

N° d'ordre :

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE & POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR & DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE



UNIVERSITE DJILLALI LIABES
FACULTE DES SCIENCES EXACTES
SIDI BEL-ABBES

THESE DE DOCTORAT

Présentée par

DJAAFRI Abdelkader

Spécialité : Sciences Physiques

Option : Physique des matériaux

Intitulée

*Etude des dommages créés dans le tantale (Ta) et les composés TaC
et Ta₂O₅ par l'approximation des collisions binaires (BCA)*

Soutenue le 19/11/2018

Devant le jury composé de :

Président	BASSOU Ghaouti	Pr	Université de Sidi Bel-Abbès
Examineurs	ABID Hamza	Pr	Université de Sidi Bel-Abbès
	ELIAS Abdelkader	Pr	Université Dr Moulay Tahar, Saida
	EL KEURTI Mohammed	Pr	Université Dr Moulay Tahar, Saida
Co-directeur de thèse	DRISS KHODJA Mohammed	Pr	Université Dr Moulay Tahar, Saida
Directeur de thèse	KADOUN Abd-Ed-Daïm	Pr	Université de Sidi Bel-Abbès

Année universitaire 2018/2019

À la mémoire de mon père

À ma mère

Remerciements

Je voudrais tout d'abord exprimer ma profonde gratitude à mon directeur de thèse le Professeur Abd-Ed-Daïm KADOUN pour avoir supervisé mes travaux. Je le remercie pour son aide, sa disponibilité permanente et ses conseils avisés. Il a su me faire bénéficier de son expérience et de sa compétence. Je le remercie amplement pour la confiance qu'il m'a toujours témoignée en m'accordant une grande autonomie.

Je tiens à remercier grandement mon co-directeur de thèse le Professeur Mohammed DRISS-KHODJA pour son appui scientifique et sa disponibilité permanente. Il a toujours été là pour me conseiller et me soutenir. Ses conseils pertinents m'ont permis de surmonter les moments difficiles dans cette thèse. Qu'il soit aussi remercié pour sa gentillesse et pour les encouragements qu'il m'a prodigués.

J'adresse mes sincères remerciements aux membres de jury qui m'ont fait l'honneur d'assumer la charge d'examiner mon travail.

Je tiens à témoigner ma grande reconnaissance au Professeur Abdelkader ELIAS et mon frère le Docteur Tayeb DJAAFRI pour leur encouragement et leur soutien indéfectible. Leurs conseils m'ont été d'une grande aide.

J'adresse tous mes remerciements à ma femme qui a tout fait pour m'aider et qui m'a supporté dans les moments difficiles. Un grand merci à mes enfants Ahmed Taki-Eddine et Saoussane Nada ainsi que mes frères et sœurs qui m'ont toujours soutenu.

Tables des matières

Liste des figures	vii
Liste des tableaux	xi
Introduction générale	1

Chapitre 1 - Défauts cristallins

1.1 Introduction	9
1.2 Défauts ponctuels	9
1.2.1 Lacunes	9
1.2.2 Auto-interstitiels	10
1.2.3 Défauts extrinsèques	11
1.2.4 Défauts de Schottky et de Frenkel	13
1.3 Défauts linéaires	14
1.3.1 Dislocation coin	14
1.3.2 Dislocation vis	15
1.3.3 Dislocation mixte	15
1.4 Défauts plans	16
1.4.1 Joints de grains et joints de phases	16
1.4.2 Joints de macle	17
1.4.3 Défauts d'empilement	17
1.4.4 Parois d'antiphase	18
1.5 Défauts volumiques	18
1.5.1 Pores	19
1.5.2 Inclusions	19
1.5.3 Précipités	19
1.6 Effets d'irradiation dans les matériaux	19
1.7 Conclusion	21

Chapitre 2 - Potentiels d'interactions atomiques

2.1 Introduction	23
2.2 Potentiel de Born-Mayer	23
2.3 Potentiel coulombien	25

2.4 Potentiel de Coulomb écranté	26
2.4.1 Fonction de Sommerfeld	27
2.4.2 Fonction de Bohr	28
2.4.3 Fonction de Molière	30
2.4.4 Fonction Kr-C	30
2.4.5 Fonction de Ziegler-Biersack-Littmark	31
2.4.6 Fonction de Lenz-Jensen	31
2.4.7 Fonction de Lenz-Jensen modifiée	32
2.5 Conclusion	33

Chapitre 3 – Modèles de simulation

3.1 Introduction	35
3.2 Dynamique moléculaire	35
3.2.1 Principes	35
3.2.2 Méthodes d'intégration des équations du mouvement	37
3.2.2.1 Algorithme Verlet	37
3.2.2.2 Algorithme Verlet Leapfrog	38
3.2.2.3 Algorithme Verlet vitesse	38
3.2.3 Ensembles en dynamique moléculaire	39
3.2.4 Conditions aux limites périodiques	39
3.2.5 Potentiel et troncature du potentiel	40
3.3 Approximation des collisions binaires	40
3.3.1 Cascade de déplacements	40
3.3.1.1 Description du processus de cascade	40
3.3.1.2 Canalisation	42
3.3.1.3 Focalisation	43
3.3.1.4 Séquences de remplacements	46
3.3.1.5 Sous-cascades	46
3.3.1.6 Création de défauts stables	48
3.3.2 Cinétique des collisions élastiques	48
3.3.2.1 Système du laboratoire	49
3.3.2.2 Système du centre de masse	50

3.3.2.3	Relation entre le système du laboratoire et le système du centre de masse	51
3.3.2.4	Transfert d'énergie	52
3.3.2.5	Angle de diffusion et intégrale du temps	53
3.3.3	Mécanisme de la perte d'énergie	56
3.3.3.1	Perte d'énergie électronique	57
3.3.3.2	Perte d'énergie élastique	60
3.3.3.3	Perte d'énergie totale	61
3.3.4	Energie seuil de déplacement	63
3.3.5	Nombre d'atomes déplacés et paires de Frenkel	64
3.3.5.1	Modèle de Kinchin-Pease	64
3.3.5.2	Modèle de Norgett-Robinson-Torrens	67
3.4	Conclusion	68

Chapitre 4 – Code Marlowe

4.1	Introduction	70
4.2	Structure du programme et modèle d'analyse	70
4.3	Description de la cible et conditions d'irradiation	72
4.4	Sélection des atomes cibles	73
4.5	Potentiels interatomiques	75
4.5.1	Potentiel de Molière	75
4.5.2	Potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark	75
4.5.3	Potentiel moyen modifié de Lenz-Jensen	76
4.5.4	Potentiel de Born-Mayer	76
4.5.5	Potentiel de Morse	77
4.6	Intégrale de la diffusion	77
4.7	Energie inélastique perdue	78
4.8	Vibrations thermiques	79
4.9	Défauts ponctuels	80
4.10	Volume de la cascade	81
4.11	Conclusion	82

Chapitre 5 – Résultats et discussion

5.1 Introduction	84
5.2 Application au tantale	84
5.2.1 Paramètres de simulation	84
5.2.2 Atomes en mouvement et énergie cinétique	86
5.2.3 Atomes déplacés	88
5.2.4 Paires de Frenkel	89
5.2.5 Séquences de remplacements	93
5.2.6 Distribution spatiale des défauts	96
5.2.7 Volume de la cascade	96
5.2.8 Amas	98
5.3 Application au carbure de tantale	99
5.3.1 Paramètres de simulation	99
5.3.2 Atomes déplacés	100
5.3.3 Paires de Frenkel	102
5.3.4 Séquences de remplacements	103
5.3.5 Volume de la cascade	104
5.3.6 Amas	105
5.4 Application au pentoxyde de tantale	106
5.4.1 Paramètres de simulation	106
5.4.2 Atomes en mouvement	107
5.4.3 Atomes déplacés	108
5.4.4 Paires de Frenkel	109
5.4.5 Volume de la cascade	110
5.4.6 Amas	111
5.5 Conclusion	112
Conclusion générale	113
Références	117

Liste des figures

Chapitre 1		
Figure 1.1	Schéma d'une lacune dans un cristal	9
Figure 1.2	Diffusion d'une lacune par déplacements successifs d'atomes	10
Figure 1.3	Schéma de défaut auto-interstitiel	10
Figure 1.4	Défaut extrinsèque substitutionnel	11
Figure 1.5	Positions interstitielles dans la structure c.f.c.	12
Figure 1.6	Positions interstitielles dans la structure c.c.	12
Figure 1.7	Diffusion interstitielle	12
Figure 1.8	Défaut de Schottky	13
Figure 1.9	Défaut de Frenkel	14
Figure 1.10	Représentation schématique d'une dislocation coin	15
Figure 1.11	Représentation schématique d'une dislocation vis	15
Figure 1.12	Représentation schématique d'une dislocation mixte	16
Figure 1.13	Représentation schématique d'un joint de grains et d'un joint de phases	17
Figure 1.14	Schéma d'un joint de macles	17
Figure 1.15	Défaut d'empilement dans la structure c.f.c.	18
Figure 1.16	Schéma d'un cristal traversé par une paroi d'antiphase	18
Chapitre 2		
Figure 2.1	Région de validité du potentiel de Born-Mayer	24
Figure 2.2	Région de validité du potentiel coulombien.	25
Figure 2.3	Région de validité du potentiel coulombien écranté	26
Figure 2.4	Comportement de quelques potentiels en fonction de la distance de séparation entre les atomes du cuivre	28
Figure 2.5	Fonctions d'écran de cinq potentiels en fonction du rapport entre la distance interatomique et le paramètre d'écran	33
Chapitre 3		
Figure 3.1	Diagramme de simulation de la dynamique moléculaire	36

Figure 3.2	Représentation schématique de la cascade de déplacements	41
Figure 3.3	Schéma d'un atome se déplaçant dans un canal dans un réseau cristallin	42
Figure 3.4	Trajectoire d'une particule canalisée	43
Figure 3.5	Schéma d'une séquence de focalisation	44
Figure 3.6	Schéma d'une séquence de remplacements	46
Figure 3.7	Formation de sous-cascades dans le fer en fonction de l'énergie du primaire	47
Figure 3.8	Schéma d'une collision binaire dans le système de référence du laboratoire	49
Figure 3.9	Relations entre les vitesses dans les référentiels du laboratoire et du centre de masse	51
Figure 3.10	Définition de l'angle de diffusion ϑ et des coordonnées polaires $r(t)$ et $\varphi(t)$ dans le référentiel du centre de masse	54
Figure 3.11	Trajectoires du projectile et de la cible et les asymptotes de leurs trajectoires dans le référentiel du laboratoire	56
Figure 3.12	Schéma correspondant à la perte d'énergie électronique selon le modèle de Firsov	59
Figure 3.13	Pouvoir d'arrêt du tantale pour des atomes de tantale	63
Figure 3.14	Nombre moyen d'atomes déplacés dans une cascade en fonction de l'énergie du primaire selon le modèle de Kinchin-Pease	66
<hr/>		
Chapitre 4		
<hr/>		
Figure 4.1	Schéma de sélection des cibles.	73
Figure 4.2	Schéma représentant les bases de la procédure de recherche des cibles	74
<hr/>		
Chapitre 5		
<hr/>		
Figure 5.1	Maille élémentaire du tantale	85
Figure 5.2	Potentiels interatomiques entre deux atomes de tantale	85
Figure 5.3	Energie cinétique de la cascade en fonction du temps dans le tantale	86
Figure 5.4	Nombre moyen d'atomes en mouvement pour un primaire de 20 keV dans le tantale	87

