriétés électriques remarquables, la présence de défauts permet la

déformation plastique des matériaux mais les défauts résultants de l'irradiation neutronique de l'acier des cuves des réacteurs nucléaires conduisent à sa fragilisation.

Les défauts cristallins sont classés, selon leur dimensionnalité, en quatre catégories : les défauts ponctuels, les défauts linéaires, les défauts plans et les défauts volumiques.

1.2. Défauts ponctuels

Les défauts ponctuels sont des défauts d'organisation cristalline limités à des points isolés du cristal. Ce sont donc des imperfections à l'échelle atomique. Leur présence cause des distorsions locales du réseau cristallin. Ils sont de plusieurs types : lacunes, auto-interstitiels et extrinsèques en insertion ou en substitution [5, 6].

1.2.1. Lacunes

Une lacune est le défaut cristallin le plus simple qui se manifeste le plus souvent dans les cristaux. Elle résulte de l'absence d'un atome ou d'un ion dans la maille du réseau (figure 1.2). L'existence des lacunes a été prédite en 1926 par Frenkel [7].

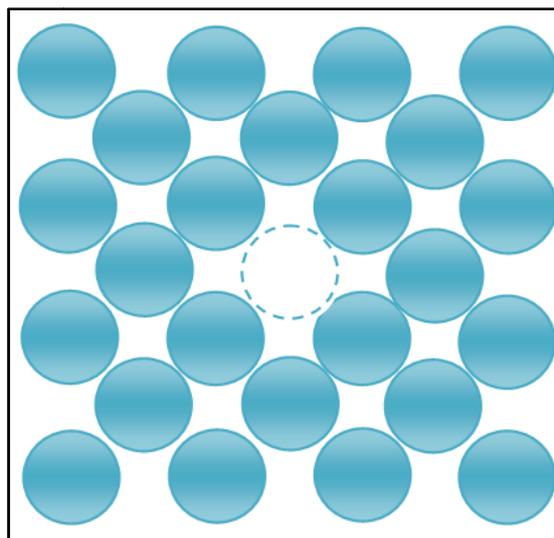


Figure 1.2. Schéma d'une lacune dans un cristal.

Les lacunes réduisent la densité du cristal et augmentent son énergie interne et sa résistivité. Elles sont créées et éliminées par agitation thermique. La concentration atomique en lacunes à l'équilibre change en fonction de la température, T , selon la relation :

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

où n désigne le nombre de lacunes se trouvant dans un ensemble contenant N atomes, E_V dénote l'énergie de formation d'une lacune qui est de l'ordre de 1 eV dans les métaux et k_B représente la constante de Boltzmann [8].

La diffusion des atomes dans les cristaux vers des zones de faibles concentrations est facilitée par la présence des lacunes. En effet, les déplacements se produisent par permutations successives entre les lacunes et les atomes adjacents (figure 1.3) [8-10].

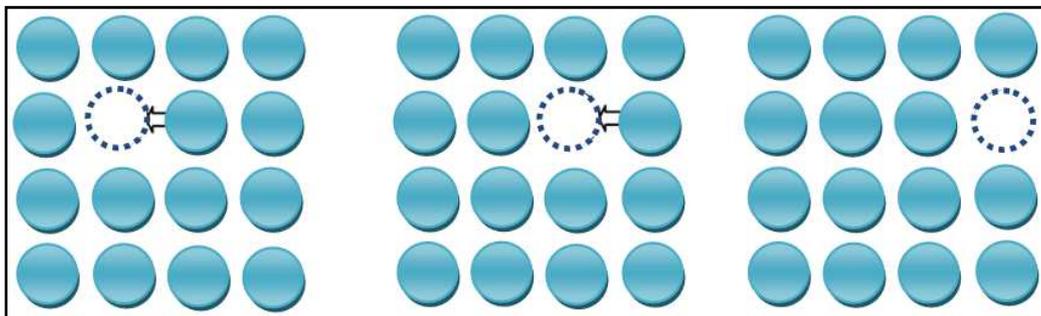


Figure 1.3. Diffusion d'une lacune par déplacements successifs d'atomes.

1.2.2. Auto-interstitiels

Les défauts auto-interstitiels sont des atomes de même nature chimique que les atomes formant le réseau cristallin mais qui sont placés dans les espaces vides du réseau (figure 1.4). La présence de l'interstitiel induit une distorsion locale du cristal et provoque l'écartement des atomes voisins de leurs positions d'équilibre.

L'énergie de formation des interstitiels (elle est dans les métaux de l'ordre de 7 eV) est en général plus grande que celle des lacunes [11]. Ceci se répercute sur les concentrations des

deux espèces à l'équilibre. Elles sont plus importantes pour les lacunes que pour les interstitiels. La concentration des interstitiels comme celle des lacunes augmente avec la température et suit une loi similaire à la loi donnée par (1.1). Les auto-interstitiels sont plus mobiles que les lacunes et peuvent se mouvoir de longues distances avant de se recombinaison avec elles [8].

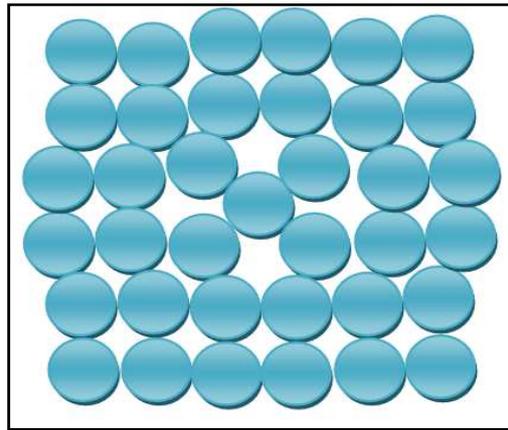


Figure 1.4. Schéma de défaut auto-interstitiel.

1.2.3. Défauts extrinsèques

Les cristaux ne sont pas purs et ils recèlent toujours des impuretés qui sont considérées comme des défauts. Si un atome présent dans le cristal est de nature chimique différente de celle des atomes le composant, alors il s'agit d'un défaut extrinsèque. L'introduction, dépendamment du rayon atomique de l'atome et de ses propriétés chimiques, peut se faire de deux façons, en substitution ou en insertion.

Dans la substitution, l'atome étranger est de taille comparable à celle des atomes du réseau. Il remplace un atome du cristal provoquant ainsi une distorsion élastique du réseau (figure 1.5). Les impuretés substitutionnelles doivent être chimiquement équivalentes à l'élément qui compose l'ensemble du cristal. Ces défauts peuvent se déplacer dans le cristal,

leur mouvement étant facilité par la présence des lacunes. Ils ont des effets importants sur les propriétés mécaniques et électriques des matériaux [8].

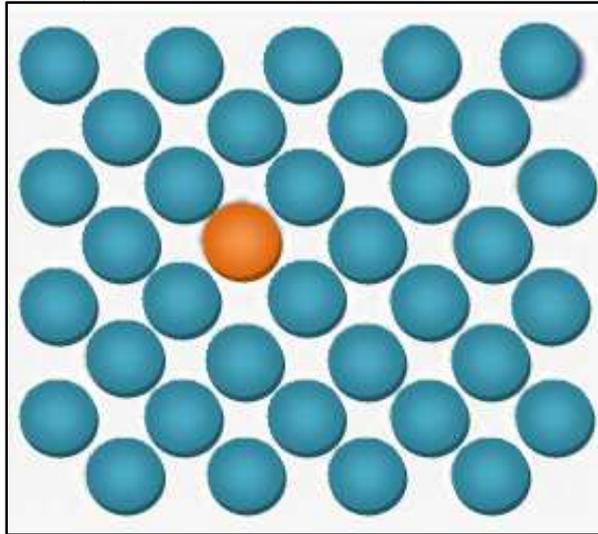


Figure 1.5. Défaut extrinsèque substitutionnel.

Les impuretés en insertion concernent, en général, des atomes de taille petite comparativement à celle des atomes du cristal. Elles peuvent, ainsi, s'infiltrer dans les interstices. Il existe, pour ces impuretés, des positions préférentielles dans le cristal où elles peuvent s'installer sans provoquer une grande distorsion de la structure cristalline régulière. Dans les structures cubiques à faces centrées ou cubiques centrées, l'insertion se fait en site tétraédrique (figure 1.6-a et figure 1.7-a) ou en site octaédrique (figure 1.6-b et figure 1.7-b) [8, 12].

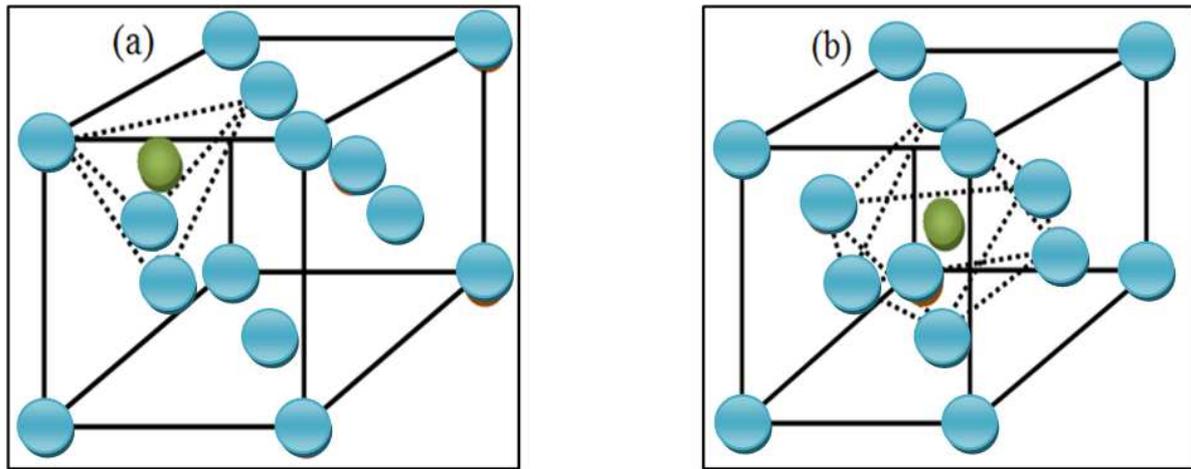


Figure 1.6. Positions interstitielles dans la structure c.f.c. (a) site tétraédrique. (b) site octaédrique.

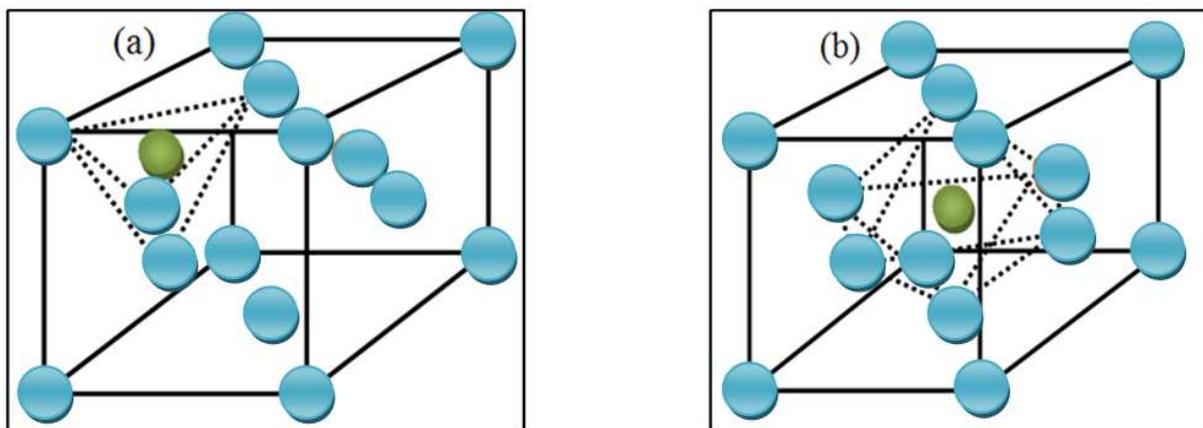


Figure 1.7. Positions interstitielles dans la structure c.c. (a) site octaédrique. (b) site tétraédrique.

1.2.4. Défauts de Schottky et de Frenkel

Dans les solides ioniques, les défauts ponctuels sont créés par paires afin que l'ensemble du cristal demeure électriquement neutre. Un défaut de *Schottky* est un type de défaut ponctuel qui résulte de l'association d'une lacune anionique et d'une lacune cationique, comme le montre la figure 1.8. On rencontre de tel défaut dans les réseaux de NaCl, KBr et KCl [8, 13, 14].

La création d'un défaut de Schottky à l'intérieur du cristal requiert le déplacement d'une paire cation-anion en position normale dans le réseau vers la surface du matériau. Il

peut résulter, également, de la diffusion des lacunes de la surface du cristal à son intérieur. Les défauts Schottky mènent à une diminution de la densité du réseau et leur nombre est dicté par la loi [9, 13, 14] :

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

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

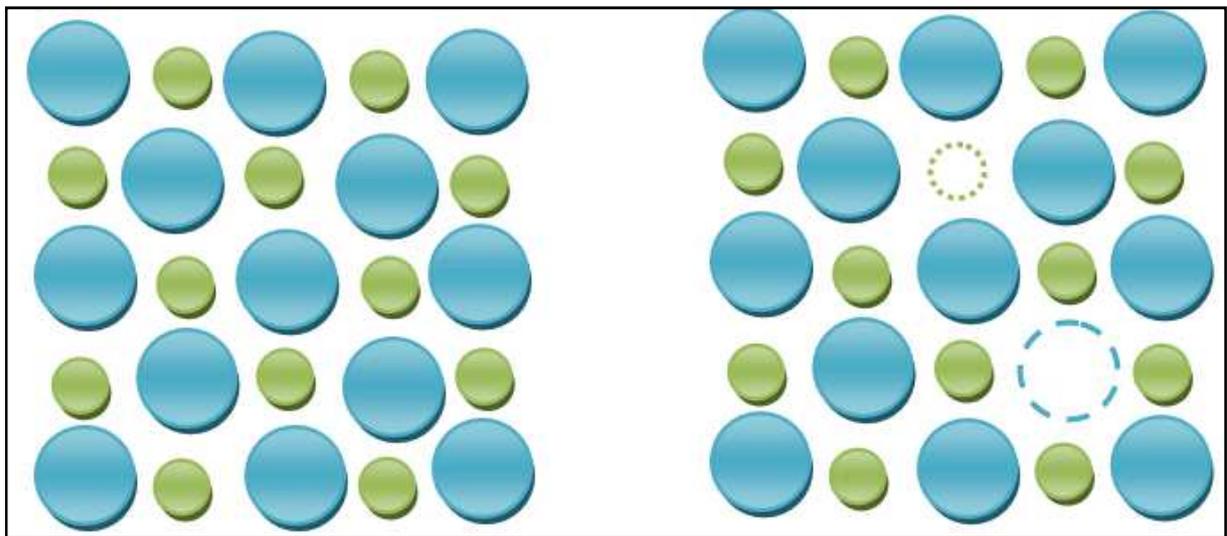


Figure 1.8. Défaut de Schottky.

Un défaut de Frenkel est un défaut ponctuel qui résulte du déplacement d'un atome ou d'un ion de sa position d'équilibre à une position interstitielle. Cela crée une lacune au sein de la structure du réseau, comme l'illustre la figure 1.9. Le défaut de Frenkel n'affecte pas la densité et la masse du réseau et ne requiert aucun transfert d'ions ou de lacunes. On trouve ce défaut, par exemple, dans l'iodure d'argent AgI. La conductibilité électrique des solides ioniques est affectée par la présence de ces défauts [85]. Le nombre de défauts de Frenkel est régi par la loi [9, 13, 14] :

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

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

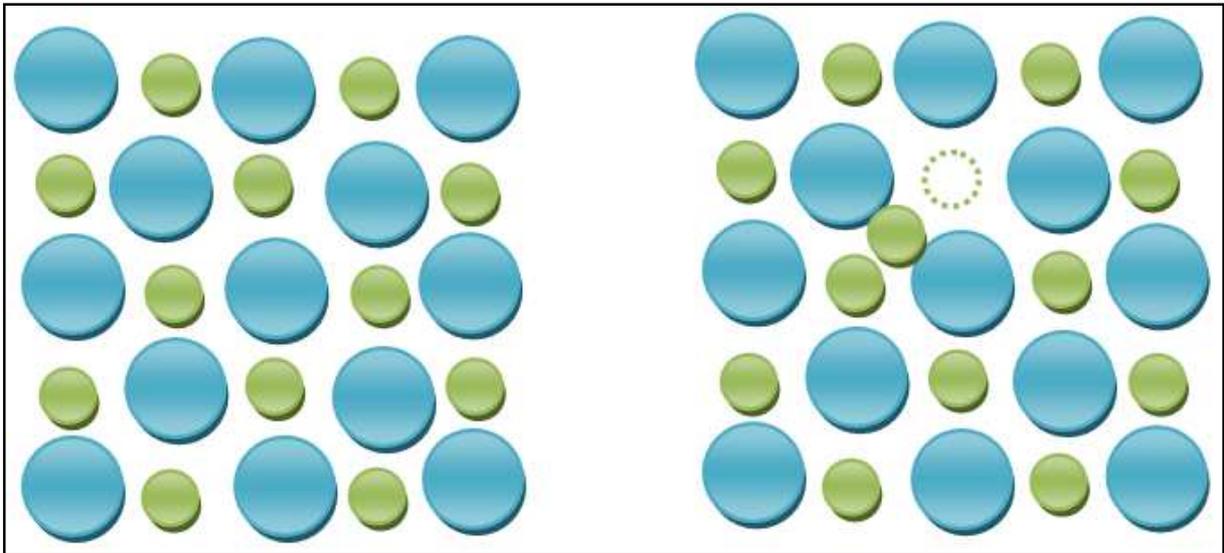


Figure 1.9. Défaut de Frenkel.

1.3. Défauts linéaires

Ce sont des défauts unidimensionnels appelés aussi *dislocations*. Le concept de « dislocation », a été introduit par Vito Volterra en 1907, et désigne une ligne d'imperfections séparant la partie qui a glissé du cristal relativement à une autre restée immobile [5]. En 1953, Hedge et Mitchell ont apporté pour la première fois la mise en évidence des lignes de dislocation dans le bromure d'argent [15]. Ce type de défauts est caractérisé par la direction de la ligne d'imperfections et par un vecteur appelé *vecteur de Burgers* qui décrit l'amplitude et la direction de la distorsion du réseau. Les dislocations ont un impact énorme sur les propriétés physiques des matériaux. Elles sont les éléments porteurs de la déformation plastique. Elles constituent des voies de diffusions rapides et préférentielles des atomes. Elles peuvent ainsi piéger des interstitiels autour d'elles formant un nuage, appelé *nuage de*

Cottrell, qui provoque le durcissement du matériau [16, 17]. On distingue trois types de dislocations : les *dislocations coin*, les *dislocations vis* et les *dislocations mixtes*.

1.3.1. Dislocation coin

Une dislocation coin est caractérisée par la présence d'un demi-plan atomique supplémentaire inséré dans une structure cristalline idéale. Le bord supérieur du demi-plan, illustré sur la figure 1.10, représente la ligne de dislocation. Le vecteur de Burgers est perpendiculaire à cette ligne. La dislocation provoque une déformation du cristal. En effet, les atomes de la ligne de dislocation ont un nombre d'atomes premiers voisins différent de ceux des autres atomes du cristal. La déformation du cristal au voisinage de la dislocation fait que la distance entre les atomes du côté du demi-plan supplémentaire est plus petite que leur distance d'équilibre. La zone correspondante est dite en compression. La situation inverse se manifeste du côté opposé au demi-plan supplémentaire. La zone est alors dite en traction [8, 18].

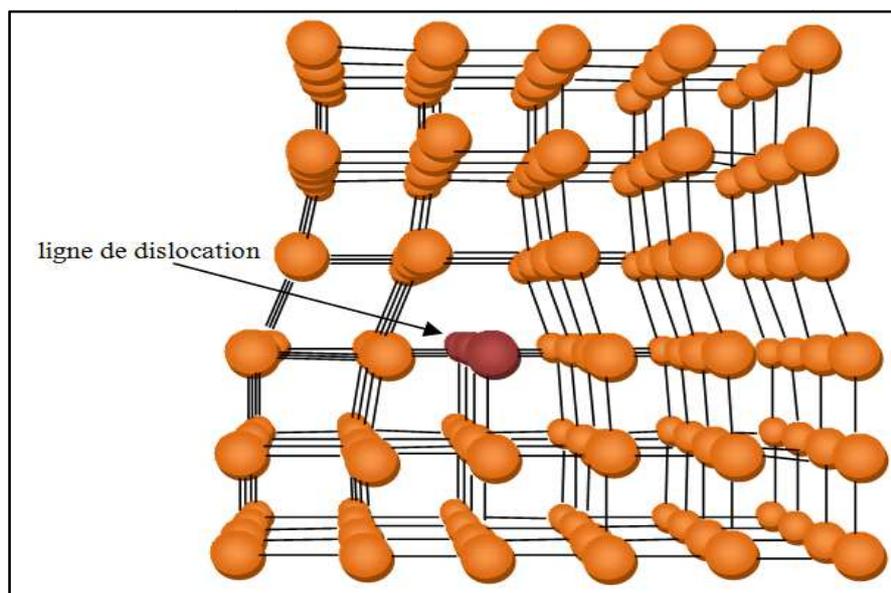


Figure 1.10. Représentation schématique d'une dislocation coin.

1.3.2. Dislocation vis

Le deuxième type de dislocation est la dislocation dite vis illustrée sur la figure 1.11.

Le vecteur de Burgers \vec{b} qui la caractérise est parallèle à la ligne de dislocation [8, 18].

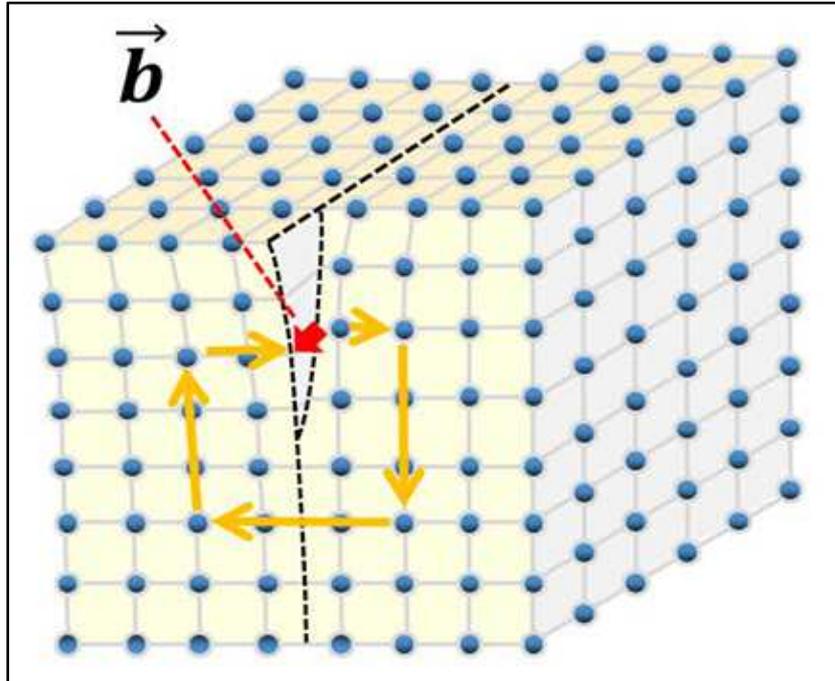


Figure 1.11. Représentation schématique d'une dislocation vis.

1.3.3. Dislocation mixte

Les dislocations ne sont pas toujours rectilignes. La ligne de dislocation est, de manière générale, courbe. Elle présente des parties coin, des parties vis et des parties à caractère mixte. La figure 1.12 montre un exemple d'une telle dislocation. La partie de l'arc (VC) perpendiculaire à \vec{b} et avoisinant le point C est de type coin. La partie de la dislocation parallèle à \vec{b} et avoisinant le point V a un caractère de dislocation vis. La partie restante de l'arc (VC) constitue une portion à caractère mixte [8, 16].

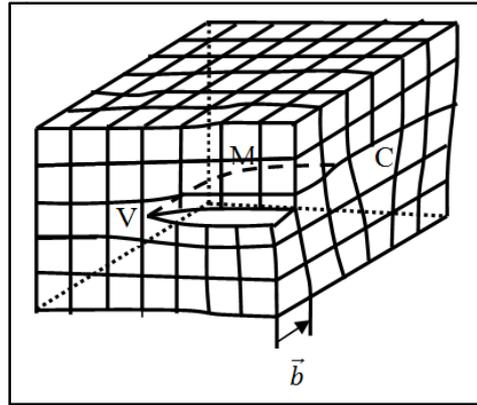


Figure 1.12. Représentation schématique d'une dislocation mixte.

Les dislocations coins et vis ne peuvent pas se terminer à l'intérieur d'un cristal. Elles rejoignent la surface, s'achèvent sur d'autres défauts ou elles s'enchaînent à d'autres dislocations pour se fermer et constituer des boucles de dislocation [11].

1.4. Défauts plans

Ce sont des défauts de surface ou des défauts à deux dimensions. Ils incluent les joints de grains, les joints de phases, les joints de macles, les défauts d'empilement, et les parois d'antiphase.

1.4.1. Joints de grains et joints de phases

La plupart des matériaux cristallins réponsus sont polycristallins. Ils sont constitués de plusieurs cristaux accolés appelés grains. Ces cristaux sont dirigés aléatoirement les uns par rapport aux autres et leurs tailles varient de l'ordre du micromètre à plusieurs centimètres.

La surface de la jonction des cristaux voisins de même nature chimique est nommée *joint de grains*. Si les cristaux adjacents sont de natures distinctes, la surface d'accolement est dite *joint de phases*. Les joints forment des défauts bidimensionnels (figure 1.13). Les atomes

de la zone de raccordement ont une énergie de liaison inférieure, en valeur absolue, à celle des atomes formant l'intérieur des grains [8, 11, 12, 19].

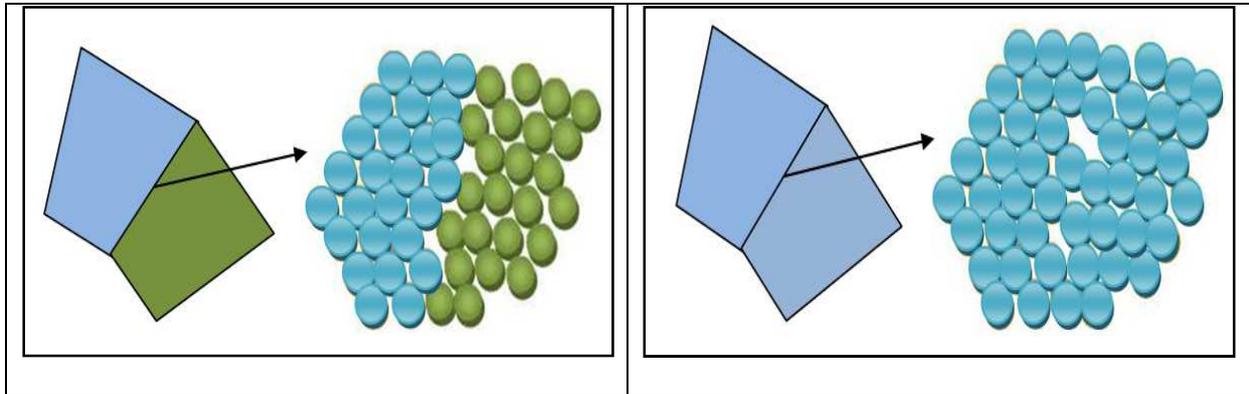


Figure 1.13. Représentation schématique d'un joint de grains et d'un joint de phases.

Les joints de grains ont, généralement, une grande influence sur les propriétés mécaniques des matériaux. Ce sont des lieux qui favorisent l'accumulation des impuretés, ce qui peut conduire à la fragilité et à la corrosion intergranulaires. Ils peuvent être, également, des surfaces de jonctions faibles qui soient le siège de naissance et de diffusion des fissures [3, 19, 20].

1.4.2. Joints de macles

Le joint de macle est, également, un joint de grain qui constitue un plan de symétrie miroir s'intercalant entre deux parties du grain d'orientations symétriques (figure 1.14) [11, 16].

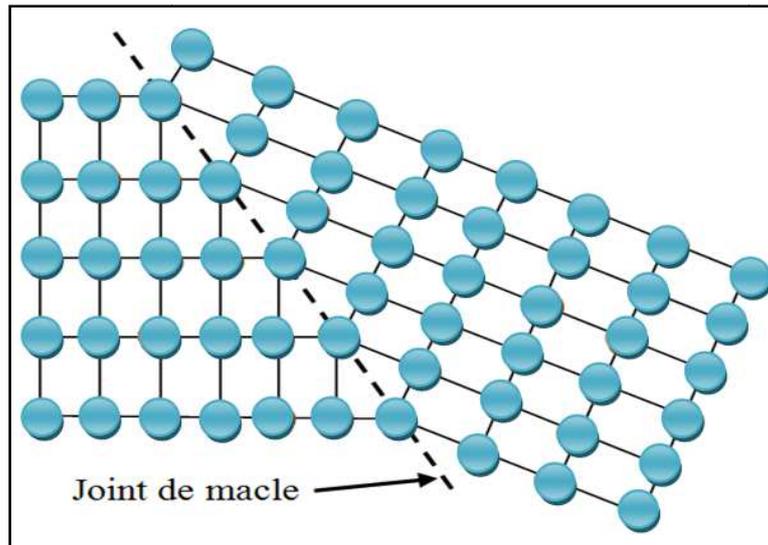


Figure 1.14. Schéma d'un joint de macle.

1.4.3. Défauts d'empilement

Il s'agit dans ce cas, d'une modification de la séquence d'empilement des plans atomiques comme il est montré sur la figure 1.15 [11].

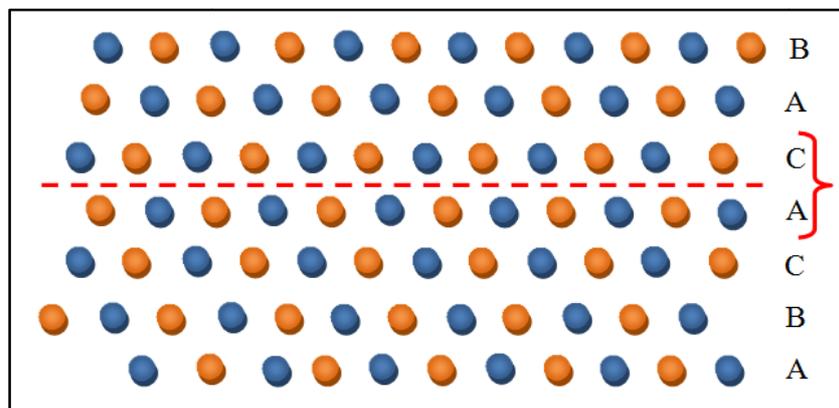


Figure 1.15. Défaut d'empilement.

1.4.4. Parois d'antiphase

La paroi d'antiphase est un défaut qui ne se manifeste que dans les composés. C'est une surface de séparation entre deux régions ordonnées d'un cristal et le long de laquelle la

séquence ordonnée d'une région est décalée par rapport à celle de la région adjacente (figure 1.16) [11, 16].

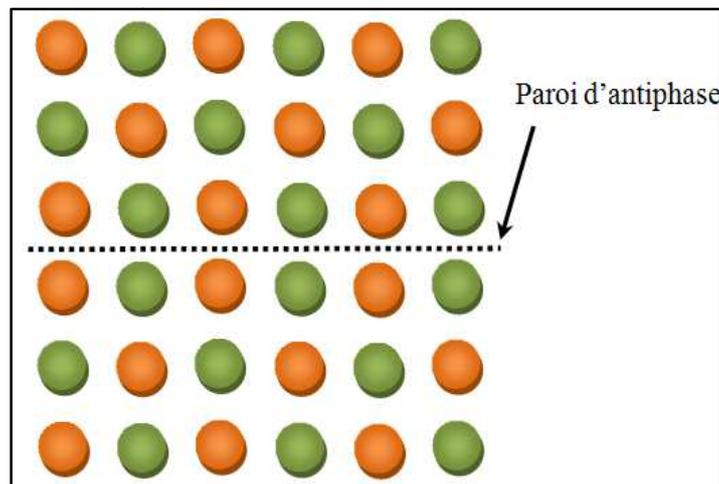


Figure 1.16. Schéma d'un cristal traversé par une paroi d'antiphase.

1.5. Défauts volumiques

Les défauts volumiques sont des amas tridimensionnels d'atomes ou de lacunes. Ils sont arrangés en trois classes : les *pores*, les *inclusions* et les *précipités*.

1.5.1. Pores

Les pores sont des cavités formées dans le solide suite à l'agglomération de lacunes ou sont des gaz piégés pendant la phase de solidification (figure 1.17). Ils sont des défauts nuisibles car ils provoquent la diminution de la résistance mécanique du matériau et favorisent, donc, la rupture à de faibles charges [16].

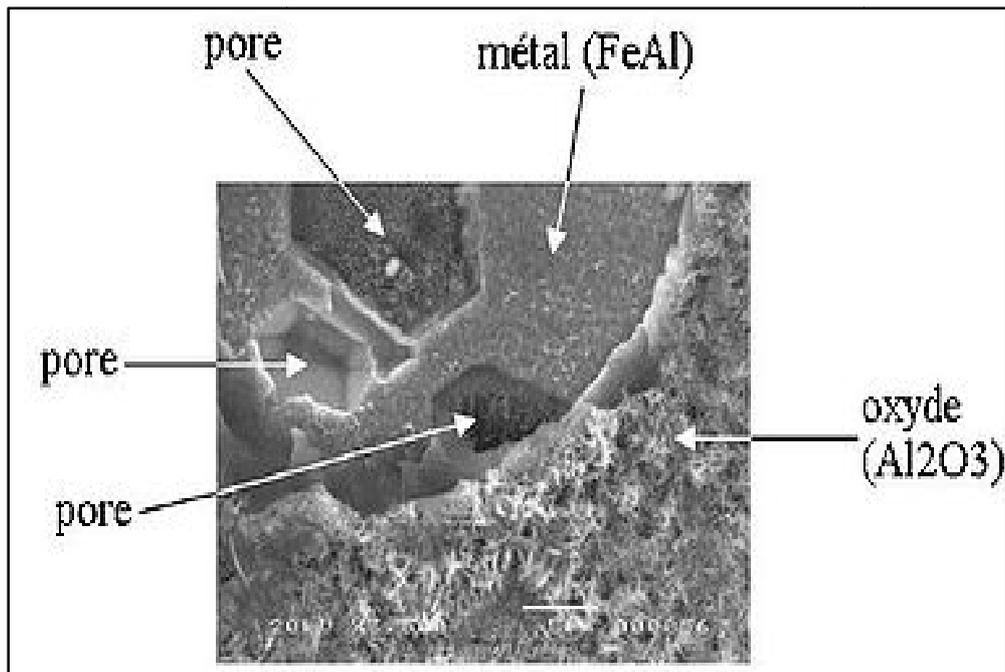


Figure 1.17. Formation de pores dans un matériau.

1.5.2. Inclusions

Les inclusions sont des entités étrangères présentes dans le matériau. Leur taille change de quelques microns à des dimensions macroscopiques. La source de leur existence est attribuée à l'élaboration du matériau. Elles s'infiltrèrent dans le système sous forme de saletés. Elles constituent des sites préférentiels pour la rupture et dégradent les propriétés électriques des dispositifs microélectroniques en introduisant des effets indésirables [18, 21].

1.5.3. Précipités

Les précipités sont des particules insérées dans le matériau par des réactions à l'état solide. Ils ont pour rôle d'augmenter la résistance structurale des alliages en opérant comme des obstacles au mouvement de dislocations. Leur efficacité dépend de leur taille et de leur distribution dans le réseau [18].

1.6. Effets d'irradiation dans les matériaux

L'irradiation d'un matériau par des particules énergétiques cause le déplacement des atomes hors de leurs positions d'équilibre du réseau. Les atomes évincés peuvent à leur tour provoquer d'autres déplacements. Il en résulte la création de lacunes et d'interstitiels. La zone irradiée se trouve formée d'une région centrale riche en lacunes entourée d'une couronne remplie d'interstitiels. L'agglomération des lacunes conduit à la formation des cavités et provoque un gonflement (augmentation de volume). Ce gonflement conduit à une dégradation des propriétés mécaniques et la limitation de la durée d'utilisation du matériau. Les interstitiels diffusent dans le matériau, ce qui leur donne la possibilité de se recombinaison avec des lacunes et de se regrouper en amas pour évoluer en boucles de dislocations.

Outre les déplacements atomiques, des réactions nucléaires (transmutation, formation de gaz, fission) peuvent, également, se produire suite à l'irradiation des matériaux. Les réactions de transmutation nucléaire altèrent la structure des matériaux en modifiant leur composition chimique et produisent des isotopes radioactifs qui entraînent l'activation nucléaire des matériaux. Les réactions conduisant à la formation de l'hydrogène sont particulièrement importantes car elles causent la fragilisation des matériaux [12, 22-27].

Parmi les effets de l'irradiation, on trouve, aussi, la croissance. Ce phénomène se traduit par un changement de forme sans changement de volume. Il a été observé dans des matériaux comme l'uranium, le graphite et le zirconium [22].

Dans les matériaux organiques, les rayonnements peuvent induire la vibration de certains groupes chimiques et causer la scission des chaînes, fragilisant ainsi le matériau. [22, 26].

Références bibliographiques

- [1] P. Ehrhart, “*Properties and interactions of atomic defects in metals and alloys*”, Berlin, Springer, volume **25**, 1991.
- [2] J.H. Crawford, “*Point Defects in Solids*”, New York, Plenum Press, 1975.
- [3] L. Priester, “*Joints de grains et plasticité cristalline*”, Hermes, 2012.
- [4] C. Ngô, H. Ngô, “*Introduction à la physique des semi-conducteurs*”, Ed. Dunod, Paris, 1998.
- [5] J.L. Martin, “*Dislocations et plasticité des cristaux*”, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 2000.
- [6] P. Pavlov, A. Khokhlov, “*Physique du solide*”, Ed. Mir, Moscow, 1989.
- [7] J.I. Frenkel, Z. Phys. **35**, 652 (1926).
- [8] J. P. Baïlon, J.M Dorlot, “*Des Matériaux*”, Ed. Presses Internationales Polytechnique, 2002.
- [9] C. Kittel, “*Introduction to Solid State Physics*”, 8th edition, John Willey & Sons, Inc, 2005.
- [10] M. Gerl, J.P. Issi, “*Physique des Matériaux*”, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 1997.
- [11] M. Dupeux, “*Aide-mémoire science des matériaux*”, Dunod, Paris, 2008.
- [12] 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.
- [13] R. Collongues, “*Le solide cristallin*”, Presses Universitaires de France, 1973.
- [14] L. Smart, “*Introduction à la chimie de l'état solide*”, Dunod, 1997.
- [15] J.M. Hedge, J.W. Mitchell, “*The observation of polyhedral sub-structures in crystals of silver bromide*”, *Philos. Mag.* **44**, 223 (1953).

Doi : 10.1080/14786440208520298

- [16] A. DJAAFRI, “*Etude des dommages créés dans le tantale (Ta) et les composés TaC et Ta₂O₅ par l’approximation des collisions binaires (BCA)*”, Thèse de Doctorat, Université Djillali LIABES de Sidi-Bel-Abbes, Algérie, 2018.
- [17] R. Schmidt, “*Comportement des matériaux dans les milieux biologiques*”, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 1999.
- [18] J.W. Morris, Jr., “*Defects in Crystals*”, In: *Materials Science and Engineering: An Introduction*. Ed. Wiley, 2013.
- [19] P. Robert, “*Matériaux de l’électronique*”, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 1999.
- [20] M. Biscondi, “*Structure et propriétés mécaniques des joints de grains*”, J. Phys. Colloques **43**, C6-293 (1982).
- [21] J. Besson, N. Billon, S. Cantournet, Y. Chastel, A.F. Gourgues-Lorenzon, J.M. Haudin, B. Monasse, L. Nazé, “*Matériaux pour l’ingénieur*”, Ed. Presses de l’école des mines, Paris, France, 2010.
- [22] C.H. de Novion, “*Effets d’irradiation dans les matériaux (métaux, alliages, verres)*”, 26^e Colloque de Métallurgie, Saclay, Paris, 1984.
- [23] 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.
- [24] 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.
- [25] F. Onimus, “*Approche Expérimentale et Modélisation Micromécanique du Comportement des Alliages de Zirconium Irradiés*”, thèse de Doctorat, École Centrale des Arts et Manufactures, 2003.

[26] J. Bouchard, J.P. Deffan, A. Gouchet, “*Introduction au génie atomique*”, Presses des mines, Paris, 2007.

[27] J.L. Boutard, “*Endommagement des alliages métalliques par des neutrons rapides, Reflets de la physique*”, **38**, 17 (2014).