Figure 5.5	Nombre moyen d'atomes déplacés pour un primaire de 20 keV dans le tantale	88
Figure 5.6	Nombre de paires de Frenkel corrélées pour un PKA de 20 keV dans le tantale	90
Figure 5.7	Nombre de paires de Frenkel non-corrélées pour un PKA de 20 keV dans le tantale	90
Figure 5.8	Nombre total de paires de Frenkel pour un PKA de 20 keV dans le tantale	91
Figure 5.9	Nombre de paires de Frenkel pour différentes valeurs du rayon de recombinaison	92
Figure 5.10	Nombre des RCS dans le tantale en fonction de l'énergie du primaire pour différents potentiels	93
Figure 5.11	Nombre des RCS dans le tantale en fonction de l'énergie du primaire pour différentes températures	94
Figure 5.12	Distribution des RCS en fonction de la longueur dans le tantale	95
Figure 5.13	Distribution spatiale des interstitiels et des lacunes dans une cascade de 20 keV dans le tantale	96
Figure 5.14	Distributions de volumes dans l'irradiation du tantale par un primaire de 20 keV	97
Figure 5.15	Nombre d'amas et leurs tailles dans le tantale en fonction de l'énergie du primaire	99
Figure 5.16	Maille cristalline du carbure de tantale stœchiométrique	99
Figure 5.17	Histogramme du nombre d'atomes déplacés dans TaC pour un primaire de 20 keV	101
Figure 5.18	Nombre moyen d'atomes déplacés par cascade dans TaC pour un primaire de 20 keV	102
Figure 5.19	Nombre moyen de paires de Frenkel dans TaC en fonction de la distance de séparation interstitiel-lacune	103
Figure 5.20	Distribution en longueur des séquences de remplacements dans TaC	104
Figure 5.21	Distributions des volumes dans TaC	105
Figure 5.22	Nombre d'amas lacunaires et leurs tailles dans TaC en fonction de l'énergie du primaire	105

Figure 5.23	Structure cristalline du pentoxyde de tantale	107
Figure 5.24	Atomes de tantale et d'oxygène en mouvement dans une cascade dans Ta ₂ O ₅ de 20 keV	108
Figure 5.25	Atomes de tantale et d'oxygène déplacés dans une cascade dans Ta ₂ O ₅ de 20 keV	109
Figure 5.26	Nombre de paires de Frenkel produites dans une cascade dans Ta ₂ O ₅ de 20 keV	110
Figure 5.27	Distributions de volumes des cascades dans Ta ₂ O ₅ pour des primaires de 20 keV	111
Figure 5.28	Nombre d'amas lacunaires et leur taille en fonction de l'énergie du primaire dans Ta ₂ O ₅	112

Liste des tableaux

Chapitre 3		
Tableau 3.1	Valeurs moyennes de l'énergie de déplacement pour quelques métaux	64
Chapitre 5		
Tableau 5.1	Nombre de paires de Frenkel dans le tantale pour différentes énergies du primaire	93
Tableau 5.2	Paramètres des potentiels interatomiques Molière, Born-Mayer et ZBL	100
Tableau 5.3	Nombre de paires de Frenkel stables dans TaC pour un primaire de 20 keV	103
Tableau 5.4	Paramètres des potentiels interatomiques Molière, ZBL et AMLJ	106
Tableau 5.5	Nombre de paires de Frenkel stables dans Ta ₂ O ₅ pour un primaire de 20 keV	110

Liste des acronymes

dpa	Displacements per Atom
PKA	Primary Knock-on Atom
MD	Molecular Dynamics
BCA	Binary Collision Approximation
EAM	Embedded Atom Method
FS	Finnis-Sinclair
MEAM	Modified Embedded Atom Method
ADP	Angular Dependent Potential
MGPT	Model Generalized Pseudopotential Theory
RCS	Remplacement collision sequences
AMLJ	Average Modified Lenz-Jensen potential
ZBL	Ziegler-Biersack-Littmark potential
CM	Centre de Masse
c.c	Cubique Centrée
c.f.c	Cubique à Faces Centrées
hcp	Hexagonale Compacte
KP	Kinchin-Pease
NRT	Norgett-Robinson-Torrens

Introduction générale

L'étude des dommages induits par irradiation dans les matériaux est un sujet qui a pris un essor considérable lorsque se sont posées des questions importantes liées à la sécurité des centrales nucléaires et au bon fonctionnement des dispositifs électroniques embarqués à bord des engins spatiaux exposés aux rayonnements intenses et omniprésents dans l'espace.

Dans le domaine spatial, l'importance des composants électroniques destinés aux applications dans les domaines des télécommunications, de l'observation de la Terre, de la réalisation d'infrastructures orbitales et de l'exploration de l'espace ne cesse d'augmenter. Ces composants sont soumis aux radiations omniprésentes dans l'espace, dont les principales sources sont le vent solaire et le rayonnement cosmique. Le passage d'une particule chargée énergétique à travers un matériau semi-conducteur peut générer des centaines d'électrons dans la bande de conduction, augmentant le bruit électronique et produisant un pic de signal dans un circuit analogique, ou menant à des calculs erronés dans un circuit numérique. Les rayonnements peuvent, aussi, induire des déplacements atomiques conduisant à la dégradation des propriétés physiques des composants irradiés, voire même leur destruction [1-5].

Dans une centrale électronucléaire, la cuve en acier qui contient le combustible nucléaire composant le cœur du réacteur joue un rôle essentiel dans le confinement de la matière radioactive et le refroidissement du cœur. Pour des raisons de sécurité, l'intégrité de la cuve doit être assurée pendant toute la durée d'exploitation du réacteur. La cuve subit des sollicitations thermiques et chimiques ainsi que l'irradiation par les neutrons engendrés par les réactions nucléaires qui se produisent dans le cœur. Les neutrons provoquent, dans le matériau irradié, des processus complexes parmi lesquels l'excitation des électrons atomiques, les réactions de transmutation et les déplacements atomiques. Ces derniers créent un désordre structural en générant des défauts ponctuels tels que les lacunes et les interstitiels. Les défauts de même nature, produits très proches les uns des autres, s'agglomèrent et forment des amas qui peuvent évoluer en des cavités et des boucles de dislocations. Ces changements, à l'échelle atomique, affectent fortement, à long terme, les propriétés physico-chimiques et mécaniques du matériau telles que la résistance à la corrosion, le durcissement, la fragilisation, le gonflement et le fluage [6-8].

La compréhension des mécanismes de production des dommages dans les matériaux irradiés et la prédiction avec précision du nombre de défauts générés, du volume de la région endommagée et de l'évolution des amas formés sont d'un grand intérêt pratique puisqu'elles permettent, d'une part, d'estimer la durée de vie utile des dispositifs microélectroniques destinés à l'utilisation spatiale et à la technologie nucléaire et d'améliorer leur performance et, d'autre part, de concevoir des matériaux de construction capables de résister, non seulement à

des températures élevées, mais aussi à des flux de radiations intenses durant des périodes prolongées. Une motivation supplémentaire pour l'étude des défauts induits par irradiation est apportée par des domaines tels que l'implantation ionique dans les semi-conducteurs, l'imagerie médicale et les traitements médicaux.

Le tantale (Ta), le carbure de tantale (TaC) et le pentoxyde de tantale (Ta₂O₅), sujets de notre étude, possèdent des propriétés physiques, chimiques et mécaniques particulièrement attrayantes, qui trouvent des applications dans un grand nombre de secteurs et surtout dans les domaines de l'électronique et du nucléaire.

Le tantale est un métal de transition lourd (nombre de masse 181 et numéro atomique 73), dur, malléable et ductile. Il possède le cinquième plus haut point de fusion de tous les éléments chimiques (point de fusion à 3017 °C). Il s'avère très résistant à la corrosion par les acides et un bon conducteur de chaleur et d'électricité. Ces propriétés trouvent des applications dans des domaines très variés. En électronique, le tantale est utilisé pour la fabrication de condensateurs performants à des températures pouvant varier de -55 °C jusqu'à 125 °C, les écrans à cristaux liquides, les circuits intégrés des téléphones portables, les ordinateurs et l'électronique automobile. Dans l'industrie chimique, on se sert du tantale dans des échangeurs de chaleur et comme revêtement pour les réacteurs chimiques. À cause de sa biocompatibilité, il est utilisé dans le domaine médical pour faire des prothèses et des implants. Il est également utilisé comme additif dans l'élaboration de superalliages employés dans des applications en conditions sévères comme les turbines des moteurs d'avions, les turbines à gaz, les réacteurs nucléaires, l'aéronautique et l'aérospatiale [9-11].

Le pentoxyde de tantale est l'un des oxydes de métaux de transition les plus étudiés ces dernières années. Il possède des propriétés physiques exceptionnelles, notamment une constante diélectrique, un indice de réfraction [12, 13], et une tension de claquage élevés [14]. Il a une excellente résistance à la corrosion et à la température [15, 16]. Il est assez largement utilisé comme couche diélectrique de condensateurs [17], comme film anti-réfléchissant dans la fabrication de cellules solaires [18, 19], comme couches de protection contre la corrosion [20] et comme capteurs de gaz [21]. C'est un matériau prometteur dans les applications microélectroniques, en particulier comme matériau de stockage de données pour la mémoire vive dynamique (DRAM) [19, 22].

Le carbure de tantale est un matériau céramique réfractaire extrêmement dur et cassant, avec un point de fusion parmi les plus élevés des composés binaires connus. Il présente une bonne résistance à la corrosion. Il a de bonnes conductivités électrique et thermique et une température de transition supraconductrice relativement élevée [23-28].

Grâce à ces propriétés exceptionnelles, TaC est un matériau de choix pour plusieurs applications technologiques. Il est particulièrement utilisé dans les applications à haute température, telles que les tuyères de fusée, les revêtements pour outils de coupe et les applications de réacteurs à fusion, et en microélectronique, comme barrières de diffusion [29-32].

Les travaux portant sur l'irradiation du tantale ont commencé par des études expérimentales qui consistaient en son irradiation par des électrons [33, 34]. Elles avaient pour but de déterminer son énergie seuil de déplacement par la mesure de sa résistivité électrique. Les résultats obtenus ont montré que cette grandeur physique est anisotrope et qu'elle a une valeur d'environ 36 eV autour de la direction $\langle 111 \rangle$, 53 eV autour de la direction $\langle 100 \rangle$, et une valeur supérieure à 130 eV dans les autres directions.

Kulcinski et Mastel [35] ont analysé par microscopie électronique en transmission des feuilles de tantale irradiées par des neutrons à 723 K. Ils ont observé la formation d'une grande densité de petits amas de boucles et de défauts de taille moyenne de 50 Å.

Dans une expérience similaire, Wiffen a rapporté que l'irradiation neutronique du tantale à 698 K produit la formation de petites boucles de dislocation composées de lacunes et d'interstitiels [36]. À des températures plus hautes allant jusqu'à 1273 K, des structures de dislocations et de cavités dont la taille augmente avec la température ont été observées.

Yasunaga *et al.* ont étudié l'évolution des défauts dans le tantale irradié par des ions de cuivre à différentes doses d'irradiation et à différentes températures [37, 38]. Les résultats indiquent la présence de boucles de dislocation de types *lacune* et *interstitiel* et leurs tailles augmentent avec la dose d'irradiation. À une dose de 20 dpa, la morphologie stable des amas de lacunes passe des boucles à deux dimensions à des cavités, la température de transition étant située entre 973 et 1073 K.

Afin d'améliorer la compréhension des propriétés mécaniques du tantale, des efforts considérables ont été consentis pour développer des potentiels modélisant l'interaction entre les atomes du tantale. Ainsi, on trouve dans la littérature des potentiels basés sur la méthode de l'atome entouré (EAM) [39-47], la méthode Finnis-Sinclair (FS) [48-51], la méthode modifiée de l'atome entouré (MEAM) [52], la méthode du potentiel à dépendance angulaire (ADP) [53, 54] et la méthode du pseudo-potentiel généralisé (MGPT) [55-58].

Villagrasa-Roussel *et al.* ont étudié les dommages induits par les réactions de spallation dans une cible de tantale irradiée par un faisceau de protons [59]. Les résultats ont permis l'évaluation de la concentration des résidus de spallation et leur activité ainsi que les déplacements par atome créé par ceux-ci.