Doi : 10.1051/refdp/201438017

Chapitre 2 : Modèle de simulation

2.1 Introduction

Dans l'étude des interactions qui se produisent entre des particules énergétiques irradiantes et un solide, trois modèles sont habituellement utilisés ; l'approximation des collisions binaires, la dynamique moléculaire et Monté-Carlo. La dernière méthode est surtout employée dans l'étude de l'agglomération des défauts ponctuels similaires et leur évolution à long terme vers des défauts étendus. La dynamique moléculaire est une méthode de simulation qui permet l'étude de 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) et prend en considération toutes les forces exercées par les atomes voisins lors du mouvement d'une particule dans le milieu. Ces bases de fondement de ce modèle permettent des simulations plus réalistes des phénomènes étudiés. Les inconvénients de cette méthode résident dans le temps d'exécution qui est très élevé, sa pauvreté en accumulation de statistiques et sa limitation à des énergies relativement faibles. L'approximation des collisions binaires présume qu'un atome se déplace en effectuant des collisions binaires indépendantes au sein d'une cascade. Elle est simple à programmer et plus rapide en temps de calcul. Elle permet, donc, une accumulation de statistiques suffisantes pour une étude adéquate des phénomènes étudiés. Elle, aussi, mieux adaptée à l'irradiation à hautes énergies. L'inconvénient de cette méthode est qu'elle est moins précise que la MD à basses énergies [1]. Dans les études actuelles, on combine la MD et la BCA. On utilise dans les calculs l'approximation des collisions binaires après avoir ajuster ses paramètres énergétiques par la dynamique moléculaire.

2.2 Approximation des collisions binaires

Le modèle de l'approximation des collisions binaires est souvent utilisé en physique pour étudier les phénomènes qui se produisent lors de l'interaction des particules énergétiques

avec la matière tels que la rétrodiffusion, la pulvérisation, l'implantation d'ions et les dégâts générés par irradiation [2-7]. Dans l'approximation des collisions binaires, une cascade est décrite comme des séquences d'interactions binaires entre des atomes en mouvement et des atomes immobiles. Les effets exercés par les atomes voisins sur les deux atomes en choc sont négligés. Les atomes se meuvent librement avant et après les collisions, le long de leurs asymptotes de diffusion. Le nombre d'atomes en mouvement est suffisamment petit pour que les collisions entre les atomes en mouvement soient ignorées. Le ralentissement des atomes mobiles est une conséquence du transfert de l'énergie aux atomes cibles composant le milieu [8-12].

2.2.1 Description de la cascade de déplacements

Suite à la collision d'une particule énergétique irradiante avec un atome du matériau, celui-ci acquiert une quantité d'énergie et quitte son site. Un tel atome est communément appelé *primaire* (PKA pour *Primary Knock-on Atom*). Le primaire effectue des collisions avec les atomes du réseau se trouvant le long de son passage, produisant des atomes *secondaires* qui peuvent eux aussi déloger d'autres atomes du réseau et ainsi de suite. Ainsi, une avalanche de collisions atomiques appelée *cascade de déplacements* est formée (voir figure 2.1). Les atomes du réseau heurtés sont éjectés définitivement de leur position d'équilibre s'ils acquièrent une énergie supérieure à l'énergie seuil de déplacement, E_d , du matériau. Si l'énergie reçue par l'atome cible n'excède pas E_d , il effectuera des oscillations autour de sa position d'équilibre et dissipera l'énergie sous forme de chaleur [13, 14]. Lors du développement de la cascade, les atomes mobiles perdent leur énergie dans les collisions élastiques provoquant des déplacements atomiques et dans des collisions inélastiques menant à l'excitation des électrons du milieu. La perte d'énergie perpétuelle des projectiles fait, qu'à long terme ces derniers ralentiront et finiront par s'immobiliser, ce qui se traduit par l'arrêt de

l'expansion de la cascade. Le développement de la cascade ne dure que quelques dixièmes de picosecondes [15].

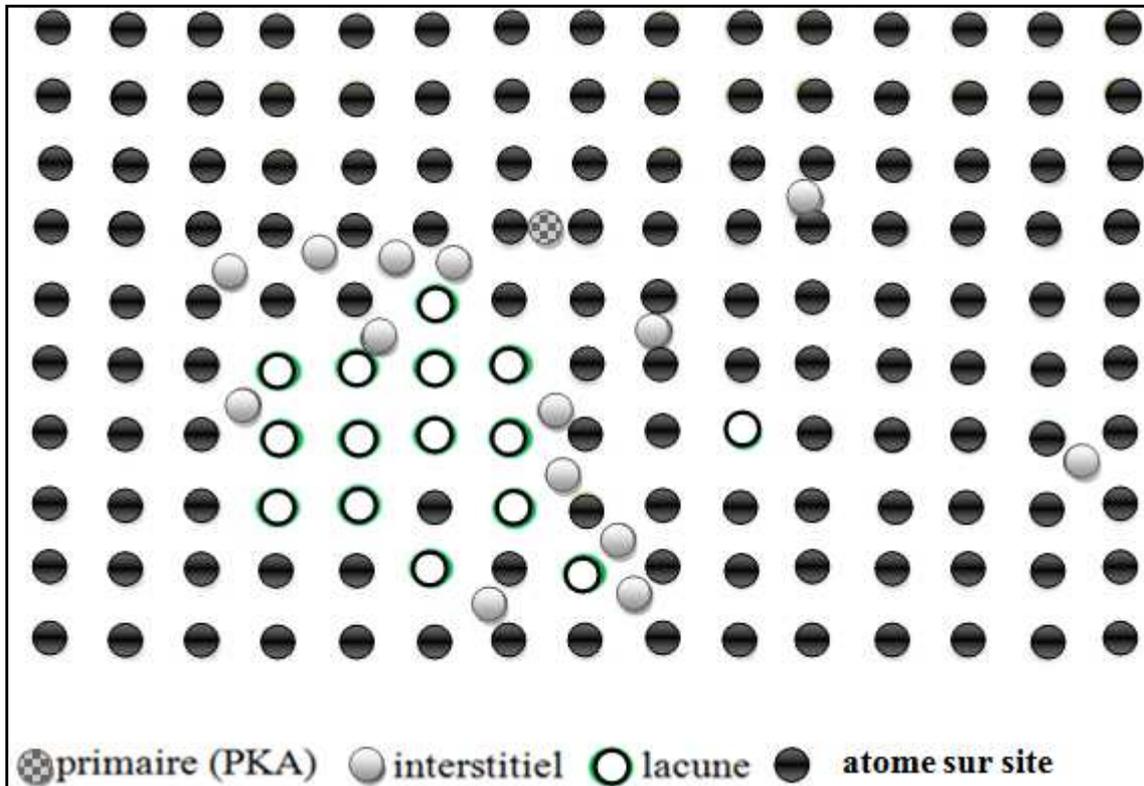


Figure 2.1. Représentation schématique de la cascade de déplacements.

Le concept de cascade de déplacements a été suggéré pour la première fois par Brinkman [16] en 1954. Peu après, Seeger a proposé qu'une particule énergétique pénétrant un matériau produit une région fortement endommagée et très chaude. On parle alors de *pic de chaleur* (*thermal spike*) [17]. Cette région très restreinte est composée d'une zone centrale dépeuplée, c'est-à-dire riche en lacunes, entourée d'une couronne formée principalement d'atomes interstitiels. Beavan *et al.* confirmèrent expérimentalement l'existence d'une telle zone suite à l'examen par microscopie ionique d'un échantillon de tungstène irradié [18].

Les cascades de déplacements formées à partir d'un primaire de faible énergie (inférieure à 100 eV) ne sont pas volumineuses et les dégâts produits sont limités à quelques défauts isolés. Pour les cascades initiées par des primaires d'énergie de quelques dizaines de

keV et plus, la profondeur de pénétration dans le matériau est grande et les dommages produits sont importants. La diffusion thermique favorise l'agglomération de défauts ponctuels identiques ce qui provoque la constitution d'amas de lacunes et d'interstitiels [13, 19].

Lors du développement d'une cascade, plusieurs phénomènes peuvent se produire. Nous trouvons parmi ces phénomènes ; la canalisation, la focalisation et les séquences de remplacements.

2.2.2. Canalisation

Le phénomène de canalisation se produit lorsqu'une particule se meut dans un matériau parallèlement à une direction cristallographique de bas indice. Ce déplacement entre les atomes du réseau (avec une probabilité de collision faible) lui permet de parcourir de longues distances avant de subir des chocs importants. La profondeur de pénétration dans les matériaux à structure cristallographique ordonnée est grande comparativement aux matériaux amorphes [14, 20].

2.2.3. Focalisation

La focalisation est un phénomène qui se manifeste dans les cascades à basses énergies. Il s'agit de collisions élastiques successives d'atomes voisins le long d'une rangée atomique (voir figure 2.2). Les études montrent la facilité d'occurrence de ce phénomène dans la structure cubique à faces centrées suivant les rangées cristallographiques de faibles indices [13].

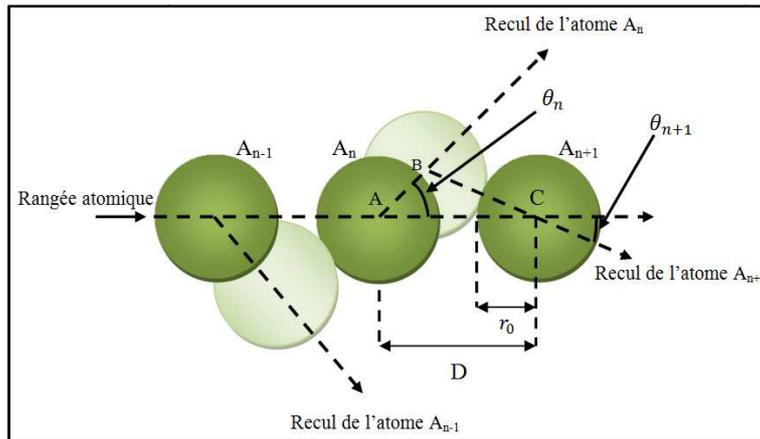


Figure 2.2. Schéma d'une séquence de focalisation.

2.2.4. Séquences de remplacements

Dans ce phénomène, le projectile transmet toute son énergie à l'atome du réseau et s'immobilise à sa place. Pour une séquence de remplacements (RCS pour *Remplacement Collision Sequences*), il y a un effet domino qui se produit le long d'une rangée atomique (voir figure 2.3). À la fin de la séquence de remplacements, on se retrouve avec un atome interstitiel éloigné de la lacune créée au début de la chaîne et qui emporte, approximativement, la même énergie cinétique que le premier atome de la séquence [14]. Lorsque les RCS sont longues et nombreuses, elles contribuent efficacement à la création des défauts de Frenkel permanents.

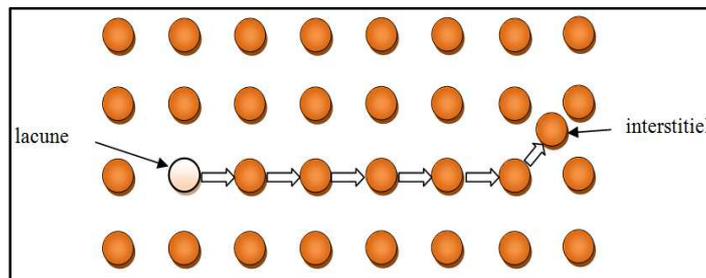


Figure 2.3. Schéma d'une séquence de remplacements.

2.2.5. Cinématique d'une collision binaire

Dans ce qui suit, nous allons examiner la collision entre deux atomes en calculant les différentes grandeurs physiques d'intérêt pour l'étude de la production des défauts dans les

matériaux irradiés. Cette analyse nécessite l'utilisation conjointe de la mécanique des chocs et de la diffusion d'une particule par un champ de force centrale. Les calculs seront faits dans le référentiel du laboratoire (L) et dans le référentiel du centre de masse (CM). Du fait que l'irradiation qui nous intéresse se situe dans une plage d'énergie relativement basse (ordre du keV) et que les atomes étudiés sont lourds, alors on se contentera d'un traitement classique du phénomène de la collision atomique.

Considérons une collision entre un atome de masse m_1 , qui se meut avec une vitesse \vec{v}_0 dans le système (L) et un atome de masse m_2 immobile (voir figure 2.4). Désignons par \vec{v}_1 et \vec{v}_2 , respectivement, les vitesses du projectile et de l'atome cible après la collision et par Q l'énergie inélastique perdue par excitation et ionisation des électrons atomiques. Le calcul de l'énergie cinétique des atomes après collision passe par l'application des lois de conservation de l'énergie et de l'impulsion.

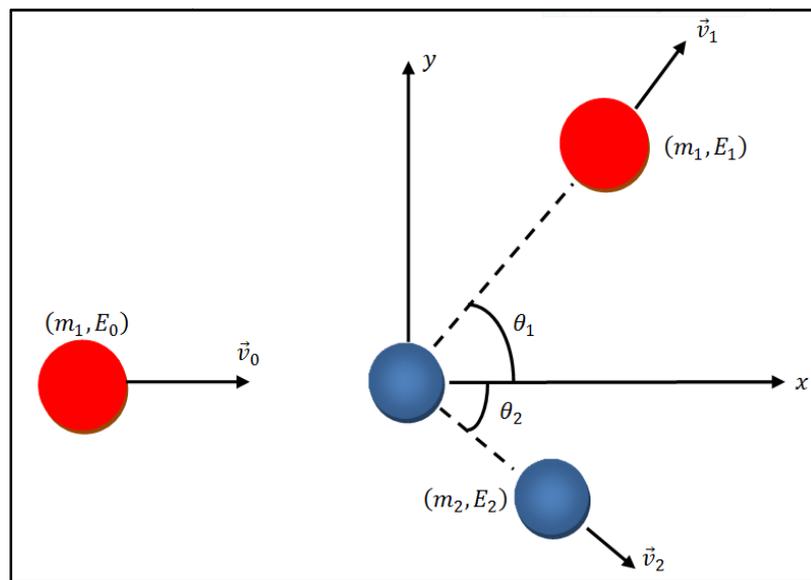


Figure 2.4. Schéma d'une collision binaire dans le système du laboratoire.

La loi de conservation de l'énergie totale du système (projectile-cible) dans (L) donne [21] :

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

alors que de la loi de conservation de l'impulsion dans (L) s'écrit :

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

Faisons la projection de la relation vectorielle (2.2) sur les deux axes Ox et Oy :

$$m_1 v_0 = m_1 v_1 \cos \theta_1 + m_2 v_2 \cos \theta_2 \quad (2.3)$$

$$0 = m_1 v_1 \sin \theta_1 - m_2 v_2 \sin \theta_2 \quad (2.4)$$

où θ_1 et θ_2 dénotent, respectivement, l'angle de diffusion du projectile et l'angle de diffusion de l'atome cible par rapport à la direction d'incidence. À partir des relations (2.1), (2.3) et (2.4) et par un calcul direct nous pouvons obtenir les expressions suivantes donnant les angles de diffusion [14, 21] :

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

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

où E_0 et E_1 représentent, 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 désigne le rapport entre les masses des deux atomes : $A = m_2/m_1$. Les angles de diffusion θ_1 et θ_2 sont liés à l'angle de diffusion dans le système de centre de masse, ϑ , par les expressions [14, 21] :

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

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

où le coefficient f est fonction de Q et de l'énergie relative ; $E_r = (A E_0)/(1 + A)$ [14, 21] :

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

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

2.2.6. Energie transférée à l'atome cible

La détermination de l'énergie cinétique du projectile et l'énergie cinétique de l'atome cible après la collision nécessite l'utilisation des relations (2.5) et (2.6) [14, 21] :

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

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

Ces relations peuvent être exprimées en fonction de l'angle de diffusion dans le système (CM), en se servant des expressions (2.7) et (2.8) [14, 21] :

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

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

L'énergie transférée à l'atome cible par le projectile pendant la collision peut être déduite de (2.14) [14, 21] :

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

La valeur maximale pour l'énergie transmise est obtenue lorsque la perte d'énergie inélastique est nulle ; ce qui correspond à $Q = 0$ ($f = 1$ et $\sin^2(\vartheta/2) = 1$) [14, 21] :

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

2.2.7. Angle de diffusion

Les expressions décrivant les grandeurs physiques caractérisant une collision binaire (2.7), (2.8), (2.13) et (2.14) dans le système (L) sont toutes fonction de l'angle de diffusion ϑ . Cet angle dépend du potentiel atomique de paires, V , qui modélise l'interaction entre les deux

atomes en collision. La théorie du mouvement d'une particule dans un champ de force centrale (voir figure 2.5) permet d'établir la relation entre l'angle ϑ et le potentiel V [21] :

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

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

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

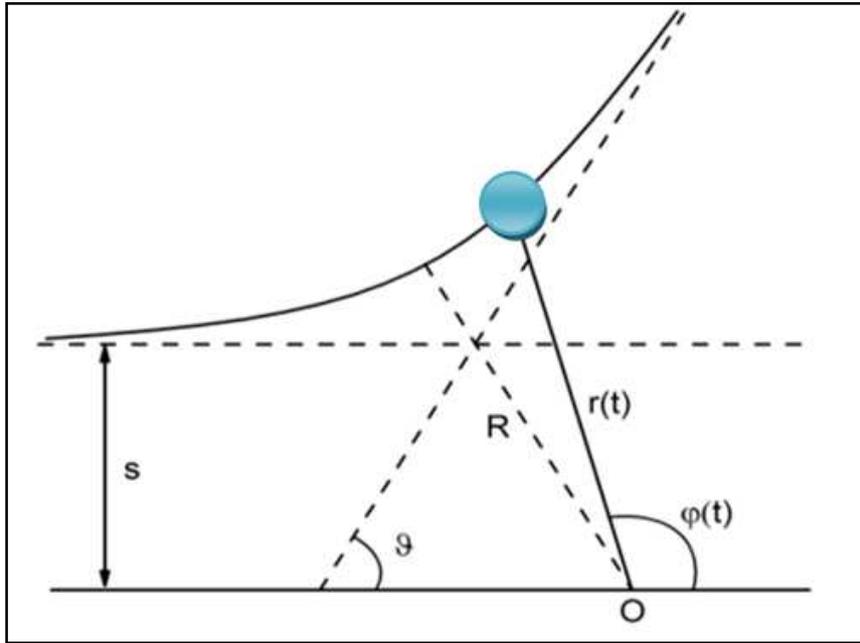


Figure 2.5. Angle de diffusion ϑ dans le référentiel du centre de masse.

La racine de l'équation $g(r) = 0$ est désignée par R . Elle représente la distance minimale d'approche montrée sur la figure 2.5. Le paramètre s figurant dans l'expression (2.17) est appelé paramètre d'impact. Il représente la distance entre l'atome cible et la direction de la vitesse initiale du projectile.

Les points d'intersection des asymptotes du projectile et de l'atome cible ont pour abscisses x_1 et x_2 (voir figure 2.6) [8] :

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

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

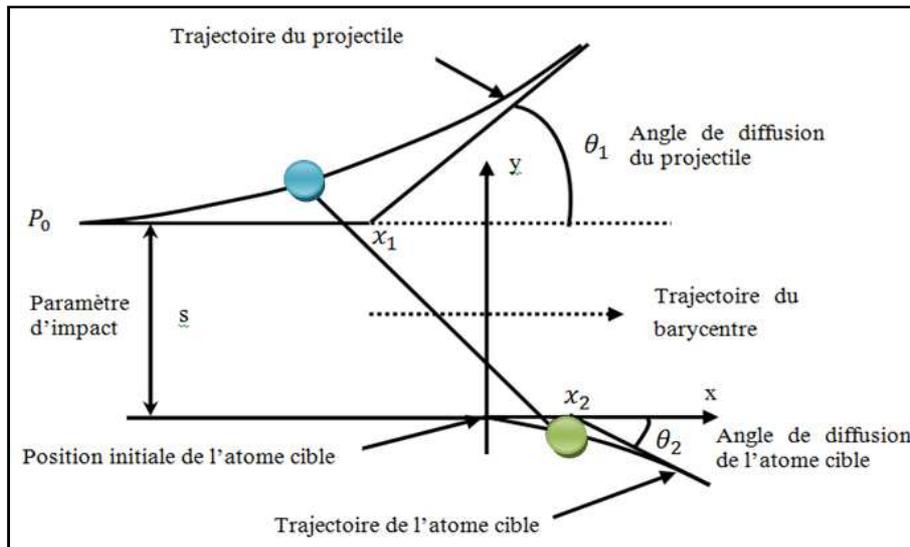


Figure 2.6. Trajectoires de deux atomes en collision dans le référentiel du laboratoire.

2.3 Potentiers d'interactions atomiques

Le code Marlowe que nous avons utilisé pour simuler l'irradiation recèle six fonctions d'énergie potentielle. Il peut fournir des valeurs par défaut pour les paramètres de ces potentiels si l'utilisateur le désire. La souplesse du code permet même à l'utilisateur d'introduire son propre potentiel, pourvu qu'il soit décrit par une fonction analytique continue et dérivable. Nous allons dans ce qui suit décrire les deux potentiels de paires les plus utilisés dans les simulations de l'irradiation des matériaux utilisant la BCA.

2.3.1. Potentiel de Molière

C'est un potentiel coulombien écranté qui est développé pour rendre compte de la diminution de la répulsion coulombienne entre les deux noyaux en interaction due à l'écrantage des charges positives par les nuages électroniques. Il est régi par l'expression [21]

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi \left(\frac{r}{a_M} \right) , \quad (2.21)$$

où a_M désigne le rayon d'écran et Φ est la fonction d'écran somme de trois termes en exponentielle [21] :

$$\Phi\left(\frac{r}{a_M}\right) = \sum_{i=1}^3 c_i e^{-(d_i r/a_M)}, \quad (2.22)$$

avec

$$\sum_{i=1}^3 c_i = \Phi(0) = 1. \quad (2.23)$$

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

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \left[0.35 e^{-\left(0.3 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.55 e^{-\left(1.2 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.1 e^{-\left(6.0 \frac{r}{a_M}\right)} \right]. \quad (2.24)$$

Le rayon d'écran utilisé habituellement pour cette fonction est celui de Firsov. Il est lié au rayon de Bohr a_B et aux numéros atomiques Z_1 et Z_2 des deux noyaux en interaction par l'expression [21] :

$$a_{\text{Firsov}} = \frac{0.88534 a_B}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}} \text{ (\AA)}. \quad (2.25)$$

2.3.2. Potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark

C'est un potentiel coulombien écranté proposé par Ziegler, Biersack et Littmark. Suite à des calculs sur une large gamme de paires d'atomes (522 paires d'atomes), ils ont pu extraire une expression analytique pour un potentiel moyen de paires dit potentiel universel ou potentiel ZBL. La fonction d'écran Φ est composée de quatre exponentielles [21] :

$$\Phi\left(\frac{r}{a_{ZBL}}\right) = \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r/a_{ZBL})}. \quad (2.26)$$

Les valeurs des coefficients c_i et d_i sont $c_i = (0.028171, 0.28022, 0.50986, 0.18175)$ et $d_i = (0.20162, 0.4029, 0.94229, 3.1998)$. Le rayon d'écran, a_{ZBL} , s'écrit en fonction de a_B , Z_1 et Z_2 [21] :

$$a_{ZBL} = \frac{0.8853 a_B}{Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23}}. \quad (2.27)$$

Le potentiel de paires ZBL s'écrit donc sous la forme :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r / a_{ZBL})}. \quad (2.28)$$

2.4 Perte d'énergie

La perte d'énergie perpétuelle d'une particule énergétique traversant un milieu se fait essentiellement par deux mécanismes : les collisions élastiques et les collisions inélastiques [14]. Les collisions élastiques ou nucléaires se sont les collisions qui se produisent avec les noyaux du milieu alors que les collisions inélastiques traduisent l'interaction entre le projectile et les électrons atomiques du milieu causant l'excitation et l'ionisation de ces derniers.

On définit le pouvoir d'arrêt linéaire (ou le pouvoir de ralentissement) du milieu pour le projectile comme étant la perte d'énergie de ce dernier par unité de distance parcourue dans le milieu. Il est dénoté par $(-dE/dx)$. Lorsqu'on rapporte le pouvoir d'arrêt linéaire à la densité atomique N du milieu, on parle de pouvoir d'arrêt atomique :

$$S = \frac{1}{N} \left(-\frac{dE}{dx} \right) [MeV \cdot cm^2 / atome]. \quad (2.29)$$

Le pouvoir d'arrêt massique est obtenu en rapportant le pouvoir d'arrêt linéaire à la masse volumique, ρ , du milieu :

$$\left(-\frac{dE}{dx} \right)_m = \frac{1}{\rho} \left(-\frac{dE}{dx} \right) [MeV \cdot cm^2 g^{-1}]. \quad (2.30)$$

2.4.1 Pertes d'énergie inélastiques

Le pouvoir d'arrêt inélastique ou électronique, $(-dE/dx)_e$, dépend de certaines propriétés du milieu et du projectile. Parmi les grandeurs physiques du projectile on trouve la vitesse v . 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, ϵ_0 la permittivité du vide et \hbar la constante de Planck réduite :

Le domaine $v \gg V_B Z_1^{2/3}$: le pouvoir d'arrêt linéaire d'un milieu de numéro atomique Z_2 , de poids atomique A_2 et de densité ρ pour une particule lourde chargée est donné par la relation de Bethe-Bloch qui intègre les effets quantiques et relativistes [22, 23] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = NS_{BB} = \frac{e^4}{4\pi\epsilon_0^2 m_e C^2} \frac{Z_1^2}{\beta^2} \frac{N_a \rho Z_2}{A_2} \left[\ln\left(\frac{2 m_e C^2 \beta^2}{I}\right) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 - \frac{C_K}{Z} - \frac{\delta}{2} \right], \quad (2.31)$$

avec :

m_e : la masse au repos de l'électron

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

N_a : le nombre d'Avogadro

β : $\beta = v/C$ 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

δ : 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 cinétique de quelques MeV jusqu'à des centaines de GeV. À des

énergies plus hautes (TeV), la perte d'énergie par rayonnement de freinage (*Bremsstrahlung*) devient importante, et la formule doit être complétée par des termes supplémentaires.

Le domaine $v \ll Z_1^{2/3} e^2 / \hbar$: Dans ce domaine, deux modèles fondés sur la méthode de l'approximation des collisions binaires sont, fréquemment, utilisés pour évaluer le pouvoir d'arrêt du milieu; le modèle de Lindhard, Scharff et Schiott (LSS) et le modèle de Firsov.

Dans le modèle LSS, on assimile le milieu dans lequel se produit l'interaction comme un gaz d'électrons libres. Les échanges d'électrons entre le projectile et les atomes cibles se traduisent par un transfert d'énergie au nuage électronique provoquant des vibrations thermiques au sein de celui-ci. Les calculs dans ce modèle mènent à l'expression suivante pour le pouvoir d'arrêt électronique [24] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = NS_{LS} = \frac{2 e^2 N a_B Z_1^{7/6} Z_2}{\epsilon_0 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2} v_B} v. \quad (2.32)$$

Cette formule peut être réécrite en fonction de l'énergie cinétique du projectile si l'on tient compte de la relation entre celle-ci et la vitesse :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = k\sqrt{E}, \quad (2.33)$$

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

Dans le modèle de Firsov, le projectile et l'atome cible forment ensemble une quasi-molécule durant le laps de temps de l'interaction. Cette interaction mène à des échanges électroniques qui nécessitent l'acquisition d'impulsion provenant de la collision. Le pouvoir d'arrêt linéaire dans ce modèle se calcule de l'expression [25] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = 5.15 \cdot 10^{-15} N (Z_1 + Z_2) \frac{v}{v_B}. \quad (2.34)$$

Le domaine des vitesses intermédiaires $v \approx Z_1^{2/3} e^2 / \hbar$: dans ce domaine, il est difficile d'élaborer un modèle fiable pour déterminer le pouvoir d'arrêt du milieu. Sa valeur est approchée à partir de celles des deux autres domaines par une interpolation dont la forme est donnée par [21] :

$$\frac{1}{S} = \frac{1}{S_{BB}} + \frac{1}{S_{LS}} . \quad (2.35)$$

2.4.2 Pertes d'énergie élastiques

Pour les collisions élastiques entre le projectile et les atomes cibles et qui sont responsables de la production des défauts ponctuels, le pouvoir d'arrêt nucléaire d'un milieu est donné par [26] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T \sigma(T) dT , \quad (2.36)$$

où σ représente la section efficace de diffusion, T désigne l'énergie transmise à l'atome collisionné et utilisée pour l'évincer de sa position et créer par la même occasion une lacune et T_{min} et T_{max} dénotent, respectivement, l'énergie minimale et l'énergie maximale qui peuvent être communiquées à l'atome cible. Le calcul de l'intégrale (2.36) nécessite la connaissance de l'angle de déflexion qui dépend lui-même du potentiel interatomique modélisant l'interaction entre les atomes en collision. Lorsque le potentiel considéré est coulombien ; $V(r) = (Z_1 Z_2 e^2) / r^2$ (r étant la distance interatomique), le pouvoir d'arrêt nucléaire prend la forme [27] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = \frac{2\pi N m_1 Z_1^2 Z_2^2 e^4}{m_2 E} \ln \left(\frac{T_{max}}{T_{min}}\right) . \quad (2.37)$$

L'utilisation d'un potentiel écranté $V(r) = (Z_1 Z_2 e^2 / r) \Phi(r/a_{12})$ (a_{12} étant le paramètre d'écran) donne pour le pouvoir d'arrêt l'expression [14] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = 4\pi N Z_1 Z_2 e^2 a_{12} \frac{m_1}{(m_1+m_2)} \frac{\ln \epsilon}{2\epsilon (1-\epsilon^{-1.49})}, \quad (2.38)$$

où ϵ est l'énergie réduite donnée par :

$$\epsilon = \frac{m_2 a_{12}}{(m_1+m_2)} \frac{E}{Z_1 Z_2 e^2}, \quad (2.39)$$

avec le paramètre d'écran :

$$a_{12} = \frac{0.4685}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}}. \quad (2.40)$$

Des calculs similaires utilisant le potentiel ZBL mènent à l'approximation suivante [20] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = \frac{8.462 \times 10^{-15} Z_1 Z_2 m_1}{(m_1+m_2)(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})} S_n(\epsilon), \quad (\text{eV}/(\text{atome}/\text{cm}^2)), \quad (2.41)$$

avec

$$S_n(\epsilon) = \begin{cases} \frac{\ln(1+1.1383 \epsilon)}{2(\epsilon+0.01321 \epsilon^{0.21226} + 0.19593 \epsilon^{0.5})} & \epsilon \leq 30 \text{ keV} \\ \frac{\ln \epsilon}{2\epsilon} & \epsilon > 30 \text{ keV} \end{cases}. \quad (2.42)$$

L'énergie réduite est maintenant donnée par :

$$\epsilon = \frac{32.53 m_2}{Z_1 Z_2 (m_1+m_2)(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})} E. \quad (2.43)$$

2.4.3 Perte d'énergie totale

La somme des deux processus de la perte d'énergie, électronique et nucléaire, donne le pouvoir d'arrêt total du milieu pour le projectile qui le traverse :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right) = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_N + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_e. \quad (2.44)$$

Les deux mécanismes de perte d'énergie sont en compétition et leur importance relative dépend à la fois des caractéristiques du projectile (énergie, masse, charge) et de la cible (masse atomique, numéro atomique,...). Toutefois il y a préférence de transfert de l'énergie

vers les électrons, vu que la densité électronique est beaucoup plus grande que la densité atomique dans les matériaux. Une estimation de l'énergie de coupure au-dessous de laquelle la perte d'énergie électronique dans les métaux est donnée par : $E^* = m_1 [keV]$ [13]. Ainsi, lorsque l'énergie cinétique d'une particule se déplaçant dans un milieu devient inférieure à sa masse exprimée en keV, la perte d'énergie par collisions élastiques devient le mécanisme dominant. On peut dire d'une manière générale, qu'à haute énergie, la perte d'énergie inélastique est prépondérante et qu'à basse énergie la perte d'énergie est presque exclusivement élastique (voir figure 2.7).

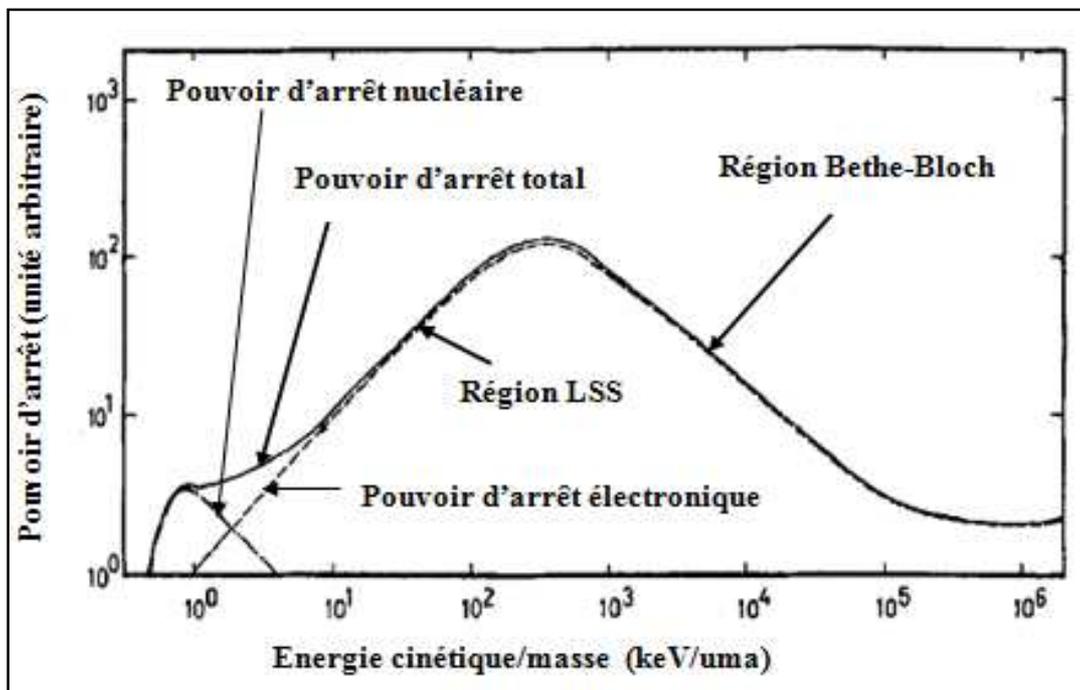


Figure 2.7. Représentation schématique du pouvoir d'arrêt des ions dans la matière.

2.5. Nombre de paires de Frenkel

L'estimation du nombre de défauts ponctuels permanents produits dans une cascade de déplacements initiée par un primaire d'énergie cinétique donnée est une tâche de première importance dans l'étude des matériaux irradiés. À cette fin, de nombreux modèles théoriques

ont été suggérés. Parmi ces modèles, citons : le *modèle de Kinchin-Pease* (KP), le *modèle de Norgett-Robinson-Torrens* (NRT) et le *modèle arc-dpa*.

2.5.1. Modèle de Kinchin-Pease

Ce modèle est basé sur les suppositions suivantes [20] :

- 1- la cascade est décrite comme étant une succession de collisions binaires ;
- 2- la probabilité de déplacement d'un atome qui acquiert une énergie supérieure à E_d est égale à 1 ;
- 3- aucune énergie n'est consommée pour libérer l'atome cible de sa position ;
- 4- pour $E > E^*$, la perte d'énergie est purement électronique et il n'y a aucun déplacement et pour $E \leq E^*$, les collisions sont totalement élastiques ;
- 5- le modèle de la sphère dure est utilisé dans les collisions ;
- 6- les effets dus à la structure cristalline tels que la canalisation et la focalisation sont ignorés.

Le nombre moyen de déplacements produits par un primaire d'énergie initiale E dans un matériau est donné, selon ce modèle par :

$$N_d(E) = \begin{cases} 0 & \text{si } E < E_d \\ 1 & \text{si } E_d \leq E < 2E_d \\ \frac{E}{2E_d} & \text{si } 2E_d \leq E < E^* \\ \frac{E^*}{2E_d} & \text{si } E \geq E^* \end{cases} \quad (2.45)$$

La dépendance du nombre de paires de Frenkel produites à l'énergie du primaire est illustrée sur la figure (2.8).

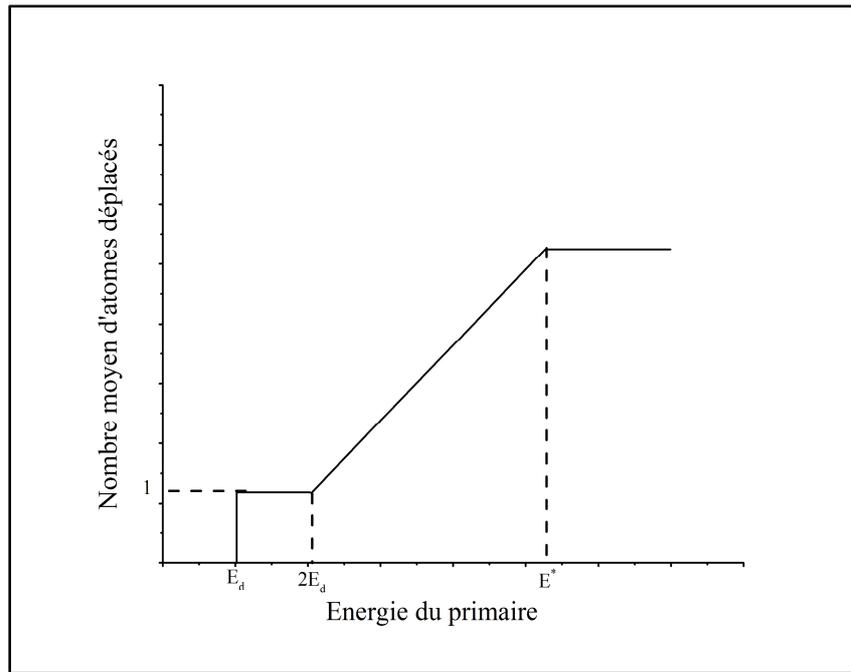


Figure 2.8. Nombre moyen d'atomes déplacés dans une cascade en fonction de l'énergie du primaire selon le modèle de *Kinchin-Pease*.

Les études sur les dommages induits dans les métaux irradiés ont montré une surestimation d'un facteur de 2 à 10 du nombre de défauts de Frenkel calculé à partir de l'expression (2.45). Les efforts consentis pour améliorer le modèle de *Kinchin-Pease* ont conduit au modèle de *Norgett-Robinson-Torrens*.

2.5.2. Modèle de Norgett-Robinson-Torrens

Le modèle proposé par Lindhard et *al.* [28] portant sur la partition de l'énergie du primaire entre les pertes électroniques et nucléaires a permis une transition en douceur entre les deux régimes de perte d'énergie et a mené au modèle de Norgett, Robinson et Torrens [29, 30] :

$$N_{NRT}(E) = 0.8 \frac{E_{dam}(E)}{2E_d}, \quad (2.46)$$

où E_{dam} est l'énergie disponible pour le déplacement atomique, c'est-à-dire l'énergie dissipée par collisions élastiques et menant à la création des défauts. Sa dépendance à l'énergie cinétique du primaire est donnée par :

$$E_{dam}(E) = \frac{E}{1+k_N g(\varepsilon_N)}, \quad (2.47)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} g(\varepsilon_N) = 3.4008 \varepsilon_N^{1/6} + 0.40244 \varepsilon_N^{3/4} + \varepsilon_N \\ k_N = 0.1337 Z_1^{1/6} \left(\frac{Z_1}{A_1}\right)^{1/2} \\ \varepsilon_N = \left(\frac{A_2 E}{A_1 + A_2}\right) \left(\frac{a}{Z_1 Z_2 e^2}\right) \\ a = \left(\frac{9\pi^2}{128}\right)^{1/3} \frac{a_B}{\sqrt{Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}}} \end{array} \right. , \quad (2.48)$$

où A_1 et A_2 sont, respectivement, les nombres de masse du primaire et de l'atome cible et a_B est le rayon de Bohr.

Des corrections sont apportés au modèle NRT en introduisant le coefficient d'efficacité du déplacement η de sorte que le nombre de paires de Frenkel permanents générés dans un matériau irradié par un primaire d'énergie cinétique E soit donné par la relation [31, 32] :

$$N(E) = \eta N_{NRT}. \quad (2.49)$$

Le modèle NRT est généralement accepté comme le standard international pour estimer le nombre de défauts induits dans les matériaux irradiés.