Les travaux de Broeders et Konobeyev sur le tantale irradié par des neutrons et des protons à des énergies allant jusqu'à 1 GeV ont permis le calcul de la section efficace de déplacement et l'estimation du coefficient d'efficacité de déplacement dans ce matériau [60-62].

Dans un travail publié en 2013, nous avons examiné le développement temporel des cascades de déplacements initiées par des primaires de 10 keV dans le tantale [63]. Nous avons également analysé les effets de la température et du potentiel interatomique sur la distribution en longueur des séquences de remplacements (RCS pour *replacement collision sequences*). Nous avons trouvé que ces séquences sont faiblement affectées par la température du cristal, alors que leur dépendance au potentiel est forte.

Bien que le pentoxyde de tantale continue à faire l'objet d'études expérimentales et théoriques portant sur ses propriétés physiques, sa structure cristallographique et sa stabilité de phase [15-19], il n'existe, à notre connaissance, aucun travail qui traite les questions de production et de distribution spatiale des défauts ponctuels ainsi que la formation des amas suite à l'irradiation de ce matériau.

Les travaux sur l'irradiation du carbure de tantale sont peu nombreux et ne concernent pas directement le champ d'étude qui nous intéresse. Morillo *et al.* ont irradié une cible de carbure de tantale presque stœchiométrique ($\text{TaC}_{0.99}$) par des neutrons rapides et des électrons d'énergie 2.5 MeV à une température de 21 K pour déterminer la résistivité électrique [64, 65]. Gosset *et al.* ont étudié par résistivité électrique à 21 K certains effets de l'irradiation dans $\text{TaC}_{0.80}$ et $\text{TaC}_{0.99}$ [66, 67]. Ils ont rapporté les valeurs de l'énergie seuil de déplacement du carbone et du tantale dans les deux composés. Allison *et al.* ont utilisé un microscope électronique en transmission pour créer des défauts *in situ* dans ce matériau [68]. La variation de la tension d'accélération des électrons a permis la détermination de la valeur de l'énergie seuil de déplacement du carbone (23.2 ± 1.1 eV).

Möler et Eckstein ont simulé, par le modèle de l'approximation des collisions binaires (BCA pour *Binary Collision Approximation*), le phénomène de pulvérisation dans une cible de carbure de tantale irradiée par l'hélium [69].

La modélisation des interactions entre des particules énergétiques et la matière peut être réalisée par deux méthodes : l'approximation des collisions binaires et la dynamique moléculaire (MD pour *Molecular Dynamics*). Notre choix pour l'étude des dommages causés par irradiation du tantale, du carbure de tantale et du pentoxyde de tantale s'est porté sur la BCA car elle est mieux adaptée à notre étude. Elle permet, en un temps relativement court, l'accumulation d'une quantité importante de statistiques nécessaires à une étude adéquate des

caractéristiques de la cascade qui présentent un haut degré de variabilité [70]. La BCA est largement utilisée dans la modélisation de divers phénomènes liés à l'irradiation des matériaux tels que la pulvérisation, l'implantation ionique, la canalisation, la rétrodiffusion et la production de dégâts [71-77].

Le présent travail est consacré à l'étude, par simulation basée sur la BCA, des cascades de déplacements dans le tantale, le carbure de tantale et le pentoxyde de tantale, suite à une irradiation interne. Nous examinons en particulier la production de défauts et leur configuration spatiale, la contribution des séquences de remplacements à la création des dégâts, le volume de la zone endommagée, et la formation des amas de lacunes. Nous souhaitons par cette étude, apporter des réponses au comportement de ces matériaux dans un environnement de rayonnements intenses.

Ce manuscrit est organisé en cinq chapitres. Le premier chapitre est consacré aux rappels sur les défauts dans les cristaux. Nous présentons également les défauts induits par irradiation et leurs effets sur les propriétés physiques et mécaniques des matériaux. Le deuxième chapitre est dédié aux potentiels interatomiques de paires utilisés pour modéliser les interactions entre les atomes présents dans la cascade de déplacements. Nous nous limiterons aux potentiels fréquemment utilisés dans les simulations, employant l'approximation des collisions binaires pour l'étude des dégâts d'irradiation. Dans le troisième chapitre, nous présentons les modèles utilisés habituellement pour simuler l'irradiation des matériaux. Bien que nous n'ayons pas utilisé la méthode de la dynamique moléculaire, il convient de la présenter rapidement car elle est aussi largement utilisée dans l'étude des effets d'irradiation. Nous détaillons le modèle de l'approximation des collisions binaires. Nous passons en revue les phénomènes qui ont lieu pendant le développement d'une cascade de déplacements et les modèles existants pour estimer les pertes des énergies nucléaire et électronique, ainsi que le nombre de défauts générés. Le quatrième chapitre présente le programme Marlowe utilisé pour simuler les cascades de déplacements dans les matériaux étudiés. Nous présentons la structure du programme et le modèle d'analyse. Nous décrivons également la méthode statistique de l'analyse en composantes principales, employée pour l'évaluation du volume de la zone endommagée dans le matériau. Dans le cinquième chapitre, nous rapportons les résultats que nous avons obtenus par simulations des cascades de déplacements dans le tantale, le carbure de tantale et le pentoxyde de tantale. Nous examinons le développement temporel et spatial des cascades, le nombre de paires de Frenkel générées, la fonction de distribution des ces paires en fonction de la distance de séparation lacune-interstitiel, la

distribution des volumes des cascades et la variation du nombre des amas lacunaires et leur taille en fonction de l'énergie du primaire. 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.

Chapitre 1
Défauts cristallins

1.1. Introduction

Le cristal symbolise la forme la plus ordonnée de la matière solide. C'est un assemblage régulier et périodique de constituants (qui peuvent être des atomes, des ions ou des molécules) suivant les trois dimensions de l'espace. Les matériaux cristallins les plus répandus, tels que les métaux et les alliages métalliques, se présentent sous une forme polycristalline qui est une agrégation d'une multitude de petits cristaux de taille et d'orientation variées [78].

Tout écart de la structure périodique d'un cristal constitue un défaut [79]. Les défauts influent considérablement sur certaines propriétés des matériaux telles que les propriétés optiques, électriques et mécaniques. Si l'amélioration de la conductivité électrique des semi-conducteurs dopés convenablement par des impuretés et la coloration des pierres précieuses sont des exemples des apports bénéfiques des défauts, ceux-ci peuvent être aussi nuisibles dans d'autres circonstances comme les défauts générés, par irradiation neutronique, dans l'acier composant les cuves des réacteurs nucléaires conduisant à sa fragilisation.

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

1.2. Défauts ponctuels

Les défauts ponctuels se traduisent par des perturbations de la structure cristalline en des points isolés du cristal. Ce sont donc des imperfections à l'échelle atomique. Ils entraînent une distorsion locale du réseau cristallin. La notion de défauts ponctuels date des travaux de Frenkel [80], Schottky [81] et Wagner [82]. Ils sont de plusieurs types : lacunes, auto-interstitiels et extrinsèques en insertion ou en substitution [83, 84].

1.2.1. Lacunes

Le défaut cristallin le plus simple est la lacune. Elle correspond à l'absence d'un atome ou d'un ion dans un site du réseau qui devrait normalement en contenir un (figure 1.1).

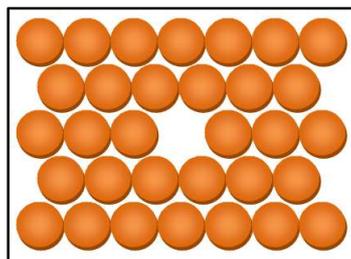


Figure 1.1. Schéma d'une lacune dans un cristal.

Les cristaux réels comportent toujours des lacunes. Elles augmentent l'énergie interne du cristal et sa résistivité et elles diminuent sa densité. Elles sont générées et supprimées par agitation thermique. La concentration atomique n/N en lacunes à l'équilibre varie en fonction de la température, T , selon la loi :

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

où n est le nombre de lacunes se trouvant dans un ensemble contenant N atomes, E_V est l'énergie de formation d'une lacune, de l'ordre de 1 eV dans les métaux, et k_B est la constante de Boltzmann. À une température de 20°C, la concentration des lacunes est de l'ordre de 10^{-15} [85].

La diffusion des atomes dans le solide, qui s'effectue vers des régions où leurs concentrations sont faibles, est facilitée par la présence des lacunes. Les déplacements se font par permutations successives entre les lacunes et les atomes voisins (figure 1.2) [85-87].

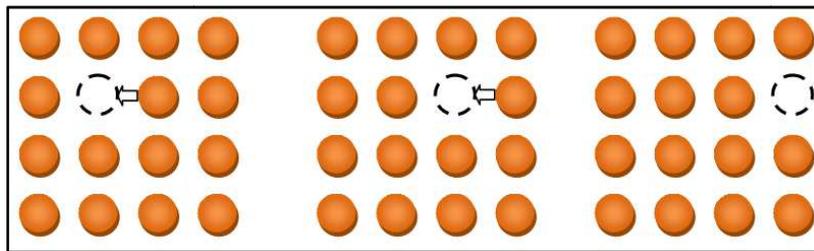


Figure 1.2. Diffusion d'une lacune par déplacements successifs d'atomes.

1.2.2. Auto-interstitiels

Ce sont des atomes de même nature que les atomes du cristal positionnés dans les espaces vides du réseau (figure 1.3). Leur concentration est plus faible que celle des lacunes (elle est de l'ordre de 10^{-30} à la température 20°C). Dans les métaux, l'énergie de formation d'un interstitiel est de l'ordre de 7 eV [85].

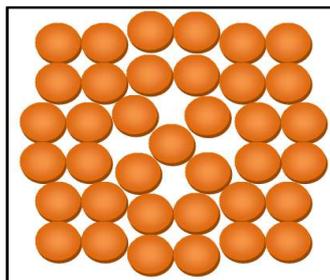


Figure 1.3. Schéma de défaut auto-interstitiel.

La présence d'un défaut au sein d'un cristal induit de fortes distorsions dans le réseau. Les atomes entourant le défaut s'écartent de leurs positions d'équilibre, affectant ainsi le volume de la maille élémentaire. Celui-ci diminue pour une maille qui recèle une lacune et augmente pour celle qui contient un interstitiel.

Les énergies de formation des lacunes sont en général plus faibles que celles des interstitiels. Ceci se répercute sur les concentrations d'équilibre de ces entités. Elles sont plus importantes pour les lacunes que pour les interstitiels [88].

1.2.3. Défauts extrinsèques

On parle de défaut extrinsèque ou impureté lorsqu'il y a présence d'un atome de nature différente de celle des atomes composant le cristal. L'introduction, dépendamment du rayon atomique de l'atome et de ses propriétés chimiques, peut se faire de deux manières, en substitution ou en insertion. Dans la substitution, l'atome étranger remplace un atome du cristal sur un site de réseau, ce qui provoque, localement, une distorsion élastique du réseau (figure 1.4). Les défauts en substitution peuvent se mouvoir dans le cristal, leur mouvement étant facilité par la présence des lacunes. Ils ont une influence notable sur les propriétés mécaniques et électriques des matériaux [85].

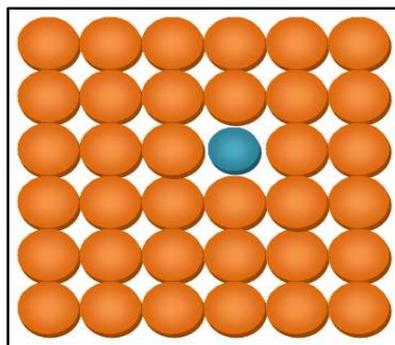


Figure 1.4. Défaut extrinsèque substitutionnel.

Les défauts extrinsèques en insertion concernent, en général, des atomes petits devant les atomes du cristal et qui peuvent se glisser dans les interstices. Certaines positions dans le cristal constituent des sites préférés pour ces défauts. Ils peuvent s'y loger sans entraîner une distorsion excessive des atomes voisins de la structure cristalline régulière. Dans les structures cubique à faces centrées ou cubique centrée, deux types de sites sont favorables à une telle occupation : les sites tétraédriques et les sites octaédriques. Comme illustré sur les figures 1.5

et 1.6, pour le type tétraédrique, quatre nœuds du réseau entourent l'atome en insertion, alors qu'ils sont au nombre de 6 pour le type octaédrique. Les atomes d'hydrogène, de carbone, d'oxygène ou de bore constituent des exemples de ces impuretés [85, 89].

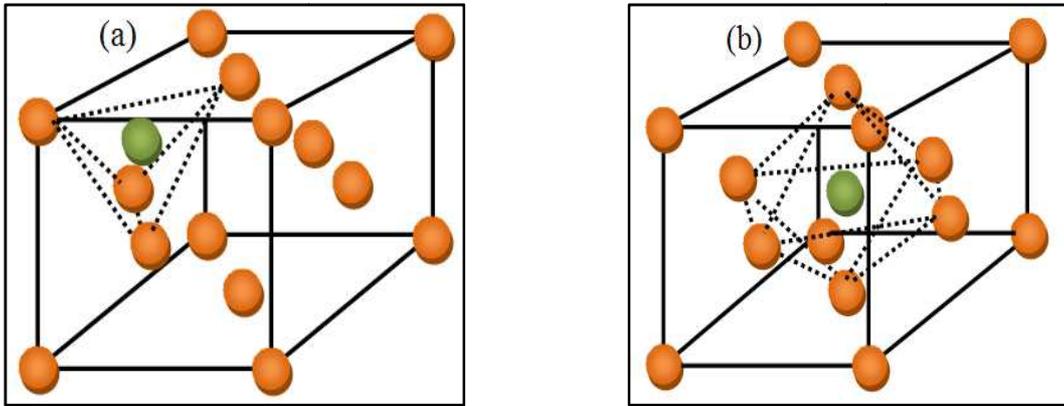


Figure 1.5. Positions interstitielles dans la structure c.f.c.. (a) site tétraédrique. (b) site octaédrique.

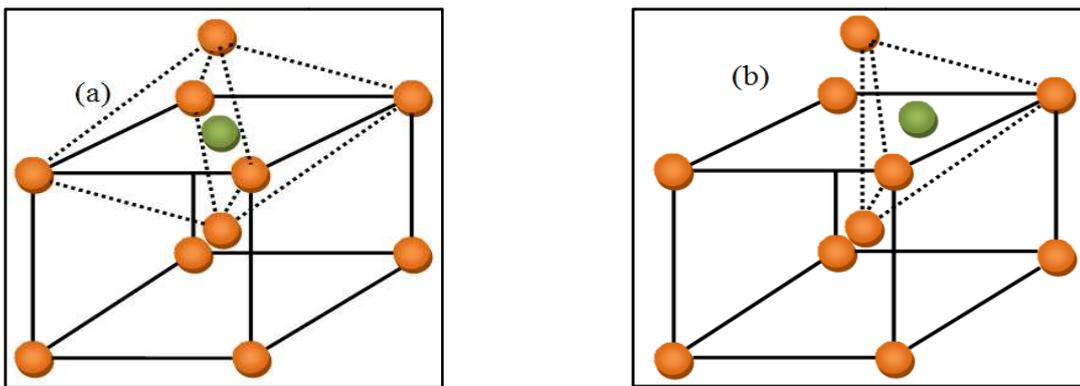


Figure 1.6. Positions interstitielles dans la structure c.c.. (a) site octaédrique. (b) site tétraédrique.

Les impuretés de petites tailles peuvent migrer dans le matériau en se déplaçant aux différentes positions interstitielles comme il est illustré sur la figure 1.7. Pour se mouvoir, l'atome doit surmonter l'énergie de liaison due à son interaction avec les atomes voisins. La diffusion est d'autant plus facilitée à haute température [88].

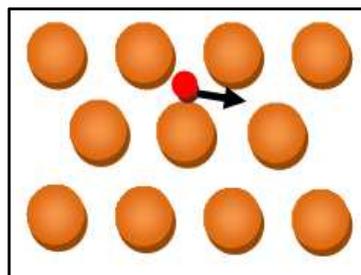


Figure 1.7. Diffusion interstitielle.

1.2.4. Défauts de Schottky et de Frenkel

Dans les solides ioniques, les défauts ponctuels sont créés par paires afin de préserver la neutralité électrique de l'ensemble du cristal. L'association d'une lacune anionique et d'une lacune cationique donne un défaut dit de *Schottky*, comme le montre la figure 1.8. Un tel défaut se rencontre, par exemple, dans NaCl [86, 90, 91].

La formation d'un défaut de Schottky au sein du cristal nécessite le déplacement d'une paire cation-anion en position normale dans le réseau vers la surface du matériau. Un autre cas de figure consiste en la migration des lacunes de la surface à l'intérieur du matériau où elles sont distribuées statistiquement. Normalement, les défauts de Schottky conduisent à une diminution de la densité du cristal et leur nombre est donné par [86, 90, 91] :

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

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

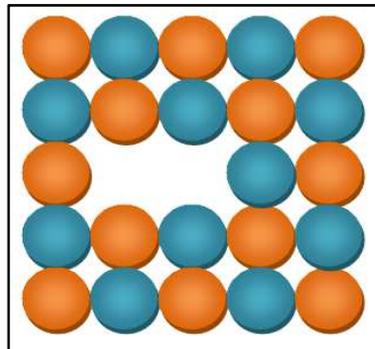


Figure 1.8. Défaut de Schottky.

Lorsque la paire est constituée d'une lacune d'une espèce donnée et d'un atome de cette même espèce en position interstitielle, on parle d'un défaut de Frenkel (figure 1.9). On trouve ce défaut, par exemple, dans l'iodure d'argent AgI. À la différence du défaut de Schottky, la création du défaut de Frenkel ne requiert aucun transfert d'ions ou de lacunes. La conductibilité électrique des solides ioniques est affectée par la présence de ces défauts [85]. Le nombre de défauts de Frenkel est donnée par [86, 90, 91] :

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

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

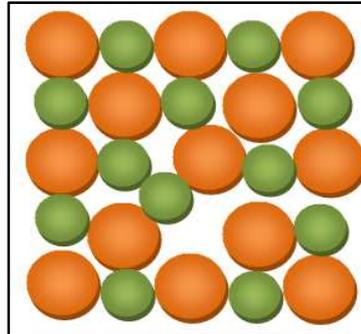


Figure 1.9. Défaut de Frenkel.

1.3. Défauts linéaires

Les défauts linéaires ou unidimensionnels dans les cristaux sont appelés dislocations. Le concept de « dislocation », introduit par Vito Volterra en 1907, désigne une ligne d'imperfections séparant la partie qui a glissé relativement à une autre restée immobile [83]. La première mise en évidence des lignes de dislocation a été rapportée en 1953 par Hedge et Mitchell dans le bromure d'argent [92]. Les dislocations sont caractérisées par la direction de leur ligne et par un vecteur appelé *vecteur de Burgers* dont la norme représente l'amplitude de la déformation engendrée. Elles ont un impact considérable 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 [93]. Il existe trois types de dislocations : les *dislocations coin*, les *dislocations vis* et les *dislocations mixtes*.

1.3.1. Dislocation coin

Une dislocation coin est symbolisée par la présence d'un demi-plan atomique supplémentaire dans une structure cristalline parfaite. Le bord supérieur du demi-plan, montré dans la figure 1.10, constitue la ligne de dislocation. Le vecteur de Burgers est perpendiculaire à cette ligne. 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 moins grande que leur distance d'équilibre. La zone correspondante est

dite *en compression*. La situation inverse prévaut du côté opposé au demi-plan supplémentaire. La zone est alors dite *en traction* [85, 94].

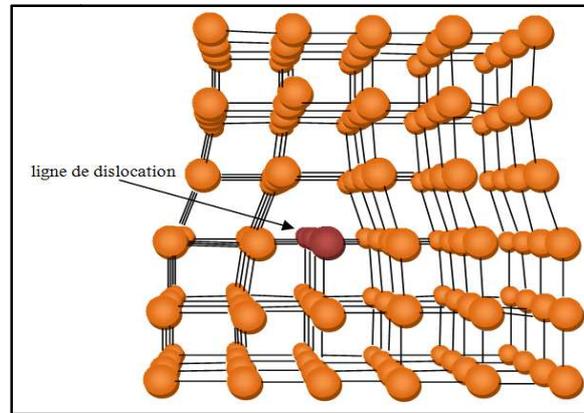


Figure 1.10. Représentation schématique d'une dislocation coin.

1.3.2. Dislocation vis

Le deuxième modèle de déformation présenté dans la figure 1.11 est la dislocation dite vis. Elle est formée par le glissement \vec{b} d'une partie du cristal le long du plan passant par (OPMN). La ligne de dislocation (PO) sépare les parties d'un cristal restées immobiles de celles qui ont subi le glissement. Elle est parallèle à la direction de glissement et l'ensemble des plans atomiques qui lui sont perpendiculaires forment une rampe hélicoïdale [85, 94].

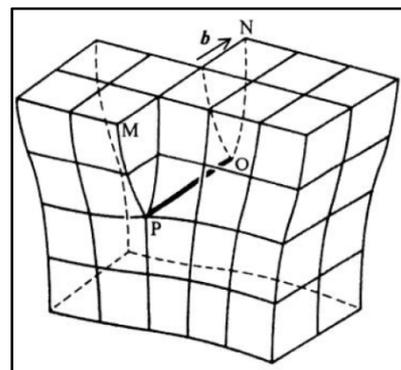


Figure 1.11. Représentation schématique d'une dislocation vis [83].

1.3.3. Dislocation mixte

Dans les cristaux réels, 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 illustre 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 [85].

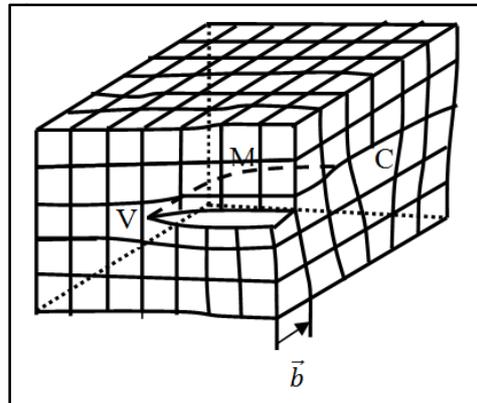


Figure 1.12. Représentation schématique d'une dislocation mixte.

Une dislocation coin ou vis ne peut s'achever à l'intérieur d'un cristal. Elle atteint la surface, se termine sur d'autres défauts comme les joints de grains ou bien elle s'enchaîne à d'autres dislocations pour se fermer et finir en boucle de dislocation [88].

1.4. Défauts plans

Les défauts de surface sont des défauts à deux dimensions qui comprennent 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 utilisés fréquemment sont polycristallins. Ils ne sont pas composés d'un seul cristal de taille macroscopique mais d'un grand nombre de cristaux juxtaposés appelés grains. Ces cristaux sont orientés aléatoirement les uns par rapport aux autres et leurs tailles varient de l'ordre du micromètre à plusieurs centimètres.

La surface d'accolement des grains adjacents de natures identiques est appelée *joint de grains*. Si les grains sont de natures différentes, la surface de raccordement est nommée *joint de phases*. Les joints constituent des défauts bidimensionnels (figure 1.13). Les atomes de la zone d'accolement ont une énergie de liaison inférieure, en valeur absolue, à celle des atomes composant l'intérieur des grains [85, 88, 89, 95].

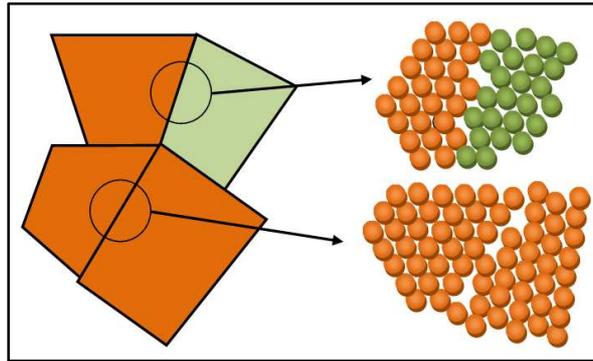


Figure 1.13. Représentation schématique d'un joint de grains et d'un joint de phases.