2.5.3 Modèle arc-dpa

Le modèle arc-dpa (pour *Athermal Recombination-Corrected Displacement*) a été proposé pour améliorer les résultats du modèle NRT modifié qui surestime le nombre de

défauts de Frenkel stables. Le nombre de déplacements permanents dans ce modèle est donné par [33, 34]:

$$N_d(E_{dam}) = \begin{cases} 0 & E_{dam} < E_d \\ 1 & E_d < E_{dam} < 2 E_d/0.8 \\ \frac{0.8}{2E_d} \xi_{arcdpa}(E_{dam}) \cdot E_{dam} & E_{dam} > 2 E_d/0.8 \end{cases}, \quad (2.50)$$

où ξ_{arcdpa} désigne l'efficacité de génération de défauts donnée par l'expression :

$$\xi_{arcdpa}(E_{dam}) = \frac{1-c_{arcdpa}}{(2E_d/0.8)^{b_{arcdpa}}} E_{dam}^{b_{arcdpa}} + c_{arcdpa}. \quad (2.51)$$

Les paramètres b_{arcdpa} et c_{arcdpa} sont tabulés [35]. Par exemple pour l'irradiation du platine, les valeurs de b_{arcdpa} , c_{arcdpa} et E_d sont donnés dans le tableau 2.1 [34].

Tableau 2.1. Valeurs des paramètres b_{arcdpa} , c_{arcdpa} et E_d [34]

| Matériau | E_d (eV) | b_{arcdpa} | c_{arcdpa} |
|--------------|------------|-------------------|------------------|
| 26 Fe | 40 | -0.568 | 0.286 |
| 28 Ni | 39 | -1.006722 | 0.2268273 |
| 29 Cu | 30 | -0.54799 | 0.1177 |
| 46 Pd | 41 | -0.877387 | 0.1515293 |
| 47 Ag | 39 | -1.063006 | 0.257325 |
| 74 W | 70 | -0.564 | 0.119 |
| 78 Pt | 42 | -1.1213135 | 0.1115884 |
| 79 Au | 43 | -0.788966 | 0.1304146 |

Références bibliographiques

[1] J.M. Hernandez-Mangas, J. Arias, L. Bailon, M. Jaraiz, J. Barbolla, “*Improved binary collision approximation ion implant simulators*”, *J. Appl. Phys.* **91**, 658 (2002).

Doi : 10.1063/1.1424052

[2] W. Takeuchi, Y. Yamamura, “*Computer studies of the energy spectra and reflection coefficients of light ions*”, *Radiat. Eff.* **71**, 53 (1983).

Doi : 10.1080/00337578308218603

[3] A. Kuzmichev, V. Perevertaylo, L. Tsybulsky, O. Volpian, “*Characteristics of flows of energetic atoms reflected from metal targets during ion bombardment*”, *J. Phys. Conf. Ser.* **729**, 012005 (2016).

Doi : 10.1088/1742-6596/729/1/012005

[4] T.T. Nuver, H. Rudolph, P.A. Zeijlmans van Emmichoven, A. Niehaus, “*Preferential ejection of high-energy sputtered Cu atoms in keV atom–Cu (110) collisions*”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **164-165**, 785 (2000).

Doi : 10.1016/S0168-583X(99)01011-3

[5] A. De Backer, A. Sand, C.J. Ortiz, C. Domain, P. Olsson, E. Berthod, C.S. Becquart, “*Primary damage in tungsten using the binary collision approximation, molecular dynamic simulation, and the density functional theory*”, *Phys. Scr.* **2016** (T167), 014018 (2016).

Doi : 10.1088/0031-8949/T167/1/014018

[6] M. Hou, C.J. Ortiz, C.S. Becquart, C. Domain, U. Sarkar, A. De Backer, “*Microstructure evolution of irradiated tungsten: Crystal effects in He and H implantation as modelled in the Binary Collision Approximation*”, *J. Nucl. Mater.* **403**, 89 (2010).

Doi : 10.1016/j.jnucmat.2010.06.004

[7] L. Bukonte, F. Djurabekova, J. Samela, K. Nordlund, S.A. Norris, M.J. Aziz, “*Comparison of molecular dynamics and binary collision approximation simulations for atom displacement analysis*”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **297**, 23 (2013).

Doi : 10.1016/j.nimb.2012.12.014

[8] M.T. Robinson, I. Torrens, “*Computer simulation of atomic-displacement cascades in solids in the binary-collision approximation*”, *Phys. Rev. B* **9**, 5008 (1974).

Doi : 10.1103/PhysRevB.9.5008

[9] M.T. Robinson, “*Slowing-down time of energetic atoms in solids*”, *Phys. Rev. B* **40**, 10717 (1989).

Doi : 10.1103/PhysRevB.40.10717

[10] M.T. Robinson, “*The temporal development of collision cascades in the binary-collision approximation*”, *Nucl. Instrum. Methods B* **48**, 408 (1990).

Doi : 10.1016/0168-583X(90)90150-S

[11] M.T. Robinson, “*Attractive interaction potentials and the binary collision approximation*”, *Radiat. Eff. Defects Solids*, **141**, 1 (1997).

Doi : 10.1080/10420159708211552

[12] R. Smith, “*Atomic & ion collisions in solids and at surfaces: theory, simulation and applications*”, Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1997.

[13] 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.

[14] A. DJAAFRI, “*Etude des dommages créés dans le tantale (Ta) et les composés TaC et Ta₂O₅ par l’approximation des collisions binaires (BCA)*”, Thèse de Doctorat, Université Djillali LIABES de Sidi-Bel-Abbes, Algérie, 2018.

[15] J.C. Turbatte, “*Etude par Simulation Numérique du Dommage d'Irradiation dans les Alliages Fe-Cu*”, Thèse de Doctorat, Université des Sciences et Technologies de Lille, 1997.

[16] J.A. Brinkman, “*On the nature of radiation damage in metals*”, *J. Appl. Phys.* **25**, 961(1954).

Doi : 10.1063/1.1721810

[17] A. Seeger, Proc. 2nd. U.N. Conf on Peaceful Uses of Atomic Energy, IAEA, Geneva, Vol **6**, 1958.

[18] L.A. Beavan, R.M. Scanlan, D.N. Seidman, “*The defect structure of depleted zones in irradiated tungsten*”, *Acta Met.* **19**, 1339 (1971).

Doi : 10.1016/0001-6160(71)90071-X

[19] 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, Université de Toulouse, France, 2011.

[20] G.S. Was, “*Fundamentals of Radiation Materials Science*”, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007.

[21] W. Eckstein, “*Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*”, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1991.

[22] H. Bethe, *Z. Phys.* **14**, 531 (1938).

[23] F. Bloch, *Z. Phys.* **81**, 363 (1933).

[24] P. Salou, “*Interaction ion-surface: simulation de l'interaction plasma-paroi (ITER)*”, Thèse de Doctorat, l'Université de Caen Basse-Normandie, France, 2013.

[25] C.P. Race, “*The Modelling of Radiation Damage in Metals using Ehrenfest Dynamics*”, Springer Theses, Springer-Verlag, Berlin 2010.

[26] A. Scholtz, C. Lehmann, “*Stability problems, low-energy-recoil events, and vibrational behavior of point defects in metals*”, *Phys. Rev. B* **6**, 813 (1972).

Doi: 10.1103/PhysRevB.6.813

[27] S. Schlutig, “*Contribution à l’étude de la pulvérisation et de l’endommagement du dioxyde d’uranium par les ions lourds rapides*”, Thèse de doctorat, Université de Caen Basse-Normandie, France, 2001.

[28] J. Lindhard, M. Scharff, H.E. Schiott, “*Range concepts and heavy ion ranges (Notes on atomic collisions, II)*”, *Mat Fys Medd Dan Vid Selsk*, **33**, 1 (1963).

[29] M.J. Norgett, M.T. Robinson, I.M. Torrens, “*A proposed method of calculating displacement dose rates*”, *Nucl. Eng. Des.* **33**, 50 (1975).

Doi : 10.1016/0029-5493(75)90035-7

[30] M.T. Robinson, “*Basic physics of radiation damage production*”, *J. Nucl. Mater.* **216**, 1 (1994).

Doi : 10.1016/0022-3115(94)90003-5

[31] C.H.M. Broeders, A.Y. Konobeyev, “*Defect Production Efficiency in Metals under Neutron Irradiation*”, *J. Nucl. Mater.* **328**, 197 (2004).

Doi : 10.1016/j.jnucmat.2004.05.002

[32] M.J. Caturla, T.D. de la Rubia, M. Victoria, R.K. Corzine, M.R. James, G.A. Greene, “*Multiscale modeling of radiation damage: applications to damage production by GeV proton irradiation of Cu and W, and pulsed irradiation effects in Cu and Fe*”, *J. Nucl. Mater.* **296**, 90 (2001).

Doi : 10.1016/S0022-3115(01)00569-4

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

[34] A.Y. Konobeyev, U. Fischer, Y. A. Korovin, S. P. Simakov, “*Evaluation of effective threshold displacement energies and other data required for the calculation of advanced atomic displacement cross-sections*”, *Nuclear Energy and Technology*, **3**, 169 (2017).

Doi : 10.1016/j.nucet.2017.08.007

Chapitre 3 : Résultats et discussion

3.1 Introduction

Nous dressons dans ce chapitre les résultats de la simulation de l'irradiation du platine. Les calculs sont effectués moyennant le programme Marlowe basé sur le modèle théorique de l'approximation des collisions binaires. Après le calcul du rayon de recombinaison, et le nombre de paires de Frenkel permanentes, nous donnons le nombre d'atomes déplacés, et leur taux qui subsistent après la recombinaison. Nous établissons aussi la distribution spatiale des défauts ainsi que le volume de la zone endommagée par l'irradiation.

L'étude des caractéristiques des cascades de déplacements nécessite l'accumulation d'une grande quantité de statistiques vu que ces cascades sont des collisions atomiques qui ont un caractère aléatoire. Ainsi, nous avons simulé pour chaque énergie du primaire une série de 1000 cascades. Chaque cascade est initiée avec un atome du réseau lancé avec une énergie cinétique initiale bien déterminée. Dans ce type d'irradiation qui est dit interne, la direction de l'impulsion initiale de mouvement du primaire est choisie isotrope dans tout l'espace. Les collisions entre les atomes sont régies par un potentiel d'interaction atomique de paire. Le modèle de Debye est utilisé pour décrire les vibrations thermiques des atomes du réseau autour de leurs positions d'équilibre. Toutes les collisions avec un paramètre d'impact inférieur ou égal au paramètre d'impact maximum s_{\max} sont autorisées. Un atome du réseau heurté est ajouté à la cascade s'il surmonte une énergie de liaison égale à l'énergie de cohésion du matériau (notée E_{th}). Dans un événement de remplacement, l'énergie de liaison considérée est E_r , alors qu'elle est E_b pour un atome déjà déplacé auparavant et en position interstitiel. Tous les atomes en mouvement dans une cascade sont suivis tant que leur énergie cinétique est supérieure à l'énergie de coupure E_c .

3.2 Paramètres de simulation

Le platine est un métal noble (avec l'argent et l'or) et de transition de numéro atomique $Z = 78$ [1] et de masse atomique $W = 195.084$ uma [2]. Il est de couleur blanche à gris-blanc, à reflet métallique, brillante. Il est malléable et très ductile. C'est aussi un élément rare et par conséquent précieux. Il est lourd de densité $21.45 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ (à $20 \text{ }^\circ\text{C}$) [3, 4]. Il est un bon conducteur de la chaleur et de l'électricité. Son coefficient de dilatation thermique est proche de celui du verre. Il présente un point de fusion élevé de l'ordre de 2041.3 K [5] et une stabilité chimique hors pair. La structure cristalline du platine est cubique à faces centrées avec une constante du réseau $a = 3.9242 \text{ \AA}$ [6] (voir figure 3.1).

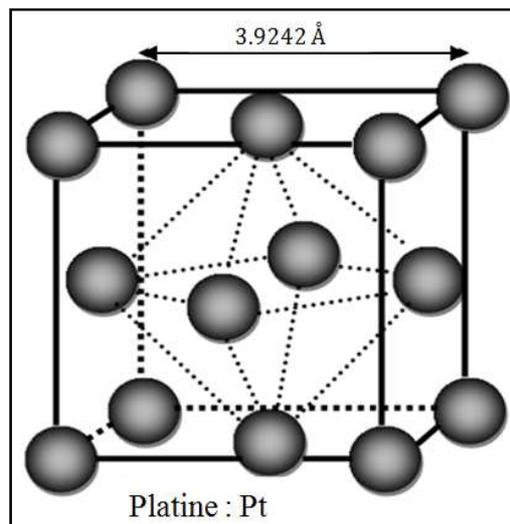


Figure 3.1. Maille élémentaire du platine.

Nous avons étudié des cascades de déplacements initiées par des primaires d'énergie cinétique 10, 15, 20, 25 et 30 keV. Pour chacune de ces énergies nous avons simulé 1000 cascades. Lors du développement d'une cascade, les interactions entre les atomes du platine en collision sont modélisées par le potentiel universel Ziegler-Biersack-Littmark (ZBL) [7]. C'est un potentiel de paires de type répulsif dont l'expression pour l'interaction Pt-Pt est donnée par :

$$V(r) = \frac{87607.47}{r} \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r/a_{ZBL})}, \quad (3.1)$$

où 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 paramètre d'écran a_{ZBL} est évalué dans le programme à partir de la relation :

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

avec a_B le rayon de Bohr ($a_B = 0.529 \text{ \AA}$). Pour l'interaction Pt-Pt nous avons $a_{ZBL} = 0.08597 \text{ \AA}$.

La figure 3.2 illustre la variation du potentiel d'interaction atomique ZBL entre deux atomes de platine en collision en fonction de la distance qui les sépare.

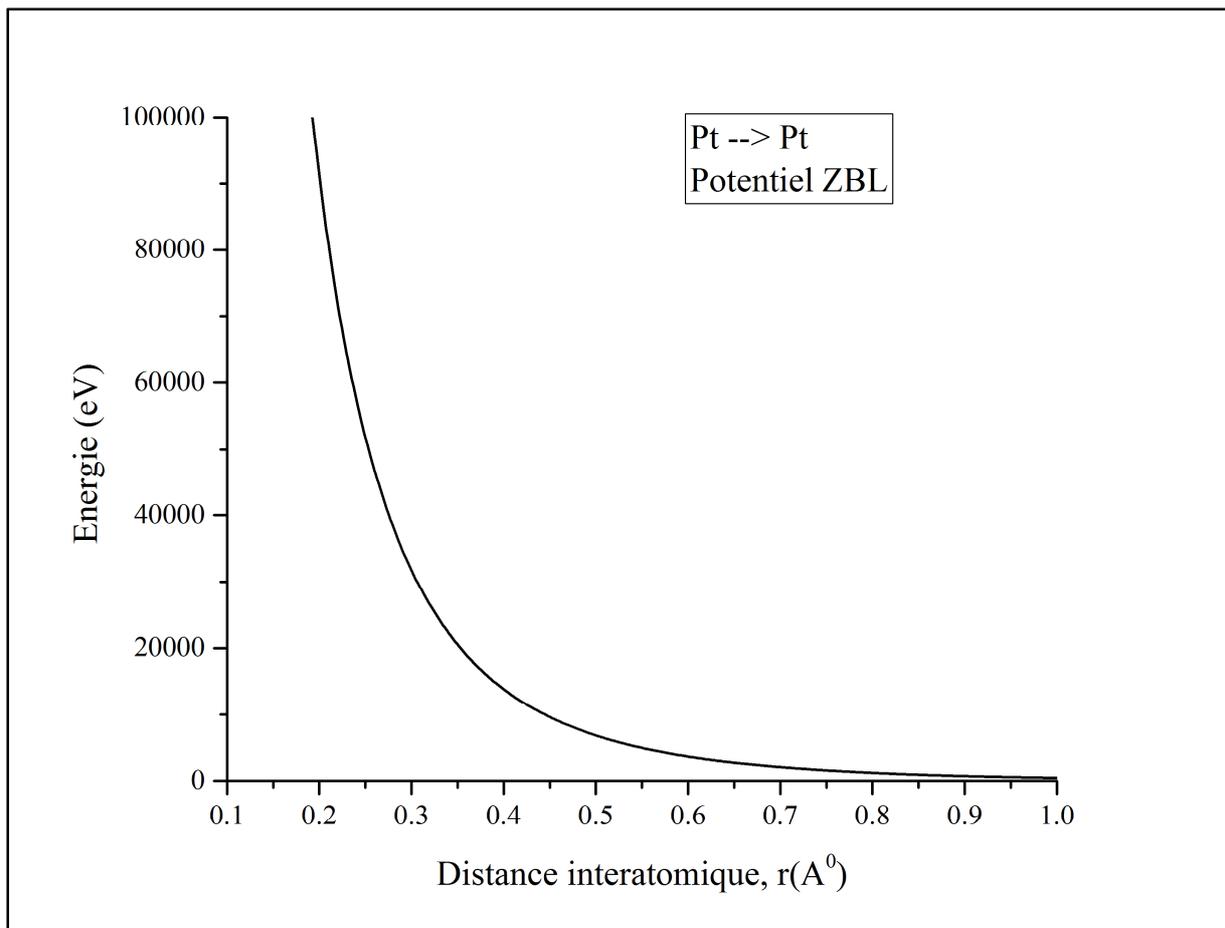


Figure 3.2. Potentiel d'interaction atomique ZBL entre deux atomes de platine.

Lors du développement d'une cascade, les énergies de liaison suivantes sont utilisées; pour le déplacement $E_{th} = 5.84$ eV [8], le redéplacement $E_b = 0$ eV et le remplacement $E_r = 0.2$ eV. Pour l'énergie de coupure une valeur égale à celle du déplacement est utilisée. Le nombre de collisions qu'un projectile peut faire est contrôlé par le paramètre d'impact maximum $s_{max} = 0.71 a$. Les calculs sont faits pour une température du matériau de 300 K. La température de Debye du platine à la température ambiante est $T_D = 225.0$ K [9]. Nous dressons sur le tableau 3.1 certaines propriétés importantes du platine.

Tableau 3.1. Certaines propriétés du platine

| | |
|--------------------------------|---|
| Symbole | Pt |
| Numéro atomique | 78 |
| Masse atomique | 195.084 ± 0.009 uma |
| Point de fusion | 2041.3 K |
| Groupe | 10 |
| Configuration électronique | [Xe] $4f^{14} 5d^9 6s^1$ |
| Groupe de symétrie | Fm $\bar{3}m$ (N° 225) |
| Rayon atomique | 135 pm |
| Énergies d'ionisation | 1 ^{re} : 8.9588 eV 2 ^{ème} : 18.563 eV |
| Masse volumique | $21,45 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ (20 °C) |
| État ordinaire | Solide |
| Système cristallin | Cubique à faces centrées $a = b = c = 3.9242 \text{ \AA}$, $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ |
| Point d'ébullition | 4149 ± 20 K |
| Conductivité électrique | $9,66 \times 10^6 \text{ S} \cdot \text{m}^{-1}$ |
| Conductivité thermique | $71,6 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ |
| Energie de cohésion | 5.84 eV/atome |
| Température de Debye (à 298 K) | 225.0 K à 300K |

3.3 Détermination du rayon de recombinaison

L'énergie communiquée au primaire est utilisée dans la création des lacunes et des interstitiels et l'excitation des électrons atomiques du milieu. Après l'épuisement de cette énergie, les lacunes et les interstitiels sont organisés suivant la distance de séparation lacune-interstitiel en trois classes de paires de Frenkel. Le programme cherche la plus courte distance de séparation interstitiel-lacune dans la cascade, puis la distance suivante et ainsi de suite jusqu'à ce que tous les interstitiels et les lacunes produits soient appariés.

Pour la première classe nommée "paires proches", le site le plus proche de l'interstitiel est vide. Pour la deuxième catégorie, appelée "paires voisines", le site le plus proche de l'interstitiel est occupé ou déjà apparié mais un site voisin est vide et non apparié. Toutes les paires restantes sont répertoriées dans la classe dite "paires distantes". Les paires "proches" et "voisines" sont considérées par le programme comme instables et ils ne sont pas comptés parmi les défauts permanents de la cascade. Dans les matériaux polyatomiques, la paire de Frenkel est dite « appropriée » si l'interstitiel est du type approprié pour occuper le site vacant, sinon la paire est dite « inappropriée ». Lorsque l'interstitiel est éjecté du site avec lequel est apparié, la paire est dite « corrélée ». Si non, elle est dite « non-corrélée » [10].

La figure 3.3 montre les lacunes et les interstitiels membres des paires de Frenkel distantes formés dans des cascades de déplacements initiées avec des primaires de 10, 15, 20, 25 et 30 keV. Les résultats indiquent que le nombre de défauts ponctuels augmente en fonction de l'énergie cinétique du primaire. Il apparaît, aussi, que les cascades n'ont pas une forme caractéristique bien définie et que les atomes en positions interstitiels sont immobilisés dans des positions éloignées du centre de la cascade.