Les joints de grains influencent, souvent de manière déterminante, les propriétés mécaniques des matériaux polycristallins. Ils jouent le rôle de barrière au mouvement des dislocations mais peuvent être, aussi, sources de dislocation sous l'action du champ de contraintes. Ils constituent des endroits favorables à l'accumulation des impuretés, ce qui peut entraîner des effets de fragilité et de corrosion intergranulaires [78, 95].

Ils peuvent être des surfaces d'accolement faible et des lieux de naissance et de propagation des fissures. À haute température, les joints de grains peuvent glisser, ce qui influe sur la résistance au fluage du matériau [96].

1.4.2. Joints de macle

Le joint de macle est un joint de grain qui est également un plan de symétrie miroir séparant deux parties du grain d'orientations symétriques (figure 1.14) [88].

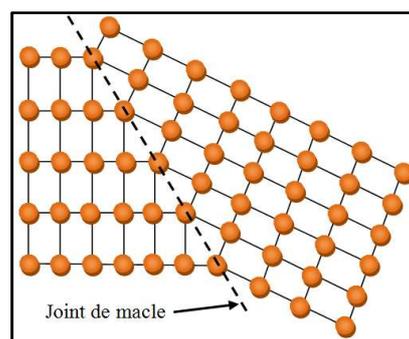


Figure 1.14. Schéma d'un joint de macle [88].

1.4.3. Défauts d'empilement

Il s'agit dans ce cas, d'une modification de la séquence d'empilement des plans atomiques. Par exemple, dans la structure cubique à faces centrées, au lieu d'avoir la séquence

d'empilement de plans [111] qui est de la forme ...ABCABCABC... nous avons la séquence ...ABCACABC..., comme le montre la figure 1.15 [88].

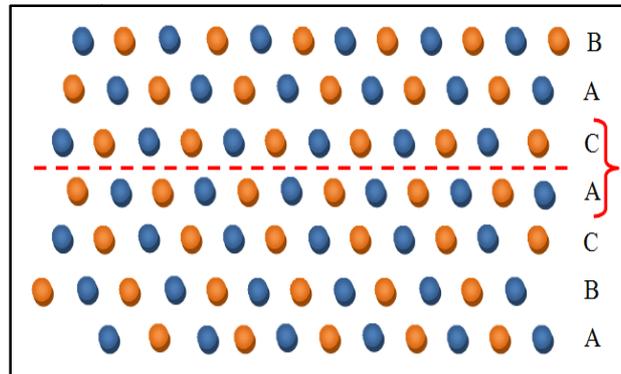


Figure 1.15. Défaut d'empilement dans la structure c.f.c..

1.4.4. Parois d'antiphase

La paroi d'antiphase est un défaut qui est présent uniquement dans les composés. Elle représente une surface séparant deux domaines ordonnés d'un cristal et le long de laquelle la séquence ordonnée d'un domaine est décalée par rapport à celle du domaine voisin (figure 1.16) [88].

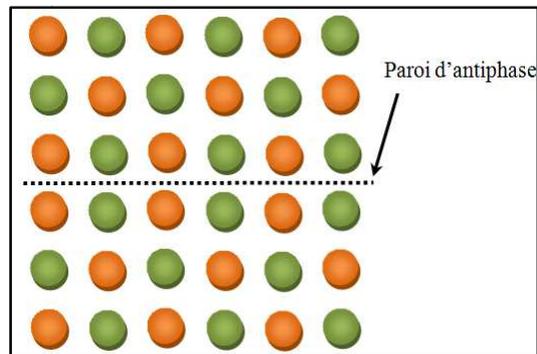


Figure 1.16. Schéma d'un cristal traversé par une paroi d'antiphase.

1.5. Défauts volumiques

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

1.5.1. Pores

Les pores sont des cavités formées dans le solide suite à la condensation de lacunes ou sont des gaz piégés durant la phase de solidification. Ce sont des défauts indésirables car ils ont pour effet de diminuer la résistance mécanique du matériau et de favoriser la rupture à de faibles charges.

1.5.2. Inclusions

Les inclusions sont des constituants étrangers présents dans le matériau. Leur taille varie de quelques microns à des dimensions macroscopiques. Elles proviennent généralement de l'élaboration du matériau et pénètrent dans le système sous forme de saletés. Leur présence est indésirable car, en plus d'être des sites préférentiels pour la rupture, ils altèrent les propriétés électriques des dispositifs microélectroniques en introduisant des effets indésirables [94, 97].

1.5.3. Précipités

Les précipités sont de petites particules introduites dans le cristal par des réactions à l'état solide. Ils sont utilisés pour augmenter la résistance structurale des alliages en agissant comme des obstacles au mouvement de dislocations. Leur efficacité dépend, en partie, de leur taille et de leur distribution dans le réseau [94].

1.6. Effets d'irradiation dans les matériaux

Les propriétés physiques d'un matériau sont étroitement liées à ses structures cristalline et électronique. La présence de défauts ponctuels ou étendus peut influencer considérablement ces propriétés. L'irradiation d'un matériau par des particules énergétiques provoque le déplacement des atomes hors de leur site dans le réseau. Si les atomes éjectés possèdent assez d'énergie (énergie supérieure à l'énergie seuil de déplacement qui est de l'ordre de quelques dizaines d'électron-volts), ils peuvent eux-mêmes causer à leur passage d'autres déplacements. Il en résulte une avalanche de collisions atomiques, appelée *cascade de déplacements*, qui se termine par la création de lacunes et d'interstitiels. La cascade est formée d'un cœur riche en lacunes autour duquel sont distribués les interstitiels. La taille typique de la cascade est de l'ordre de 10 nm. Outre les déplacements atomiques produits par les interactions élastiques et l'ionisation des atomes du milieu, des réactions nucléaires (transmutation, formation de gaz, fission) peuvent, également, se produire suite au

bombardement des matériaux. Parmi les dommages macroscopiques qui peuvent se manifester dans les matériaux irradiés, il y a : le gonflement, le durcissement, la fragilisation et la dégradation de certaines propriétés telles que la conductivité thermique, la conductivité électrique et la résistance à la corrosion [98-101].

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 menant à la formation de l'hydrogène sont particulièrement importantes car elles conduisent à la fragilisation des matériaux par les mécanismes suivants [102-104] :

- les atomes d'hydrogène étant de petites tailles, ils peuvent se loger facilement en des positions interstitielles et migrer rapidement dans les matériaux. Leur présence affaiblit les liaisons entre les atomes, ce qui cause la diminution de la résistance à la rupture ;
- les atomes d'hydrogène peuvent interagir avec les dislocations et ainsi modifier la capacité à la déformation plastique ;
- les atomes d'hydrogène peuvent conduire à formation de phases fragiles ;
- l'accumulation des atomes d'hydrogène induit la formation de cavités de gaz, ce qui peut provoquer des fissures.

La diffusion thermique joue un rôle important dans le comportement des défauts. Dans les métaux, à des températures inférieures à $0.1 T_f$ (T_f étant la température de fusion), les deux types de défauts ponctuels sont immobiles et s'accumulent jusqu'à saturation. À des températures $0.1 T_f < T < 0.3 T_f$, 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. Les amas de défauts constituent des obstacles sur le chemin des dislocations. La perte de mobilité des dislocations conduit à une élévation de la limite d'élasticité et augmente la dureté. Pour des températures $0.3 T_f < T < 0.5 T_f$, les lacunes diffusent aussi. Elles peuvent s'agglomérer pour former des cavités et provoquer un gonflement (augmentation de volume). Ce gonflement, qui atteint parfois des valeurs considérables (plusieurs pourcents), conduit à une dégradation des propriétés mécaniques et est un facteur limitant la durée d'utilisation du matériau. Pour des températures $T > 0.5 T_f$, les interstitiels et les lacunes sont tous les deux suffisamment mobiles pour accélérer le processus de guérison des effets d'irradiation [89, 99, 102, 104].

Parmi les effets de l'irradiation, on trouve la croissance. Ce phénomène se traduit par un changement de forme sans changement de volume, en absence de contraintes extérieures.

Il a été observé dans l'uranium, le graphite, le zirconium et d'autres matériaux ayant des propriétés physiques anisotropiques. La croissance sous irradiation est provoquée par un regroupement anisotrope des lacunes sur les joints de grains et des interstitiels sur les *dislocations coin prismatique* [98].

La résistivité électrique qui est sensible à la pureté et la composition des matériaux est influencée par les défauts induits par irradiation. Elle augmente dans les métaux irradiés puisque les défauts réduisent le libre parcours moyen des électrons de conduction. Dans les matériaux semi-conducteurs, l'irradiation peut entraîner la transition de plusieurs électrons vers la bande de conduction, ce qui se traduit par la manifestation d'un courant électrique mesurable [98, 104].

Dans les matériaux organiques, les rayonnements peuvent induire la vibration de certains groupes chimiques et causer la scission des chaînes, fragilisant ainsi le matériau. Ils peuvent également entraîner la réticulation de polymères thermodurcissables [98, 104].

1.7. Conclusion

Dans ce chapitre, Nous avons présenté les quatre types de défauts cristallins : ponctuels, linéaires, plans et volumiques. Ensuite, nous avons abordé les effets d'irradiation des matériaux par des particules énergétiques. Nous avons expliqué comment ces particules provoquent des déplacements atomiques qui sont à l'origine de la création des interstitiels et des lacunes. L'agrégation de ces défauts ponctuels peut conduire à la formation d'amas et évoluer en dislocations et cavités. Les propriétés physiques des matériaux, qui sont profondément liées à leurs structures cristalline et électronique, s'en trouvent affectées. Les dommages qui peuvent se manifester sont : le gonflement, le durcissement, la fragilisation et la dégradation de la conductivité thermique, de la conductivité électrique et de la résistance à la corrosion.

Chapitre 2
Potentiels d'interactions atomiques

2.1. Introduction

La simulation des cascades de déplacements dans les matériaux irradiés nécessite la connaissance des forces agissant entre les atomes de la cascade. La collision entre deux atomes est régie par des interactions entre les nuages électroniques et les noyaux des atomes. Ces interactions sont décrites par ce que nous appelons le *potentiel interatomique*. C'est une fonction qui dépend, généralement, des charges des noyaux et des positions relatives des atomes. Elle est invariante vis-à-vis des translations et des rotations d'ensemble. Il n'y a pas pour le potentiel une expression analytique unique qui couvre toute la plage de valeurs que peut prendre la distance de séparation entre deux atomes en interaction. Des efforts considérables ont été consentis pour développer des potentiels qui peuvent décrire adéquatement les interactions atomiques. Ainsi, on trouve dans la littérature un grand nombre de potentiels qui ont été suggérés au cours des années, certains déterminés de manière semi-empirique, d'autres à partir de calculs théoriques. La justesse et la complexité du potentiel influencent la qualité des résultats des simulations et le temps de calcul nécessaire à leur obtention.

Dans ce qui suit, nous décrivons les potentiels de paires utilisés fréquemment dans la simulation des cascades de déplacements par le modèle de la BCA.

Le potentiel d'interaction atomique est fonction de la distance, r , séparant les deux atomes. Il est attractif à longue distance et répulsif à courte distance. Lorsque les deux atomes sont très éloignés, le potentiel est quasiment nul. Lorsqu'on réduit la distance de séparation, le potentiel diminue et la stabilité augmente. Si l'on réduit davantage la distance interatomique, les forces de répulsion dominent, le potentiel augmente et la stabilité décroît. Le potentiel passe donc par un minimum qui correspond à la distance interatomique (dite *distance d'équilibre*, et notée r_e), pour laquelle les forces d'attraction et de répulsion s'équilibrent.

Il y a deux contributions principales à l'interaction à caractère répulsif entre deux atomes amenés l'un près de l'autre : la répulsion électrostatique entre les deux noyaux chargés positivement et la répulsion électronique qui empêche l'interpénétrabilité des nuages électroniques. La domination de l'une des contributions dépend de la distance de séparation entre les deux atomes.

2.2. Potentiel de Born-Mayer

À des distances de séparation un peu plus petites que la distance d'équilibre r_e , qui est de l'ordre de la constante du réseau a_0 , les couches internes complètes commencent à se

recouvrir (voir figure 2.1). Le principe d'exclusion de Pauli stipulant que deux électrons ne peuvent pas occuper le même état, l'excès de charge introduit dans le voisinage de chaque atome par l'autre doit être placé dans des niveaux d'énergie plus élevés et inoccupés. L'énergie fournie pour forcer les distributions de charge à s'interpénétrer augmente lorsque la distance entre les deux atomes diminue car un plus grand nombre d'électrons des couches internes complètes deviennent affectés. L'interaction à caractère répulsif ainsi décrite est bien représentée par le potentiel de Born-Mayer qui a la forme [89, 105, 106] :

$$V(r) = A_{BM} e^{-r/a_{BM}}, \quad (2.1)$$

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

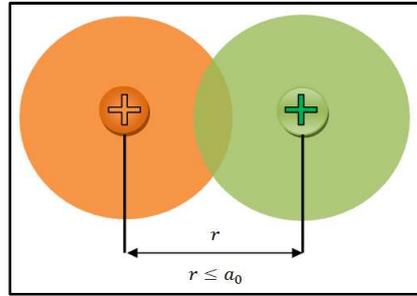


Figure 2.1. Région de validité du potentiel de Born-Mayer [89].

Les valeurs de A_{BM} et a_{BM} peuvent être estimées à partir des propriétés à l'équilibre du solide. On les trouve tabulées pour des interactions homonucléaires [105, 107, 108]. Le paramètre d'écran dépend faiblement du nombre atomique Z , alors que A_{BM} augmente avec celui-ci. Pour des interactions hétéronucléaires, A_{BM} et a_{BM} peuvent être déduits de la manière suivante [105] :

$$\begin{aligned} V(r) = A_{BM} e^{-r/a_{BM}} &\cong \sqrt{(A_{BM})_{11} e^{-r/(a_{BM})_{11}} (A_{BM})_{22} e^{-r/(a_{BM})_{22}}} \\ &= \sqrt{(A_{BM})_{11} (A_{BM})_{22}} e^{-\frac{r}{2} \left(\frac{1}{(a_{BM})_{11}} + \frac{1}{(a_{BM})_{22}} \right)}, \end{aligned} \quad (2.2)$$

ce qui donne

$$\begin{cases} A_{BM} = \sqrt{(A_{BM})_{11} (A_{BM})_{22}} \\ a_{BM} = \frac{2(a_{BM})_{11} (a_{BM})_{22}}{(a_{BM})_{11} + (a_{BM})_{22}} \end{cases} \quad (2.3)$$

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

Parmi les valeurs les plus utilisées des paramètres du potentiel de Born-Mayer dans les simulations d'irradiation des matériaux sont celles données par Andersen et Sigmund [105, 109] :

$$\begin{cases} A_{BM} = 52 (Z_1 Z_2)^{3/4} \quad (eV) \\ a_{BM} = 0.219 \quad (\text{Å}) \end{cases}, \quad (2.4)$$

où Z_1 et Z_2 désignent les numéros atomiques des deux atomes en interaction.

Une version révisée du potentiel de Born-Mayer a été proposée par Huntington [110] pour modéliser les interactions entre les atomes, en introduisant la distance de séparation du plus proche voisin d_N :

$$V(r) = A' e^{-\frac{\rho(r-d_N)}{d_N}}, \quad (2.5)$$

où $A_{BM} = A' e^{\rho}$ et $a_{BM} = d_N/\rho$ et ρ est une constante.

2.3. Potentiel coulombien

Lorsque les distances séparant les deux atomes sont plus petites que les rayons des couches K, r_K (voir figure 2.2), les noyaux atomiques sont peu écrantés et la répulsion est dominée par la force électrostatique entre les deux noyaux. L'interaction est décrite de façon satisfaisante par le potentiel coulombien [89] :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r}, \quad (2.6)$$

e étant la charge de l'électron.

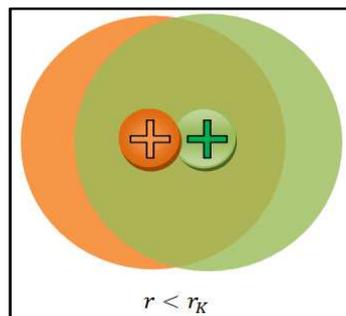


Figure 2.2. Région de validité du potentiel coulombien [89].

2.4. Potentiel de Coulomb écranté

L'interaction entre deux atomes dans la région intermédiaire est difficile à modéliser avec précision. Dans cette région, représentée sur la figure 2.3, la répulsion coulombienne et la répulsion électronique ont des magnitudes comparables. L'interaction dans ce cas est donnée par un potentiel coulombien écranté qui reflète la diminution de la répulsion coulombienne entre les deux noyaux due à l'écrantage des charges positives par les nuages électroniques [89].

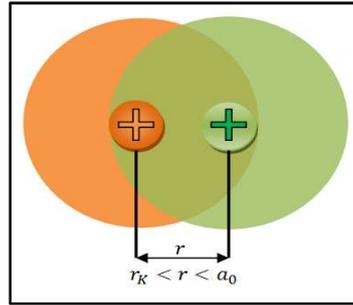


Figure 2.3. Région de validité du potentiel coulombien écranté [89].

L'une des approches utilisées pour développer analytiquement un potentiel interatomique entre deux atomes est basée sur le modèle statistique de Thomas-Fermi de l'atome singulier. Le potentiel coulombien écranté de Thomas-Fermi d'un atome singulier de numéro atomique Z est donné par [111] :

$$V(r) = \frac{Ze}{r} \Phi\left(\frac{r}{a_{TF}}\right), \quad (2.7)$$

où a_{TF} est le rayon d'écran de Thomas-Fermi donné par :

$$a_{TF} = \frac{0.88534 a_B}{Z^{1/3}} \text{ (\AA)}, \quad (2.8)$$

où a_B est le rayon de Bohr ($a_B = 0.529 \text{ \AA}$). Φ désigne dans l'expression (2.7) la fonction d'écran solution de l'équation de Thomas-Fermi [111] :

$$x^2 \frac{d^2\phi}{dx^2} = \phi^3(x). \quad (2.9)$$

À très courte distance, la fonction Φ tend vers l'unité, contrairement aux longues distances où elle tend vers zéro. Lorsqu'il s'agit de l'interaction de deux atomes de numéros atomiques Z_1 et Z_2 , le potentiel de Coulomb écranté prend la forme générale [105] :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi\left(\frac{r}{a_{12}}\right), \quad (2.10)$$

où a_{12} est le rayon d'écran lié au rayon de Bohr a_B et aux numéros atomiques Z_1 et Z_2 .

Parmi les premiers travaux portant sur l'extension du potentiel de Thomas-Fermi à un potentiel interatomique entre deux atomes est celui de Firsov. Il a proposé pour l'interaction entre deux atomes le rayon d'écran suivant [112] :

$$a_{\text{Firsov}} = \frac{0.88534 a_B}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}} \text{ (\AA)}. \quad (2.11)$$

Il est clair de l'équation (2.11) que le rayon d'écran diminue lorsque les numéros atomiques des atomes augmentent. Lindhard a suggéré pour ce paramètre la relation [113] :

$$a_{\text{Lindhard}} = \frac{0.8853 a_B}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}} \text{ (\AA)}. \quad (2.12)$$

Les valeurs calculées à partir des expressions (2.11) et (2.12) diffèrent très peu.

2.4.1. Fonction de Sommerfeld

En l'absence de solution exacte de l'équation différentielle de Thomas-Fermi, des efforts considérables ont été consentis pour développer des solutions analytiques approchées de cette équation. La forme asymptotique de Sommerfeld [114] fut l'une des premières solutions proposées. Elle est exprimée par :

$$\Phi(x) = \left\{ 1 + \left(\frac{x}{\alpha}\right)^d \right\}^{-c}, \quad (2.13)$$

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

2.4.2. Fonction de Bohr

La fonction de Bohr est la forme la plus simple de la fonction d'écran Φ . Elle est donnée par :

$$\Phi\left(\frac{r}{a_{Bohr}}\right) = e^{-\frac{r}{a_{Bohr}}}. \quad (2.14)$$

Le rayon d'écran a_{Bohr} est donné par l'expression suivante :

$$a_{Bohr} = \frac{0.8853 a_B}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}}. \quad (2.15)$$

À des distances de séparation très petites, le potentiel de Bohr qui s'écrit :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi\left(\frac{r}{a_{Bohr}}\right) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} e^{-\frac{r}{a_{Bohr}}}, \quad (2.16)$$

se réduit au potentiel de Coulomb. La figure 2.4 illustre l'utilisation des trois potentiels, Coulomb, Bohr et Born-Mayer, pour couvrir un domaine assez large de la distance interatomique.

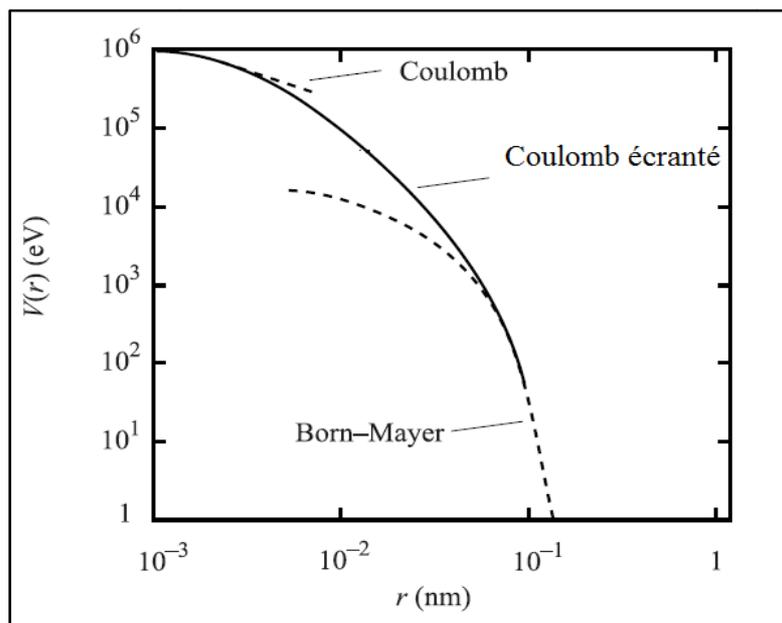


Figure 2.4. Comportement de quelques potentiels en fonction de la distance de séparation entre les atomes du cuivre [106].