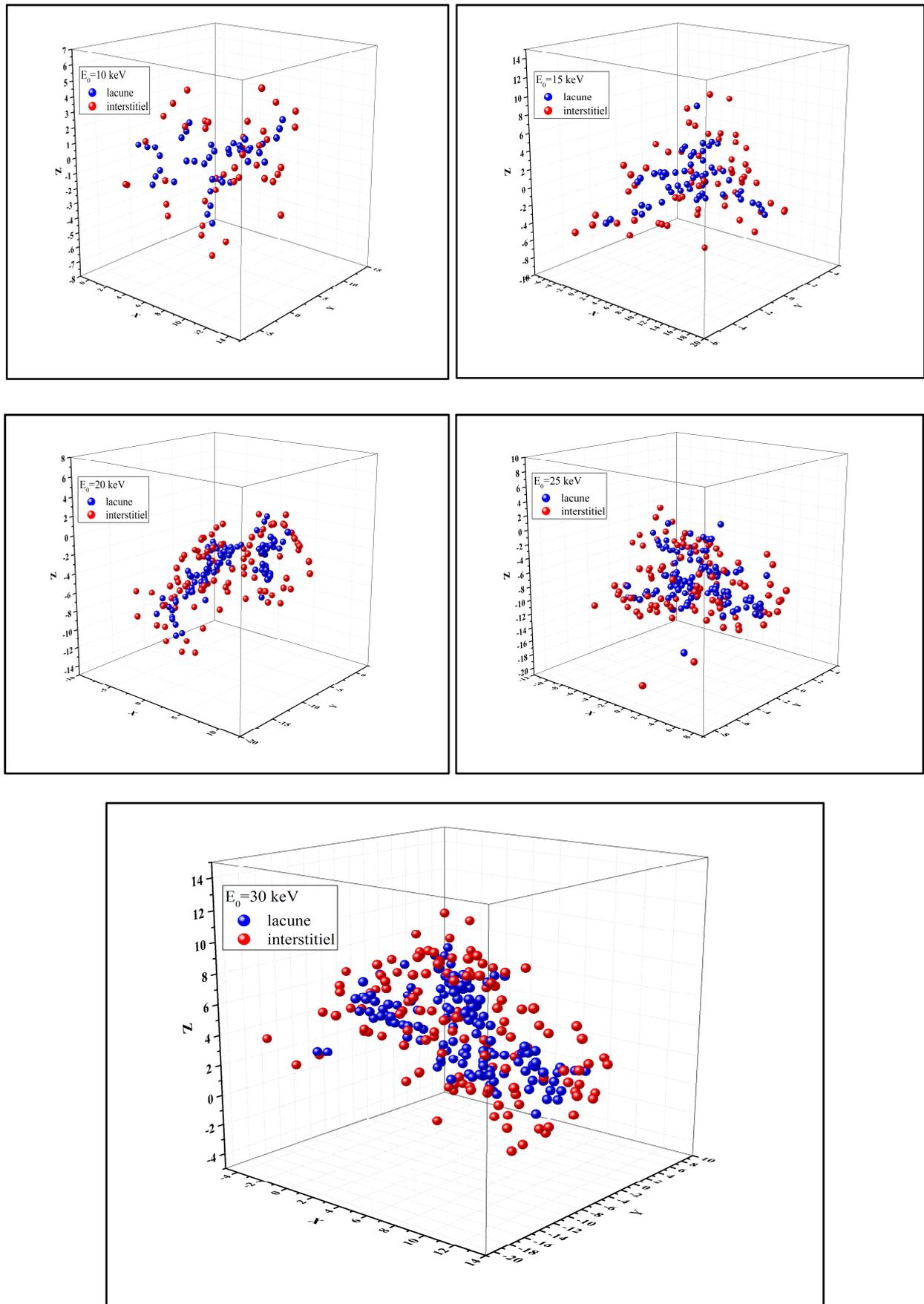


Figure 3.3. Lacunes et interstitiels dans le platine irradié avant recombinaison.

À partir des coordonnées spatiales des lacunes et des interstitiels des paires de Frenkel distantes une fonction de distribution est construite. Cette fonction donne pour une distance de séparation lacune-interstitiel, r_{VI} , le nombre de paires de Frenkel distantes dont la distance de séparation est supérieure à r_{VI} . Un exemple de telle fonction est donné sur la figure 3.4 pour les paires distantes dans le platine irradié avec des primaires de 10, 15, 20, 25 et 30 keV. Toutes les courbes montrent une diminution rapide du nombre de paires de Frenkel dès que la distance de séparation interstitiel-lacune dépasse la valeur $1.25a$. Ce comportement traduit le fait que la plupart des atomes en positions interstitiels ont terminé leur parcours très proches des sites vacants.

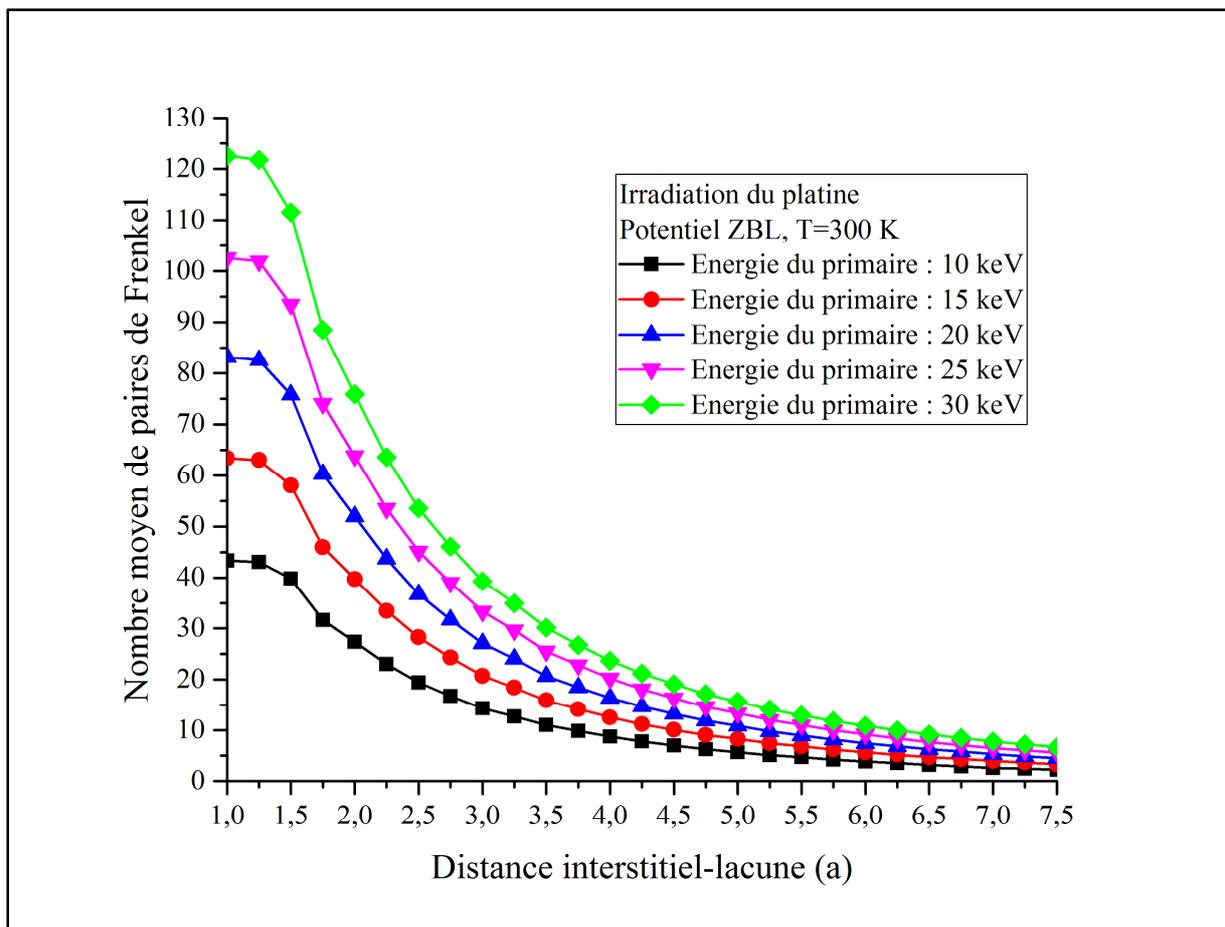


Figure 3.4. Nombre moyen de paires de Frenkel distantes dans le platine irradié.

Bien que les méthodes de simulation de l'irradiation des matériaux qui reposent sur l'approximation des collisions binaires présentent des avantages précieux concernant la simplicité de la programmation, la rapidité des calculs et l'adaptation pour l'irradiation à hautes énergies mais leur inconvénient réside dans leur incapacité à tenir compte du phénomène important de la diffusion thermique des lacunes et des interstitiels. En effet, la diffusion thermique des défauts ponctuels dans les matériaux permet le rapprochement des lacunes et des interstitiels et joue ainsi un rôle crucial dans le processus de guérison qui se produit dans la cascade. Les résultats établis des études effectuées sur plusieurs matériaux irradiés indiquent que le nombre de défauts ponctuels permanents est beaucoup plus faible que celui prédit par la simulation basée sur l'approximation des collisions binaires. Nous dressons dans le tableau 3.2, le nombre de défauts de Frenkel obtenu à partir des différents modèles présentés dans le chapitre précédent. Nous avons utilisé pour les calculs, les relations (2.45), (2.46) et (2.50).

Tableau 3.2. Nombre de paires de Frenkel obtenu de différents modèles.

| Energie du primaire (keV) | Modèles de calcul des Défauts de Frenkel | | |
|---------------------------|--|------------|----------------|
| | Modèle KP | Modèle NRT | Modèle arc-dpa |
| 1 | 12 | 8 | 2 |
| 5 | 60 | 39 | 5 |
| 10 | 119 | 77 | 9 |
| 15 | 179 | 113 | 13 |
| 20 | 238 | 150 | 17 |
| 25 | 298 | 185 | 21 |
| 30 | 357 | 221 | 25 |
| 50 | 595 | 360 | 41 |
| 70 | 833 | 496 | 56 |
| 100 | 1190 | 696 | 78 |

Pour réduire la surestimation du nombre de défauts de Frenkel, un volume d'instabilité est introduit dans Marlowe [11 - 13]. Si la distance de séparation lacune-interstitiel est supérieure au rayon de ce volume d'instabilité, r_V , appelé aussi rayon de recombinaison, alors la paire de Frenkel est supposée stable. Si non, on considère que la paire de Frenkel est instable et qu'il y a recombinaison entre la lacune et l'interstitiel. La recombinaison ainsi définie est athermique et isotrope. Le rayon de recombinaison dépend du potentiel d'interaction atomique utilisé [14]. Ce procédé permet, donc, la réduction du nombre final de défauts de Frenkel estimé par la BCA et de s'aligner sur les résultats obtenus par la dynamique moléculaire.

La connaissance préalable du nombre de défauts de Frenkel permanents permet le réglage des paramètres énergétiques de Marlowe et l'estimation du rayon de recombinaison. Dans le cas du platine irradié, nous avons établi le rayon de recombinaison de la manière décrite ci-après. Nous avons calculé du modèle arc-dpa (expression (2.50)) le nombre de défauts de Frenkel permanents pour les énergies du primaire 10, 15, 20, 25 et 30 keV. Les paramètres du modèle utilisés pour le platine sont donnés dans Ref [15]. La valeur de l'énergie seuil de déplacement est $E_d = 42$ eV, alors que les coefficients $b_{arc\ dpa}$ et $c_{arc\ dpa}$ ont pour valeurs -1.1216135 et 0.1115884 respectivement. Nous utilisons Marlowe pour simuler des cascades de déplacements (1000 cascades) pour chaque énergie cinétique du primaire et pour différentes valeurs de rayon de recombinaison. De cette manière nous pouvons déterminer le rayon de recombinaison qui permet à Marlowe de donner le même nombre de défauts de Frenkel que le modèle arc-dpa. Les résultats des calculs sont dressés dans le tableau 3.3 et la figure 3.5.

Tableau 3.3. Nombre moyen de paires de Frenkel calculé par arc-dpa et Marlowe.

| | Nombre moyen de paires de Frenkel | | | |
|---------------|--|-------------------------------|------------------------|------------------------|
| | arc-dpa | Marlowe avec le potentiel ZBL | | |
| Energie (keV) | $b_{\text{arc dpa}} = -1.1216135$ $c_{\text{arc dpa}} = 0.1115884$ $E_d = 42 \text{ eV}$ | $r_v = 3.25 \text{ a}$ | $r_v = 3.75 \text{ a}$ | $r_v = 4.25 \text{ a}$ |
| 10 | 9 | 11 | 9 | 7 |
| 15 | 13 | 16 | 13 | 10 |
| 20 | 17 | 21 | 16 | 13 |
| 25 | 21 | 26 | 20 | 16 |
| 30 | 25 | 30 | 24 | 19 |

Comme le montre les résultats des différentes simulations, la concordance entre les nombres de paires de Frenkel obtenus de Marlowe et ceux du arc-dpa est trouvée pour le rayon de recombinaison $3.75a$.

Il faut noter que les études des matériaux irradiés indiquent que le rayon de recombinaison dépend, en général, du potentiel d'interaction atomique utilisé dans les calculs [14].

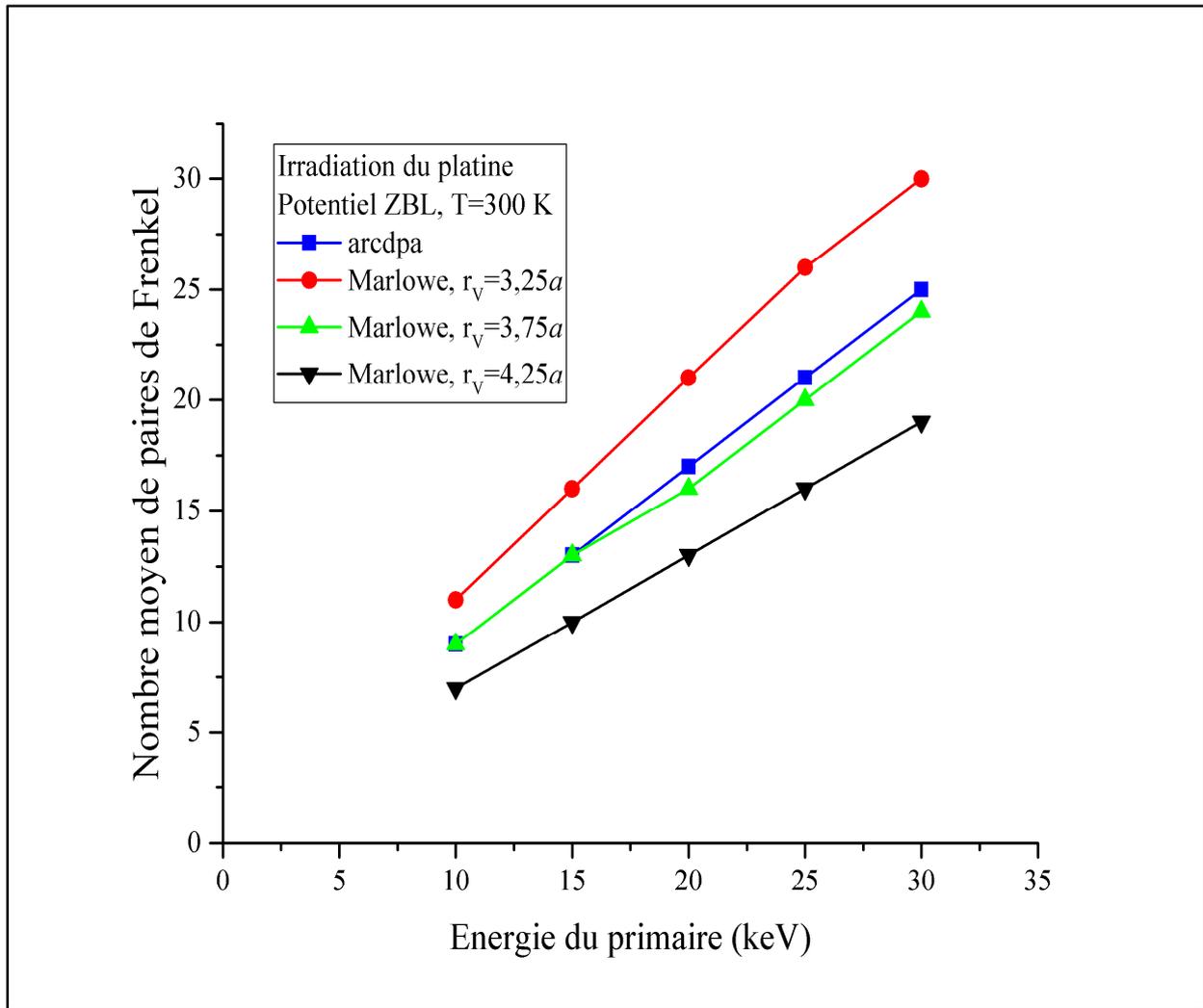


Figure 3.5. Ajustement du rayon de recombinaison.

L'obtention des coordonnées des lacunes et des interstitiels qui survivent à la recombinaison (c'est-à-dire les défauts ponctuels permanents) de Marlowe permet de visualiser la configuration finale de la cascade. La figure 3.6 illustre les cinq cascades obtenues dans l'irradiation du platine par des primaires d'énergie cinétique 10, 15, 20, 25 et 30 keV. La comparaison de ces cascades avec celles de la figure 3.3 montre clairement que la recombinaison permet d'enlever un grand nombre de défauts.

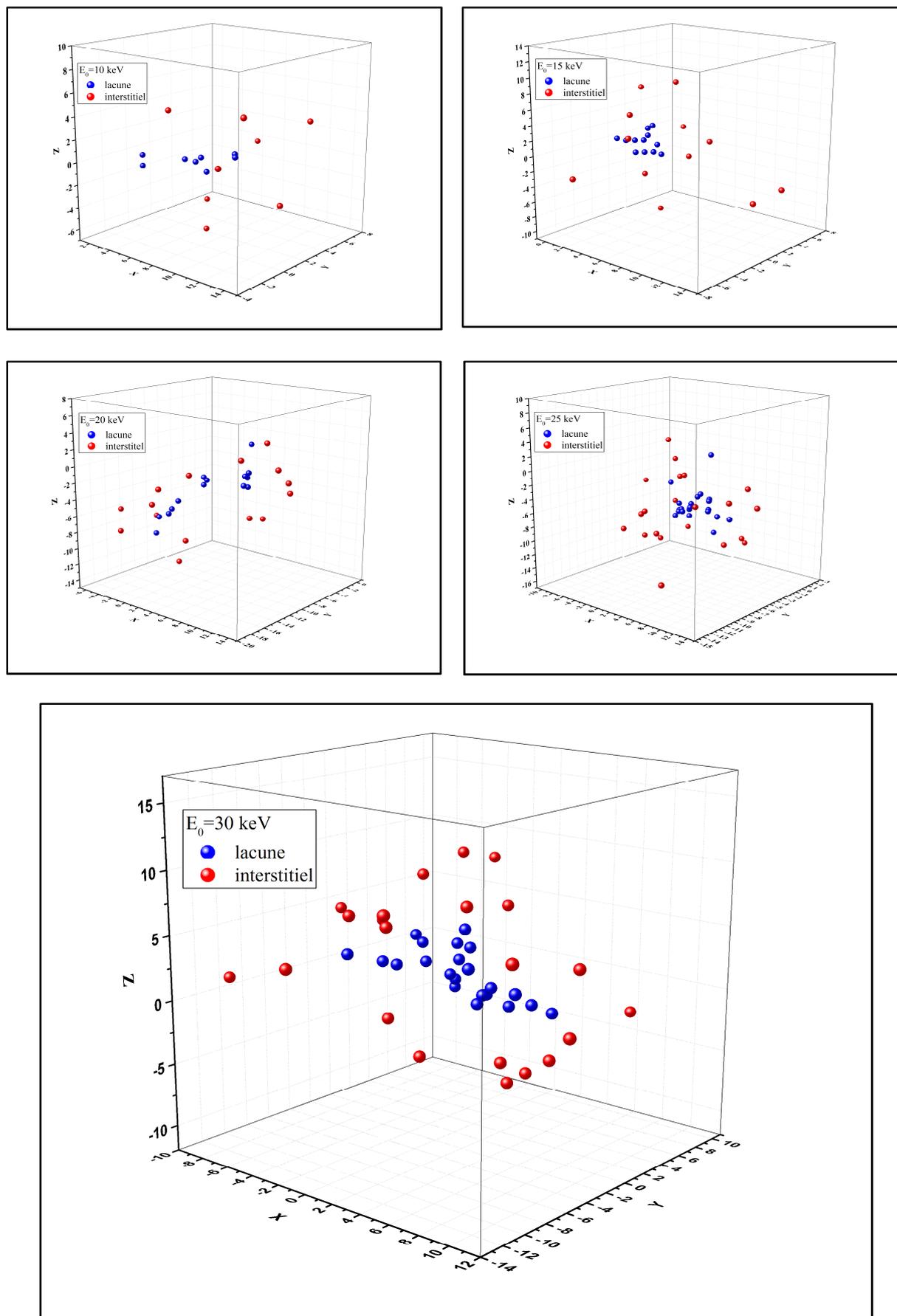


Figure 3.6. Cascades de déplacements dans le platine irradié après recombinaison.