Sur la base des études menées sur les métaux nobles Cu, Ag et Au, Brinkman [115] a suggéré l'utilisation conjointe des potentiels de Bohr et de Born-Mayer [106] :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} e^{-\frac{r}{a_{Bohr}}} + A_{BM} e^{-r/a_{BM}}, \quad (2.17)$$

avec les relations empiriques suivantes pour les paramètres A_{BM} et a_{BM} :

$$\begin{cases} A_{BM} = 2.58 \times 10^{-5} (Z_1 Z_2)^{11/4} \text{ (eV)} \\ a_{BM} = 1.5 a_B / (Z_1 Z_2)^{1/6} \end{cases}. \quad (2.18)$$

Dans le soucis de reproduire le comportement d'un potentiel de répulsion coulombien pour les petites valeurs de r et le comportement du potentiel de Born-Mayer pour les grandes valeurs de r , Brinkman a proposé le potentiel empirique suivant [106] :

$$V(r) = \frac{A Z_1 Z_2 e^2 e^{-B r}}{1 - e^{-A r}}, \quad (2.19)$$

avec

$$\begin{cases} A = (0.95 \times 10^{-6} Z_{eff}^{7/2}) / a_B \\ B = Z_{eff}^{1/3} / (P a_B) \\ Z_{eff} = \sqrt{Z_1 Z_2} \end{cases}, \quad (2.20)$$

où $P = 1$ pour $Z_{eff} \leq 30$ et $P = 1.5$ pour $Z_{eff} > 30$. Nous retrouvons ainsi le potentiel coulombien :

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

et le potentiel de Born-Mayer :

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

2.4.3. Fonction de Molière

L'approximation de Molière à la fonction d'écran est composée de trois termes en exponentielle. Elle a la forme [116] :

$$\Phi\left(\frac{r}{a_M}\right) = \sum_{i=1}^3 c_i e^{-(d_i r/a_M)}, \quad (2.21)$$

avec

$$\sum_{i=1}^3 c_i = \Phi(0) = 1. \quad (2.22)$$

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 :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \left[0.35 e^{-\left(0.3 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.55 e^{-\left(1.2 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.1 e^{-\left(6.0 \frac{r}{a_M}\right)} \right]. \quad (2.23)$$

Le paramètre d'écran utilisé habituellement pour cette fonction est celui de Firsov, $a_M = a_{\text{Firsov}}$. Toutefois, certains auteurs ont calculé la valeur de a_M suite à un ajustement du potentiel de Molière au potentiel de Born-Mayer à la distance du plus proche voisin :

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

C'est de cette manière que Robinson a proposé une valeur approchée « universelle » du rayon d'écran pour les interactions homonucléaires $a_{\text{Robinson}} = 0.0750 \text{ \AA}$ [117].

2.4.4. Fonction Kr-C

L'utilisation de distributions de charges basées sur le modèle atomique quantique de Hartree-Fock a permis de construire de nouveaux potentiels écrantés. Parmi ceux-ci, on trouve celui de Wilson *et al.*, appelé potentiel Kr-C [118]. La fonction d'écran a la forme :

$$\Phi(x) = 0.1909451 e^{-0.278544 x} + 0.473674 e^{-0.63717 x} + 0.335381 e^{-1.919249 x}, \quad (2.25)$$

avec $x = r/a_{\text{Firsov}}$. Elle est similaire à la fonction d'écran de Molière mais avec des constantes différentes.

2.4.5. Fonction de Ziegler-Biersack-Littmark

Sur la base du travail de Wilson *et al.*, Ziegler, Biersack et Littmark ont effectué des calculs approfondis des potentiels interatomiques sur une large gamme de paires d'atomes (522 paires d'atomes), et ont pu extraire une expression analytique approximative pour un potentiel moyen dit *potentiel universel* ou *potentiel ZBL*. La fonction d'écran ZBL est la somme de quatre exponentielles [119] :

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

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} , qui dépend des numéros atomiques Z_1 et Z_2 a pour expression :

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

Le potentiel ZBL s'écrit donc :

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

La comparaison du potentiel ZBL aux résultats de simulations qui ont servi de base à son extraction montre que ce potentiel est valable pour presque toutes les paires d'atomes. L'écart entre les 522 potentiels calculés et le potentiel ZBL est d'environ 18 % lorsque l'énergie potentielle est supérieure à 2 eV.

Il convient de noter que le potentiel Kr-C devient très proche du potentiel ZBL lorsqu'il est utilisé avec le rayon d'écran a_{ZBL} . Son emploi avec a_{Firssov} le rend très proche du potentiel de Molière.

2.4.6. Fonction de Lenz-Jensen

Parmi les premières fonctions d'écran développées pour le potentiel de Coulomb était celle donnée par Lenz et Jensen [120]. Sa forme s'écarte de la plupart des fonctions d'écran

présentées précédemment puisqu'elle ne se présente pas comme une combinaison linéaire de fonctions purement exponentielles. Son expression est donnée par :

$$\Phi(x) = (1 + y + 0.3344y^2 + 0.485 y^3 + 0.002647y^4) e^{-y}, \quad (2.29)$$

avec

$$\begin{cases} x = r/a_{Lindhard} \\ y = \sqrt{9.67 x} \end{cases}. \quad (2.30)$$

2.4.7. Fonction de Lenz-Jensen modifiée

Le potentiel moyen modifié de Lenz-Jensen (AMLJ) est développé par Nakagawa et Yamamura par des calculs similaires à ceux du potentiel ZBL avec des corrections relativistes [121-123]. La fonction d'écran est donnée par :

$$\Phi(x) = e^{-\alpha_1 x + \alpha_2 x^{3/2} - \alpha_3 x^2}, \quad (2.31)$$

avec $x = r/a_{AMLJ}$ où a_{AMLJ} est le paramètre d'écran qui s'écrit en fonction des numéros atomiques Z_1 et Z_2 comme suit :

$$a_{AMLJ} = \frac{0.8853 a_B}{(Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307})^{2/3}}, \quad (2.32)$$

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

$$\begin{cases} \alpha_1 = 1.51 \\ \alpha_2 = 0.763 \left(\frac{Z_1^{0.169} + Z_2^{0.169}}{Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307}} \right) \\ \alpha_3 = 0.191 \left(\frac{Z_1^{0.0418} + Z_2^{0.0418}}{Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307}} \right)^{4/3} \end{cases}. \quad (2.33)$$

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

Sur la figure 2.5 sont représentées cinq fonctions d'écran en fonction de x qui est le rapport entre la distance de séparation entre les deux atomes en interaction et le paramètre d'écran. La fonction de Sommerfeld prend les plus grandes valeurs pour toutes les valeurs de x , alors que la fonction d'écran ZBL prend les plus petites valeurs jusqu'à environ $x = 12$. La

fonction d'écran de AMLJ a approximativement des valeurs égales à celles de Molière pour $x < 6$ puis elle chute brutalement. Sur tout l'intervalle d'étude, les fonctions d'écran Kr-C et de Molière ont des valeurs très proches [111].

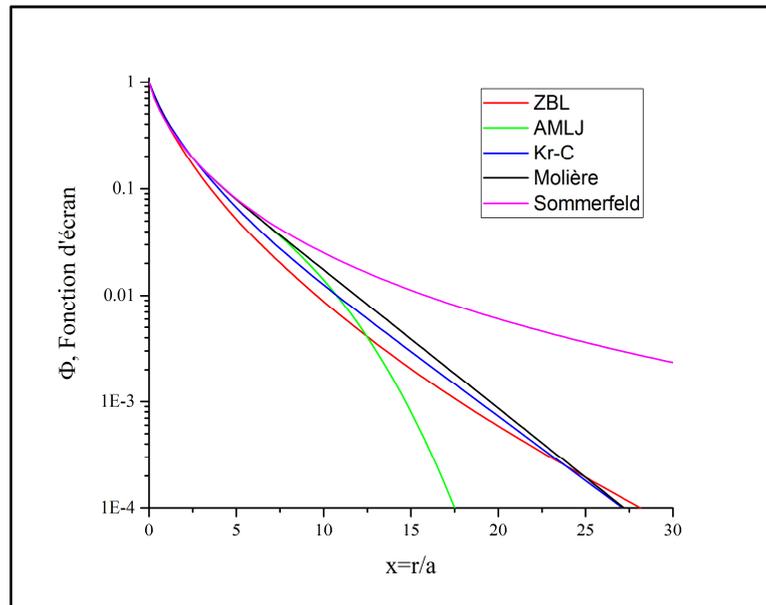


Figure 2.5. Fonctions d'écran de cinq potentiels en fonction du rapport entre la distance interatomique et le paramètre d'écran.

2.5. Conclusion

L'irradiation des matériaux provoque une avalanche de collisions atomiques. La simulation d'un tel phénomène nécessite l'utilisation de potentiels adéquats pour modéliser les interactions entre les atomes présents dans la cascade. Dans ce chapitre, nous avons décrit les potentiels interatomiques de paires fréquemment utilisés dans les simulations employant l'approximation des collisions binaires. Nous avons vu que le développement de ces potentiels n'est pas facilité par le changement du caractère de l'interaction en fonction de la distance interatomique. A longues distances, il y a attraction entre les deux atomes. A très courtes distances, la répulsion est purement coulombienne. A des distances intermédiaires, l'interaction entre les noyaux est affectée par la présence des nuages électroniques. Les potentiels de paires sont caractérisés par un paramètre d'écran qui est fonction des charges des noyaux en interaction.

Chapitre 3
Modèles de simulation

3.1. Introduction

Une particule pénétrant dans un solide perd son énergie cinétique, lors de multiples collisions, et provoque le déplacement des atomes du réseau. Ainsi, des atomes interstitiels et des lacunes sont produits. Les dommages ne se limitent pas aux défauts ponctuels isolés puisque des entités de même nature, produites très près les unes des autres, s'agglomèrent et forment des amas. Il existe différentes techniques expérimentales pour observer les amas de défauts : citons à titre d'exemple la microscopie électronique en transmission, la diffusion des rayons X, la diffusion des neutrons aux petits angles et la spectroscopie d'annihilation des positrons [88]. Mais ces méthodes ne peuvent pas donner des détails sur le développement temporel de la cascade et leur résolution ne permet pas l'observation de défauts ponctuels isolés. Pour mieux comprendre le développement spatial et temporel de la cascade de déplacements, il faut se tourner vers la simulation par ordinateur. Deux méthodes sont utilisées pour modéliser le comportement des atomes dans une cascade ; la méthode de la dynamique moléculaire et la méthode d'approximation des collisions binaires [106]. Nous décrivons brièvement la première technique et nous exposons de façon plus détaillée la dernière, vu qu'elle est la méthode que nous avons adoptée pour l'étude des effets d'irradiation dans Ta, TaC et Ta₂O₅.

La dynamique moléculaire tient compte de toutes les forces exercées par les atomes voisins lors du déplacement d'une particule dans le milieu. Elle conduit à des simulations plus réalistes des phénomènes étudiés. Les inconvénients de cette méthode résident dans son coût en temps de calcul, sa pauvreté en accumulation de statistiques et sa limitation à des énergies relativement faibles.

L'approximation des collisions binaires suppose qu'un atome de la cascade se meut en effectuant des collisions binaires indépendantes avec les autres atomes. Elle est plus simple à mettre en œuvre et plus rapide en temps de calcul. Elle permet ainsi une accumulation énorme de statistiques. Elle est 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 [124].

3.2. Dynamique moléculaire

3.2.1. Principes

La dynamique moléculaire est un outil très puissant permettant d'aider à la compréhension et la prédiction des propriétés des systèmes étudiés dans des domaines aussi variés que la science des matériaux, la physique des particules, la chimie organique et la

biologie. C'est une méthode qui génère les trajectoires d'un système de N particules par intégration des équations de mouvement de Newton en faisant un choix approprié du potentiel d'interaction, des conditions initiales et des conditions aux limites. Les équations de Newton, pour chaque particule i du système, s'écrivent :

$$m_i \frac{d^2 \vec{r}_i}{dt^2} = -\vec{\nabla}_i U(\{\vec{r}_j(t)\}) = \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}} \vec{f}_{ij}(|\vec{r}_i - \vec{r}_j|), \quad (3.1)$$

où m_i est la masse de la particule, \vec{r}_i est son vecteur-position, U le potentiel d'interaction, \vec{f}_{ij} est la force appliquée par la particule j sur la particule i .

La dynamique moléculaire classique est une méthode complètement déterministe. Connaissant l'état du système à un instant initial t_0 , $\{\vec{r}_i(t_0), \vec{v}_i(t_0)\}$, nous en déduisons par intégration des équations de Newton son état à des instants successifs $t_k = t_0 + k\Delta t$, Δt étant le pas de la simulation, L le nombre de pas et $k = 1, 2, \dots, L$. Les trajectoires ainsi évaluées sont utilisées pour déterminer les propriétés thermodynamiques du système. Le diagramme de simulation de la MD est donné dans la figure 3.1.