3.4 Atomes de réseau déplacés

La figure 3.7 schématise les histogrammes donnant le nombre moyen d'atomes de réseau déplacés du platine dans des intervalles de temps réguliers de 10 fs. Les cascades de déplacements sont obtenues pour les énergies des primaires 15, 20, 25 et 30 keV. Les quatre histogrammes ont la même allure. L'énergie du primaire est dissipée dans des collisions élastiques avec les atomes du réseau et des collisions inélastiques traduisant l'excitation des électrons atomiques. Le primaire déloge les atomes du réseau se trouvant le long de son passage. Les atomes secondaires déplacent à leur tour les atomes voisins et ainsi de suite. On enregistre, ainsi, un accroissement du nombre d'atomes déplacés. Cette tendance persistera tant que les atomes mobiles ont suffisamment d'énergie pour éjecter les atomes immobiles du réseau. Le maximum est atteint entre 80 et 100 fs du début de la cascade. Notons qu'à chaque événement de déplacement une énergie de 5.84 eV est consommée, alors qu'elle est de 0.2 eV pour l'événement de remplacement. La perte perpétuelle de l'énergie cinétique des atomes mobiles fait que l'énergie transmise aux atomes cibles décroît avec le temps et le nombre d'atomes du réseau déplacés diminue jusqu'à ce qu'il n'y aura aucun déplacement. Les résultats de la simulation montrent que plus un primaire est énergétique plus il provoque de collisions et d'atomes de réseau déplacés. Par exemple, comme le montre le tableau 3.4, lorsque l'énergie cinétique passe de 10 keV à 20 keV le nombre d'atomes déplacés augmente deux fois.

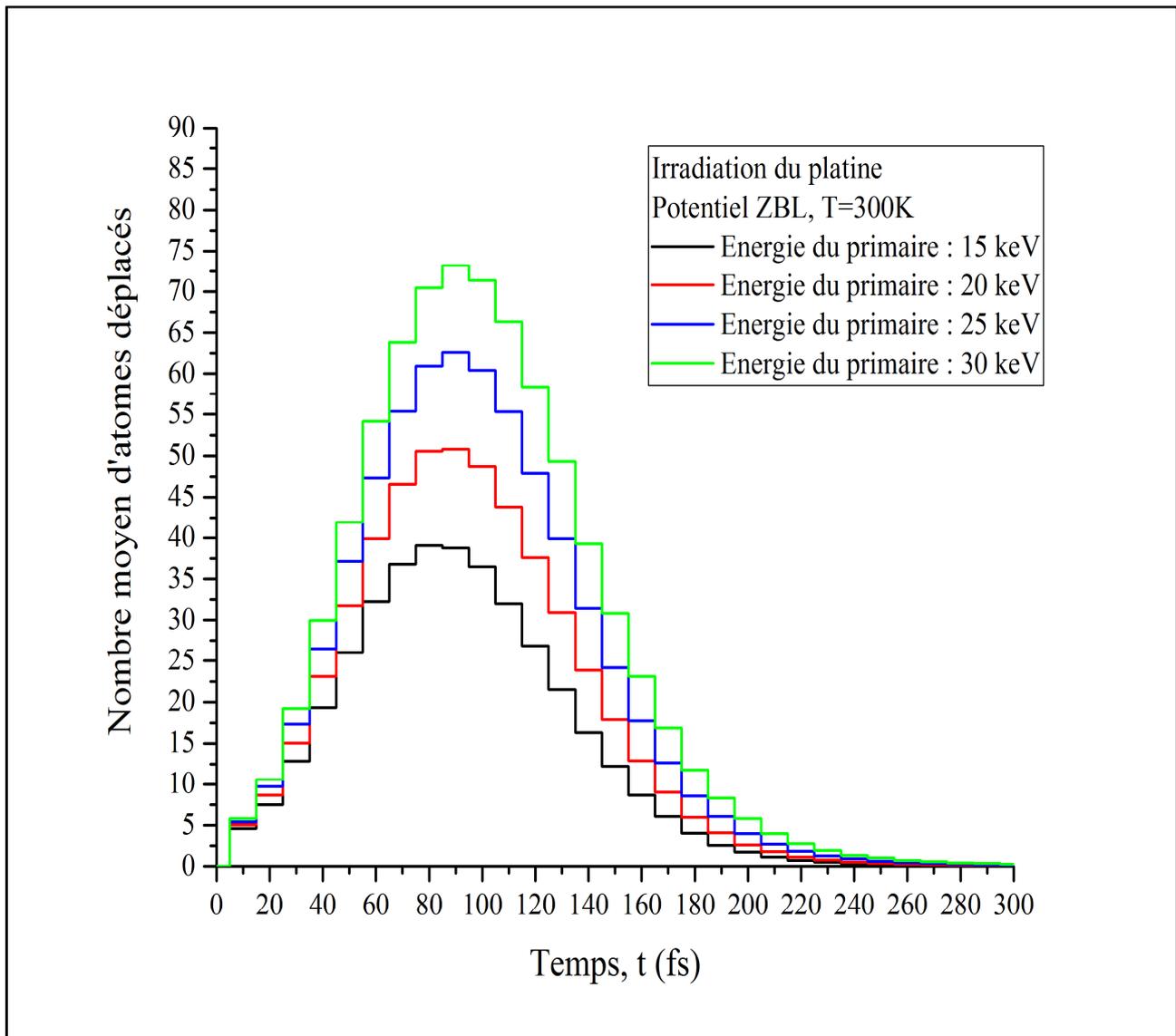


Figure 3.7. Histogrammes d'atomes déplacés dans le platine irradié.

Le tableau 3.4 regroupe quelques propriétés des cascades de déplacements développées dans le platine pour des primaires de 10, 15, 20, 25 et 30 keV. De l'énergie cinétique initiale donnée au primaire, environ 10% est perdue dans l'excitation des électrons du milieu. Le reste est disponible pour produire des déplacements atomiques. Dans ces déplacements, les nouvelles positions des atomes restent très proches à leurs positions initiales dans le réseau comme le montre le nombre de paires proches et voisins dans le tableau. Pour toutes les énergies, il y a environ 10% d'atomes déplacés du réseau qui constituent des

membres de paires distantes. Et la plupart des atomes déplacés des ces paires distantes ne survivent pas à la recombinaison. C'est environ 20% de ces atomes qui constituent des défauts permanents.

Tableau 3.4. Quelques propriétés des cascades dans le platine irradié.

| | Energie du primaire (keV) | | | | |
|-------------------------------------|---------------------------|---------|---------|---------|---------|
| | 10 | 15 | 20 | 25 | 30 |
| Nombre de collisions | 1533.11 | 2282.71 | 3026.07 | 3765.31 | 4495.74 |
| Nombre d'atomes de réseau déplacés | 424.497 | 628.034 | 827.728 | 1027.28 | 1224.47 |
| Nombre d'atomes redéplacés | 25.0590 | 40.2260 | 57.2190 | 73.9650 | 89.2010 |
| Energie inélastique perdue (eV) | 764.469 | 1321.27 | 1935.81 | 2601.19 | 3293.02 |
| Energie disponible pour le dégât | 9235.53 | 13678.7 | 18064.2 | 22398.8 | 26707.0 |
| Nombre de remplacements | 74.1780 | 109.045 | 143.722 | 178.974 | 212.720 |
| Nombre total de paires proches | 164.507 | 244.973 | 323.505 | 402.355 | 480.472 |
| Nombre total de paires voisines | 53.749 | 80.509 | 108.125 | 135.331 | 161.444 |
| Nombre total de paires distantes | 43.6080 | 63.8500 | 83.6800 | 103.235 | 123.324 |
| Nombre de paires permanentes | 8.75100 | 12.5680 | 16.4160 | 20.2160 | 23.6820 |
| paires permanentes/paires distantes | 20% | 19.7% | 19.6% | 19.6% | 19.2% |

3.5 Distribution spatiale des défauts

Lorsqu'on examine la configuration finale des différentes cascades de déplacements illustrées sur la figure 3.6, et dont on a reproduit l'une d'elle sur la figure 3.8, on constate qu'elles ont une caractéristique commune. Bien que les collisions atomiques ont un caractère aléatoire, la disposition finale des lacunes et des interstitiels est semblable dans toutes les cascades. On trouve les lacunes regroupées ensemble et occupent majoritairement le cœur de la cascade, alors que les interstitiels sont expulsés vers l'extérieur et peuplent la périphérie de la cascade. Cette configuration des cascades de déplacements n'est pas spécifique au platine

irradié mais elle est observée dans tous les matériaux irradiés. Elle était d'ailleurs prédite par Seeger [16] et confirmée expérimentalement par microscopie ionique [17].

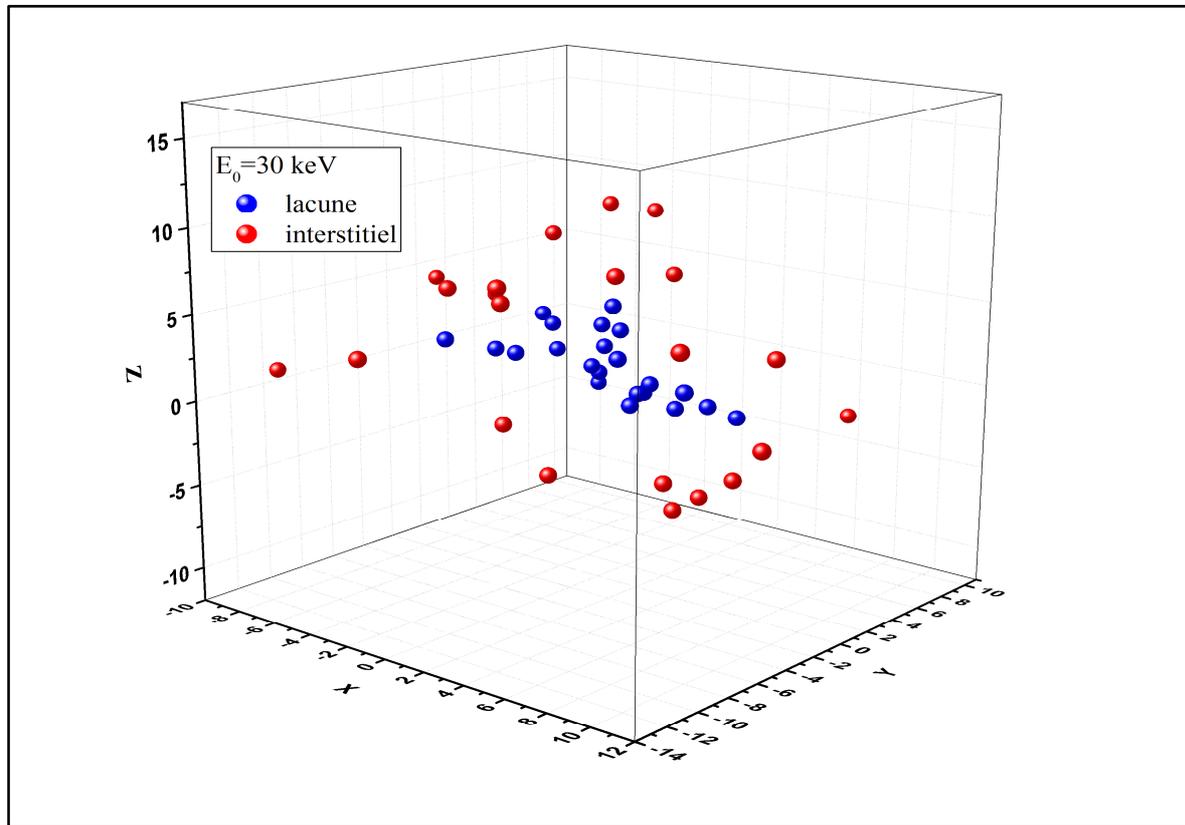


Figure 3.8. Distribution spatiale des défauts permanents dans une cascade de 30 keV dans le platine.

3.6 Volume de la zone endommagée

Lorsqu'un dispositif est exposé à un rayonnement constitué de particules énergétiques, des dégâts sont provoqués dans les matériaux composant ce dispositif. Le bon fonctionnement du matériel et l'estimation de sa durée de vie nécessite une évaluation de l'étendu des dégâts de l'irradiation. Il est donc précieux d'estimer le volume de la zone endommagée par la formation des lacunes et d'interstitiels. Cette zone n'a pas, en général, une forme géométrique régulière. Lorsqu'on simule l'irradiation d'un matériau, la morphologie des cascades de déplacements change d'une cascade à une autre comme conséquence au caractère aléatoire des collisions atomiques. Pour une étude fiable, nous simulons plusieurs cascades de

déplacements (dans notre cas 1000 cascades), nous déterminons le volume de chaque cascade puis nous faisons une distribution des volumes pour extraire des informations sur la région endommagée. La méthode la plus utilisée pour estimer le volume d'une cascade est la méthode d'analyse en composantes principales (ACP) [16, 17]. Elle consiste à remplacer la cascade par un ellipsoïde construit à partir des positions spatiales des défauts ponctuels. Cet ellipsoïde est défini par les longueurs de ses trois axes principaux (a_0 , b_0 , c_0) (figure 3.9). Le volume de la cascade est alors approché par le volume de l'ellipsoïde ($V=4\pi a_0 b_0 c_0/3$). La technique ACP appliquée à chacune des 1000 cascades, permet ensuite de faire une distribution de volumes.

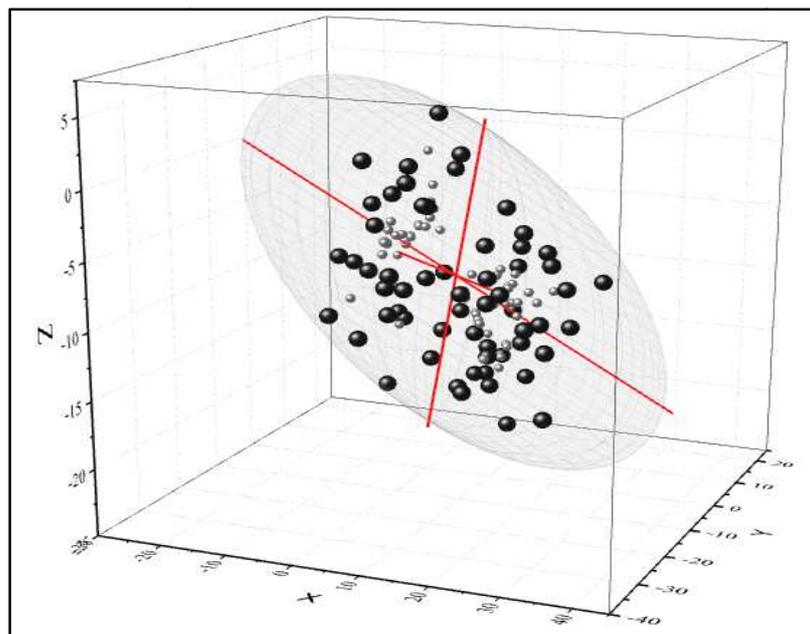


Figure 3.9. Représentation de la méthode d'analyse en composantes principales.

La figure 3.10 illustre les distributions de volumes obtenues pour des primaires de 10, 20 et 30 keV. Nous constatons une dépendance des distributions à l'énergie cinétique du primaire. On observe la formation de cascades plus volumineuses lorsque l'énergie du primaire augmente (voir tableau 3.5). Les distributions sont toutes asymétriques et étirées vers les volumes les plus élevés. Ce qui traduit une grande variabilité.

Tableau 3.5. Certaines caractéristiques des distributions de volumes dans le platine irradié.

| | Energie du primaire | | | | |
|--------------------------|---------------------|----------|----------|-----------|-----------|
| | 10 keV | 15 keV | 20 keV | 25 keV | 30 keV |
| Volume minimum (a^3) | 29.8122 | 60.664 | 77.7961 | 108.2646 | 120.2536 |
| Volume moyen (a^3) | 95.8692 | 145.5030 | 190.0471 | 242.7215 | 304.7881 |
| Volume maximum (a^3) | 410.7993 | 525.8252 | 976.2325 | 1076.2248 | 2256.0241 |
| Classe modale (a^3) | 50-100 | 100-150 | 150-200 | 150-200 | 200-250 |

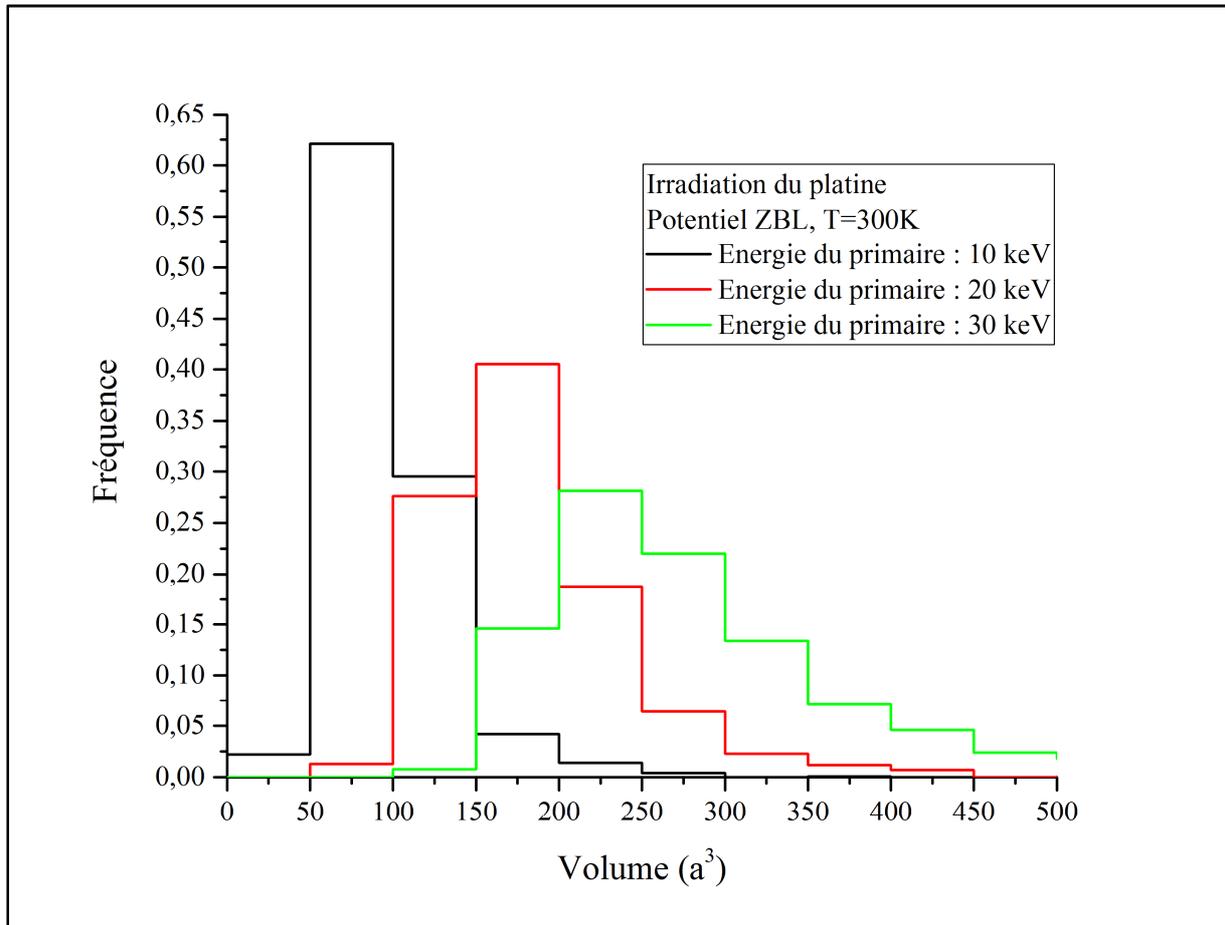


Figure 3.10. Distributions de volumes dans le platine irradié.

Références bibliographiques

[1] N.J. Connelly, T. Damhus, R. M. Hartshorn, A.T. Hutton, “*Nomenclature of Inorganic Chemistry: IUPAC Recommendations 2005*”, Cambridge: RSC Publishing, 2005.

[2] M.E. Wieser, T.B. Coplen, “*Atomic weights of the elements 2009 (IUPAC Technical Report)*”, *Pure and Applied Chemistry*, **83**, 359(2011).

DOI :10.1351/PAC-REP-10-09-14

[3] D.R. Lide, “*CRC Handbook of Chemistry and Physics*”, CRC Press Inc, 90^e édition, (2009)

[4] C.L. Yaws, “*The Yaws Handbook of Physical Properties for Hydrocarbons and Chemicals*”, Houston, TX: Gulf Publishing Company, 2005.

[5] J.W. Arblaster, “*Vapour Pressure Equations for the Platinum Group Elements*”, *Platinum Metals Review*, **51**, 130 (2007).

DOI :10.1595/147106707X213830

[6] Y. Waseda, K. Hirata, M. Ohtani, “*High-temperature thermal expansion of platinum, tantalum, molybdenum, and tungsten measured by X-ray diffraction*”, *High Temp. High Pressures*, **7**, 221(1975).

[7] 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.

[8] C. Kittel, “*Introduction to Solid State Physics*”, 8th edition, John Willey & Sons, Inc, 2005.

[9] C.Y. Ho, R.W. Powell, P.E. Liley, “*Thermal Conductivity of the Elements: A Comprehensive Review*”, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **3**, I-10 (1974).

[10] M.T. Robinson, “*MARLOWE: computer simulation of atomic collisions in crystalline solids*”, (Version 15a), RSICC Code Package PSR-137 (Report).

[11] A. Scholtz, C. Lehmann, “*Stability problems, low-energy-recoil events, and vibrational behavior of point defects in metals*”, *Phys. Rev. B*, **6**, 813 (1972).

Doi : 10.1103/PhysRevB.6.813

[12] G. Vizkelenty, S.M. Foiles, “*Determination of recombination radius in Si for binary collision approximation codes*”, *Nucl. Instrum. Methods*, **B 371**, 111 (2015).

[13] M. Hou, C.J. Ortiz, C.S. Becquart, C. Domain, U. Sarkar, A. De Backer, “*Microstructure evolution of irradiated tungsten: Crystal effects in He and H implantation as modelled in the Binary Collision Approximation*”, *J. Nucl. Mater.*, **403**, 89 (2010).

Doi : 10.1016/j.jnucmat.2010.06.004

[14] A. DJAAFRI, “*Etude des dommages créés dans le tantale (Ta) et les composés TaC et Ta₂O₅ par l’approximation des collisions binaires (BCA)* ”, Thèse de Doctorat, Université Djillali LIABES de Sidi-Bel-Abbes, Algérie, 2018.

[15] A.Y. Konobeyev, U. Fischer, Y. A. Korovin, S. P. Simakov, “*Evaluation of effective threshold displacement energies and other data required for the calculation of advanced atomic displacement cross-sections*”, *Nuclear Energy and Technology*, **3**, 169 (2017).

[16] W. Eckstein, “*Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*”, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1991.

[17] M. Hou, “*Study of displacement cascades in metals by means of component analysis*”, *Nucl. Instrum. Methods*, **182-183**, 153 (1981).

Doi : 10.1016/0029-554X(81)90683-2

Conclusion générale

Le platine est un métal de transition, noble et précieux. Il possède des propriétés physiques et chimiques particulièrement attrayantes qui font de lui un matériau de choix pour plusieurs applications. Pour déterminer le comportement du platine dans un milieu de radiation intense, nous avons simulé l'irradiation de ce matériau par le programme Marlowe qui est fondé sur le modèle de l'approximation binaires. Un grand nombre de cascades de déplacements sont générées pour accumuler suffisamment de statistique pour déterminer le nombre de défauts ponctuels produits, leur distribution spatiale et le volume de la région endommagée par l'irradiation. Chaque cascade est initiée par un primaire lancé depuis le site du réseau avec une énergie cinétique qui varie de 10 à 30keV. Le potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark est utilisé pour modéliser les interactions entre les atomes du platine en collision. La perte d'énergie consommée dans l'excitation et l'ionisation des électrons du milieu est estimée par l'approximation de Owen-Robinson. Le rayon de recombinaison est ajusté dans Marlowe par utilisation du modèle arc-dpa.

Les résultats obtenus indiquent que l'immobilisation de la plupart des atomes de réseau heurtés se fait dans un voisinage très proche des sites vacants. Il y a environ 20% de ces atomes qui constituent des défauts permanents. Les lacunes qui survivent à la recombinaison sont regroupées dans une zone centrale et elles sont entourées par les atomes déplacés dans des positions interstitiels. Les distributions de volumes témoignent d'une grande dispersion et une asymétrie prononcée qui s'étend vers les plus grands volumes.

Enfin, par ce travail, nous souhaitons apporter une contribution dans l'étude de la production des défauts dans les métaux de transition irradiés. Les effets des défauts étendus sur les propriétés physiques et mécaniques du platine pourront faire l'objet de développements futurs pour améliorer davantage notre compréhension du comportement du métal lorsqu'il est utilisé dans un environnement radioactif.

Appendice

Programme de calcul des défauts de Frenkel en utilisant le modèle arc-dpa

Program arc_dpa

```

REAL, DIMENSION(10) :: T
REAL Me,Mt,nu,k,E1,E2,E3,E4,E5
INTEGER arcdpa

Me=0.511           ! Energie au repos de l'electron
Zt=78.0           ! Numero atomique de la cible
Zi=78.0           ! Numero atomique du projectile
AT=195.084        ! Numero de masse de la cible
Ai=195.084        ! Numero de masse du projectile
a_bohr=0.529      ! Rayon de Bohr
Barcdpa=-1.1216135 ! Paramètre du modèle
Carcdpa=0.1115884 ! Paramètre du modèle
ED=42.0           ! Energie du déplacement
Mt=931.5*195.084 ! Masse de l'atome cible
pi=3.14159265

! Les energies du primaire
T=(/1000,5000,10000,15000,20000,25000,30000,50000,70000,100000/)

E1=a_bohr*(9.0*pi**2/128.0)**(1.0/3.0)
E2=sqrt(Zi**(2.0/3.0)+Zt**(2.0/3.0))
a=E1/E2
E3=(32.0/(3.0*pi))*sqrt(Me/Mt)*Zi**(2.0/3.0)
E4=sqrt(Zt)*(Ai+At)**(1.5)
E5=Ai**(1.5)*(Zi**(2.0/3.0)+Zt**(2.0/3.0))**(3.0/4.0)
k=(E3*E4)/E5

write(*, '(//,15X," CALCUL DES PAIRS DE FRENKEL")')
DO I=1,10
  epsilon=(At*a*T(I))/((Ai+At)*(Zi*Zt*14.3996))
  Tadam=T(I)/(1.0+k*(3.4008*epsilon**(1.0/6.0)+0.40244*epsilon**(3.0/4.0)+epsilon))
  NRT=NINT((0.8*Tadam)/(2.0*ED))
  nu=((1-Carcdpa)/(2.0*ED/0.8)**Barcdpa)*Tadam**Barcdpa+Carcdpa
  KP=NINT(T(I)/(2.0*ED))
  arcdpa=NINT(nu*(0.8*Tadam)/(2.0*ED))
  write(*, '(2X,"E0=",F9.2,5X,"KP=",I4,5X,"NRT=",I4,5X,"arc-dpa=",I4)')T(I),KP,NRT,arcdpa
ENDDO
END

```

Nombre moyen d'atomes déplacés du réseau dans le platine irradié.

| Temps (fs) | Nombre moyen d'atomes déplacés du réseau | | | |
|------------|--|------------------------|------------------------|------------------------|
| | $E_0 = 15 \text{ keV}$ | $E_0 = 20 \text{ keV}$ | $E_0 = 25 \text{ keV}$ | $E_0 = 30 \text{ keV}$ |
| 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 10 | 4,579 | 5,045 | 5,407 | 5,82 |
| 20 | 7,485 | 8,668 | 9,755 | 10,588 |
| 30 | 12,843 | 15,057 | 17,317 | 19,221 |
| 40 | 19,314 | 23,092 | 26,509 | 29,987 |
| 50 | 25,979 | 31,768 | 37,159 | 41,932 |
| 60 | 32,243 | 39,871 | 47,329 | 54,154 |
| 70 | 36,786 | 46,581 | 55,378 | 63,821 |
| 80 | 39,055 | 50,536 | 60,947 | 70,448 |
| 90 | 38,789 | 50,78 | 62,613 | 73,22 |
| 100 | 36,475 | 48,698 | 60,415 | 71,384 |
| 110 | 32,023 | 43,795 | 55,303 | 66,326 |
| 120 | 26,862 | 37,59 | 47,882 | 58,369 |
| 130 | 21,529 | 30,941 | 39,919 | 49,318 |
| 140 | 16,325 | 23,833 | 31,458 | 39,299 |
| 150 | 12,248 | 17,898 | 24,148 | 30,816 |
| 160 | 8,688 | 12,877 | 17,738 | 23,067 |
| 170 | 6,055 | 9,011 | 12,645 | 16,85 |
| 180 | 4,013 | 5,98 | 8,559 | 11,774 |
| 190 | 2,576 | 4,104 | 6,095 | 8,335 |
| 200 | 1,744 | 2,608 | 3,992 | 5,802 |
| 210 | 1,13 | 1,776 | 2,691 | 3,977 |
| 220 | 0,72 | 1,137 | 1,854 | 2,773 |
| 230 | 0,543 | 0,785 | 1,265 | 1,973 |
| 240 | 0,313 | 0,535 | 0,924 | 1,343 |
| 250 | 0,253 | 0,391 | 0,618 | 1,047 |
| 260 | 0,155 | 0,245 | 0,45 | 0,745 |
| 270 | 0,106 | 0,21 | 0,346 | 0,564 |
| 280 | 0,077 | 0,154 | 0,265 | 0,436 |
| 290 | 0,046 | 0,131 | 0,221 | 0,374 |
| 300 | 0,042 | 0,113 | 0,186 | 0,291 |
| 310 | 0,029 | 0,1 | 0,16 | 0,241 |
| 320 | 0,032 | 0,099 | 0,132 | 0,155 |
| 330 | 0,029 | 0,077 | 0,096 | 0,141 |
| 340 | 0,021 | 0,091 | 0,105 | 0,096 |
| 350 | 0,02 | 0,086 | 0,069 | 0,081 |
| 360 | 0,01 | 0,069 | 0,097 | 0,067 |
| 370 | 0,016 | 0,067 | 0,073 | 0,059 |
| 380 | 0,015 | 0,073 | 0,062 | 0,052 |
| 390 | 0,017 | 0,054 | 0,059 | 0,03 |
| 400 | 0,011 | 0,05 | 0,059 | 0,043 |

Nombre moyen de défauts de Frenkel distantes dans le platine irradié.

| r_{VI} (a) | Nombre moyen de paires de Frenkel distantes | | | | |
|--------------|---|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|
| | $E_0 = 10 \text{ keV}$ | $E_0 = 15 \text{ keV}$ | $E_0 = 20 \text{ keV}$ | $E_0 = 25 \text{ keV}$ | $E_0 = 30 \text{ keV}$ |
| 1 | 43,33 | 63,384 | 83,117 | 102,568 | 122,579 |
| 1,25 | 43,087 | 63,016 | 82,567 | 101,931 | 121,766 |
| 1,5 | 39,855 | 58,047 | 75,797 | 93,431 | 111,548 |
| 1,75 | 31,673 | 45,98 | 60,285 | 74,021 | 88,453 |
| 2 | 27,402 | 39,743 | 51,949 | 63,822 | 75,889 |
| 2,25 | 23,073 | 33,485 | 43,691 | 53,532 | 63,56 |
| 2,5 | 19,462 | 28,295 | 36,71 | 45,128 | 53,521 |
| 2,75 | 16,779 | 24,319 | 31,734 | 38,975 | 46,074 |
| 3 | 14,368 | 20,758 | 27,073 | 33,356 | 39,275 |
| 3,25 | 12,736 | 18,415 | 24,096 | 29,66 | 34,943 |
| 3,5 | 11,09 | 15,937 | 20,698 | 25,572 | 30,146 |
| 3,75 | 9,879 | 14,182 | 18,468 | 22,808 | 26,778 |
| 4 | 8,751 | 12,568 | 16,416 | 20,216 | 23,681 |
| 4,25 | 7,785 | 11,229 | 14,75 | 18,11 | 21,239 |
| 4,5 | 7,014 | 10,103 | 13,284 | 16,317 | 19,124 |
| 4,75 | 6,277 | 9,1 | 11,911 | 14,632 | 17,179 |
| 5 | 5,696 | 8,314 | 10,879 | 13,388 | 15,707 |
| 5,25 | 5,122 | 7,477 | 9,789 | 12,093 | 14,149 |
| 5,5 | 4,696 | 6,839 | 8,998 | 11,088 | 12,986 |
| 5,75 | 4,194 | 6,205 | 8,174 | 10,031 | 11,876 |
| 6 | 3,834 | 5,653 | 7,475 | 9,203 | 10,938 |
| 6,25 | 3,516 | 5,191 | 6,869 | 8,386 | 10,007 |
| 6,5 | 3,176 | 4,718 | 6,295 | 7,68 | 9,182 |
| 6,75 | 2,91 | 4,345 | 5,807 | 7,095 | 8,508 |
| 7 | 2,629 | 3,97 | 5,299 | 6,517 | 7,814 |
| 7,25 | 2,427 | 3,639 | 4,896 | 6,062 | 7,24 |
| 7,5 | 2,203 | 3,318 | 4,487 | 5,593 | 6,682 |

Coordonnées des lacunes et des interstitiels dans une cascade de 15 keV dans le platine irradié avant recombinaison.

| Coordonnées des lacunes | | | Coordonnées des interstitiels | | |
|-------------------------|------|------|-------------------------------|---------|----------|
| x | y | z | x | y | z |
| 3,5 | 0 | -1,5 | 3,9253 | -0,6036 | -1,9254 |
| 3,5 | 3 | 2,5 | 2,6967 | 3,4909 | 2,7399 |
| 11 | 3 | -4 | 10,1837 | 3,3553 | -4,626 |
| 4 | 0,5 | -1,5 | 5,1037 | 0,698 | -1,0133 |
| 5,5 | 2,5 | -3 | 6,0334 | 2,3998 | -4,1724 |
| 2,5 | 3 | -0,5 | 1,9926 | 3,9672 | -1,1977 |
| 5,5 | 3 | -1,5 | 5,5514 | 4,3019 | -1,739 |
| 2 | -4,5 | -2,5 | 0,9249 | -5,0824 | -1,8976 |
| 2 | 2 | -4 | 1,6321 | 0,9921 | -3,1418 |
| 3,5 | 3,5 | -1 | 3,9672 | 3,9813 | 0,2222 |
| 2,5 | -5 | -2,5 | 3,1265 | -6,1277 | -1,8805 |
| 2 | 3 | 2 | 2,0017 | 3,98 | 3,1416 |
| 3 | 1,5 | 7,5 | 3,7122 | 2,2089 | 8,7117 |
| 2,5 | 2 | -3,5 | 1,3877 | 0,8602 | -3,3126 |
| 11,5 | 3 | -4,5 | 12,6678 | 4,1441 | -4,385 |
| 3 | -3 | 1 | 1,739 | -3,1239 | -0,2303 |
| 10,5 | 3 | -3,5 | 10,3024 | 1,4817 | -4,4734 |
| 2 | 2,5 | 0,5 | 0,237 | 2,9929 | 0,5361 |
| 2,5 | 2,5 | -4 | 4,1659 | 3,3631 | -3,9893 |
| 1,5 | -0,5 | 0 | 1,0405 | -2,3722 | -0,0346 |
| 3,5 | 2,5 | 3 | 4,5665 | 4,0035 | 2,4332 |
| 8,5 | 2,5 | -2 | 10,094 | 2,9757 | -0,9766 |
| 2 | 2,5 | 2,5 | 0,4857 | 3,6622 | 2,986 |
| 3,5 | 1,5 | -3 | 4,5096 | 0,8652 | -4,6363 |
| 2,5 | -2,5 | -3 | 3,1071 | -3,6262 | -4,5753 |
| 3,5 | -3 | 1,5 | 3,0174 | -3,9588 | 3,289 |
| 3 | -1 | 1 | 2,5026 | -0,5055 | 2,9867 |
| 2,5 | -3 | -2,5 | 0,8536 | -3,6027 | -3,6761 |
| 3 | 3 | -1 | 2,5159 | 4,807 | -2,0638 |
| 3 | 2 | 3 | 1,5239 | 2,0709 | 4,7829 |
| 2,5 | -1 | -2,5 | 2,8278 | -1,1451 | -4,8733 |
| 3,5 | -2 | 1,5 | 5,0028 | -3,2262 | 2,98 |
| 2,5 | -2,5 | -2 | 4,4716 | -3,8585 | -2,4828 |
| 3 | 2 | -3 | 1,4973 | 4,0541 | -3,1939 |
| 0,5 | 1,5 | 2 | -1,7467 | 2,4764 | 0,9491 |
| 2,5 | -2 | -2,5 | 2,0047 | -1,0375 | -4,9959 |
| 4 | 1,5 | -0,5 | 6,5113 | 0,4036 | -0,0121 |
| 3 | 2 | 2 | 3,393 | 4,6124 | 2,8865 |
| 8 | 2,5 | -2,5 | 9,4789 | 2,0366 | -0,1726 |
| 9,5 | 3 | -3,5 | 12,3313 | 3,0423 | -3,0288 |
| 2,5 | 2,5 | -1 | -0,0025 | 2,4985 | -2,524 |
| 3,5 | 2 | -1,5 | 5,0356 | 3,7933 | -3,4611 |
| 3 | -0,5 | -1,5 | 3,1518 | -0,884 | -5,1214 |
| 8,5 | 2,5 | -3 | 7,6085 | 2,1006 | 0,5656 |
| 3 | 2 | -1 | 5,5905 | 4,6588 | -1,149 |
| 1 | 1,5 | 2,5 | 2,7312 | 1,0069 | 5,7606 |
| 3,5 | 1 | -0,5 | 6,2761 | -0,5017 | 1,483 |
| 3 | 2 | -2 | 3,0108 | 5,4544 | -3,5082 |
| 2,5 | 1,5 | 2 | 3,0106 | -1,6608 | 4,5182 |
| 3 | 1,5 | -0,5 | 6,3862 | 3,9598 | 0,0455 |
| 2 | 1,5 | 0,5 | 1,4151 | 6,6258 | -0,0405 |
| 2 | 1,5 | 1,5 | 1,2712 | 1,5322 | 6,9765 |
| 3 | 0 | -1 | 0,3466 | 2,9256 | -6,0018 |
| 2,5 | -0,5 | -1 | 5,5096 | -4,4989 | 2,9905 |
| 1 | 0 | 0 | 1,9599 | -6,8058 | -2,497 |
| 2 | 1 | 0 | 2,3707 | 4,5229 | 7,1585 |
| 3,5 | 0,5 | -1 | 2,49 | 2,4722 | -10,0888 |
| 1,5 | 0,5 | 0 | 12,4006 | 1,6609 | -5,4959 |
| 0 | 0 | 0 | 13,6916 | 3,4866 | -3,9894 |

Coordonnées des lacunes et des interstitiels dans une cascade de 15 keV dans le platine irradié après recombinaison.

| Coordonnées des lacunes | | | Coordonnées des interstitiels | | |
|-------------------------|------|------|-------------------------------|---------|----------|
| x | y | z | x | y | z |
| 3 | 2 | -2 | 3,0108 | 5,4544 | -3,5082 |
| 2,5 | 1,5 | 2 | 3,0106 | -1,6608 | 4,5182 |
| 3 | 1,5 | -0,5 | 6,3862 | 3,9598 | 0,0455 |
| 2 | 1,5 | 0,5 | 1,4151 | 6,6258 | -0,0405 |
| 2 | 1,5 | 1,5 | 1,2712 | 1,5322 | 6,9765 |
| 3 | 0 | -1 | 0,3466 | 2,9256 | -6,0018 |
| 2,5 | -0,5 | -1 | 5,5096 | -4,4989 | 2,9905 |
| 1 | 0 | 0 | 1,9599 | -6,8058 | -2,497 |
| 2 | 1 | 0 | 2,3707 | 4,5229 | 7,1585 |
| 3,5 | 0,5 | -1 | 2,49 | 2,4722 | -10,0888 |
| 1,5 | 0,5 | 0 | 12,4006 | 1,6609 | -5,4959 |
| 0 | 0 | 0 | 13,6916 | 3,4866 | -3,9894 |