Plusieurs codes basés sur la dynamique moléculaire sont utilisés pour étudier différents systèmes physiques : citons, à titre d'exemples, LAMMPS, DYNAMO, DLPOLY et MOLLY.

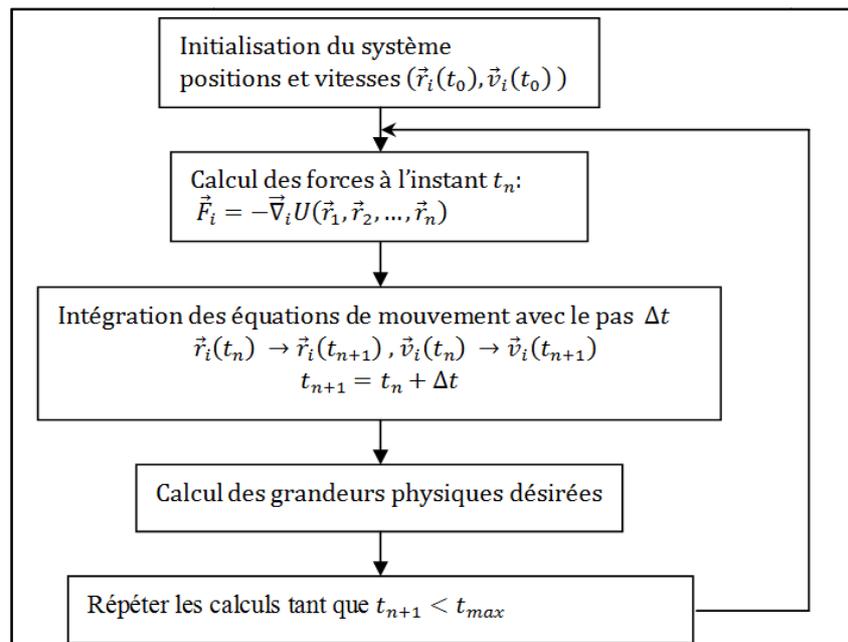


Figure 3.1. Diagramme de simulation de la dynamique moléculaire.

3.2.2. Méthodes d'intégration des équations du mouvement

Pour intégrer numériquement des équations différentielles, il est nécessaire de les discrétiser en temps. En MD, le choix du pas Δt est très important. Il doit être suffisamment petit pour tenir compte des phénomènes microscopiques et garantir la conservation de l'énergie totale du système mais aussi grand que possible pour limiter le temps de simulation de l'évolution du système.

Il existe plusieurs schémas pour intégrer les équations (3.1). Ils se basent sur le développement de Taylor pour approcher les équations différentielles en des équations de différences finies. Le choix d'un algorithme est dicté par deux critères : rapidité et justesse. Nous développons dans ce qui suit les approches les plus utilisées.

3.2.2.1. Algorithme de Verlet

L'algorithme proposé par Verlet [125, 126] est l'un des plus utilisé actuellement. Le développement en série de Taylor de la position en $t + \Delta t$ permet d'écrire :

$$\vec{r}_i(t + \Delta t) = \vec{r}_i(t) + \vec{v}_i(t) \Delta t + \frac{\vec{\gamma}_i(t)}{2} (\Delta t)^2 + \frac{d^3 \vec{r}_i}{dt^3} (\Delta t)^3 + O((\Delta t)^4) \quad (3.2)$$

et, de manière similaire :

$$\vec{r}_i(t - \Delta t) = \vec{r}_i(t) - \vec{v}_i(t) \Delta t + \frac{\vec{\gamma}_i(t)}{2} (\Delta t)^2 - \frac{d^3 \vec{r}_i}{dt^3} (\Delta t)^3 + O((\Delta t)^4). \quad (3.3)$$

L'addition des équations (3.2) et (3.3) permet d'éliminer les termes des premier et troisième ordres en Δt . Elle donne :

$$\vec{r}_i(t + \Delta t) = 2 \vec{r}_i(t) - \vec{r}_i(t - \Delta t) + \vec{\gamma}_i(t) (\Delta t)^2 + O((\Delta t)^4). \quad (3.4)$$

Pour la vitesse, nous obtenons à partir de (3.2) et (3.3) :

$$\vec{v}_i(t) = \frac{\vec{r}_i(t+\Delta t) - \vec{r}_i(t-\Delta t)}{2 \Delta t} + O((\Delta t)^2). \quad (3.5)$$

On constate que cet algorithme donne les positions à l'instant $t + \Delta t$ avec une précision de l'ordre de $(\Delta t)^4$ mais les vitesses sont données à l'instant t avec des possibilités d'erreur en

$(\Delta t)^2$. Pour pallier ces problèmes, des versions plus élaborées de l'algorithme de Verlet ont été mises au point. Citons, par exemple, l'algorithme connu sous le nom d'*algorithme Leapfrog* [127].

3.2.2.2. Algorithme de Verlet Leapfrog

Cet algorithme est basé sur le principe suivant : les vitesses sont calculées pour des intervalles de temps demi-entiers et les positions sont obtenues pour des intervalles de temps entiers. Si l'on définit les vitesses pour les temps $(t + \Delta t/2)$ et $(t - \Delta t/2)$:

$$\vec{v}_i \left(t + \frac{\Delta t}{2} \right) = \frac{\vec{r}_i(t+\Delta t) - \vec{r}_i(t)}{\Delta t}, \quad (3.6)$$

$$\vec{v}_i \left(t - \frac{\Delta t}{2} \right) = \frac{\vec{r}_i(t) - \vec{r}_i(t-\Delta t)}{\Delta t}. \quad (3.7)$$

Nous obtenons $\vec{r}_i(t + \Delta t)$ et $\vec{r}_i(t - \Delta t)$ à partir de (3.6) et (3.7), respectivement :

$$\vec{r}_i(t + \Delta t) = \vec{r}_i(t) + \vec{v}_i \left(t + \frac{\Delta t}{2} \right) \Delta t, \quad (3.8)$$

$$\vec{r}_i(t - \Delta t) = \vec{r}_i(t) - \vec{v}_i \left(t - \frac{\Delta t}{2} \right) \Delta t. \quad (3.9)$$

Par substitution de (3.8) et (3.9) dans (3.4), nous trouvons :

$$\vec{v}_i \left(t + \frac{\Delta t}{2} \right) = \vec{v}_i \left(t - \frac{\Delta t}{2} \right) + \vec{\gamma}_i(t) \Delta t + O((\Delta t)^3). \quad (3.10)$$

Dans ce cas, les vitesses sont calculées à partir de (3.10) puis les trajectoires sont déduites à partir de (3.4). Ce schéma, qui présente un décalage entre les positions et les vitesses, permet la réversibilité temporelle, conserve l'énergie, et nécessite peu de mémoire.

3.2.2.3. Algorithme de Verlet vitesse

Dans une autre variante de Verlet appelée « *Verlet vitesse* », nous avons les approximations suivantes [128] :

$$\vec{r}_i(t + \Delta t) = \vec{r}_i(t) + \vec{v}_i(t) \Delta t + \frac{1}{2} (\Delta t)^2 \vec{\gamma}_i(t), \quad (3.11)$$

$$\vec{v}_i(t + \Delta t) = \vec{v}_i(t) + \frac{\Delta t}{2} [\vec{\gamma}_i(t) + \vec{\gamma}_i(t + \Delta t)]. \quad (3.12)$$

Il existe d'autres algorithmes adaptés à la résolution numérique des équations différentielles du mouvement tels que les algorithmes *prédicteurs-correcteurs* mis au point par Gear [129].

3.2.3. Ensembles en dynamique moléculaire

Lors de l'intégration simultanée des équations de mouvement, en l'absence de force extérieure, l'énergie totale du système et la quantité de mouvement totale du système sont conservées. Si le volume est maintenu constant, la simulation reproduira les propriétés d'un ensemble microcanonique (ensemble NVE dans lequel le nombre N de particules, le volume V et l'énergie E du système sont constants). D'autres ensembles peuvent présenter des intérêts pratiques par leur analogie avec des systèmes expérimentaux dans lesquels la température ou la pression sont constantes. Nous citons : l'ensemble NVT ou *ensemble canonique* (le nombre N de particules, le volume V et la température T sont constants), l'ensemble NPT ou *ensemble isobare-isotherme* (le nombre N de particules, la pression P et la température T sont constants) et l'ensemble μ VT ou *ensemble grand-canonique* (le potentiel chimique μ , le volume V et la température T sont constants).

3.2.4. Conditions aux limites périodiques

Vu l'impossibilité de résoudre les équations de Newton pour un échantillon réel qui contient un nombre colossal de particules, on se trouve dans l'obligation de modéliser le système réel par un système simulé qui contient un nombre relativement réduit de particules et qui se trouve confiné dans une région de l'espace (de forme, généralement, parallélépipédique) appelée *boîte de simulation*. Des conditions aux limites périodiques peuvent être appliquées lors de la simulation afin de retrouver les diverses propriétés du système modélisé. Elles consistent à dupliquer la boîte de simulation un nombre infini de fois dans les trois directions de l'espace. Pour s'affranchir des effets de bord dûs aux six faces de la boîte de simulation, on considère que si une particule sort par l'une des faces de la boîte, son image entrerait au même instant par la face opposée. Ainsi, un volume quasi-infini est formé pour représenter le système.

3.2.5. Potentiel et troncature du potentiel

Le choix d'un potentiel d'interaction décrivant adéquatement les interactions entre les particules du système est important en dynamique moléculaire. Des potentiels semi-empiriques de type *atome entouré* (EAM) sont habituellement utilisés. Tenir compte des détails des interactions entre toutes les particules durant toute la simulation est une tâche très coûteuse en temps de calcul. Pour réduire le nombre des interactions, les calculs sont limités aux plus proches voisins. À cette fin, une distance de troncature est établie, au-delà de laquelle les interactions sont négligées.

3.3. L'approximation des collisions binaires

Le modèle de l'approximation des collisions binaires est largement utilisé en physique pour étudier les interactions des particules énergétiques avec la matière. Il est appliqué avec succès aux phénomènes de rétrodiffusion, pulvérisation, implantation d'ions et les dégâts causés par irradiation [71-77, 130].

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 des atomes voisins sur les deux atomes en collision sont négligés. Les atomes évoluent librement avant et après les collisions, selon leurs asymptotes de diffusion. Le nombre d'atomes qui bougent est suffisamment petit pour que les collisions entre les atomes en mouvement soient ignorées. Le ralentissement des atomes mobiles est causé par le transfert d'énergie aux atomes constituant le milieu [131-135].

3.3.1. Cascade de déplacements

Dans ce qui suit, nous allons décrire le processus de formation d'une cascade de déplacements, examiner de près une collision binaire, et détailler les phénomènes physiques qui peuvent se manifester lors du développement d'une cascade.

3.3.1.1. Description du processus de cascade

À la suite de la collision de la particule irradiante avec un atome du matériau, celui-ci acquiert une quantité d'énergie et quitte son site. Un tel atome est appelé *primaire* ou PKA (pour *primary knock-on atom*). Le primaire continue les collisions avec les atomes adjacents du réseau, produisant des atomes *secondaires* qui peuvent à leur tour déplacer d'autres atomes

du réseau et ainsi de suite. On assiste alors à une avalanche de collisions atomiques appelée *cascade de déplacements* (voir figure 3.2). Durant ces collisions, les atomes du réseau sont délogés définitivement de leurs sites cristallins s'ils reçoivent une énergie supérieure à l'énergie seuil de déplacement, E_d , du matériau. Si l'énergie transférée à l'atome cible est inférieure à E_d , l'atome effectuera des oscillations autour de sa position d'équilibre et dissipera l'énergie acquise sous forme de chaleur [89]. Durant l'expansion de la cascade, les atomes en mouvement perdent leur énergie dans les collisions élastiques et dans l'excitation des électrons du milieu, ce qui provoque leur ralentissement jusqu'à l'arrêt. Le développement de la cascade dure quelques dixièmes de picosecondes [136].

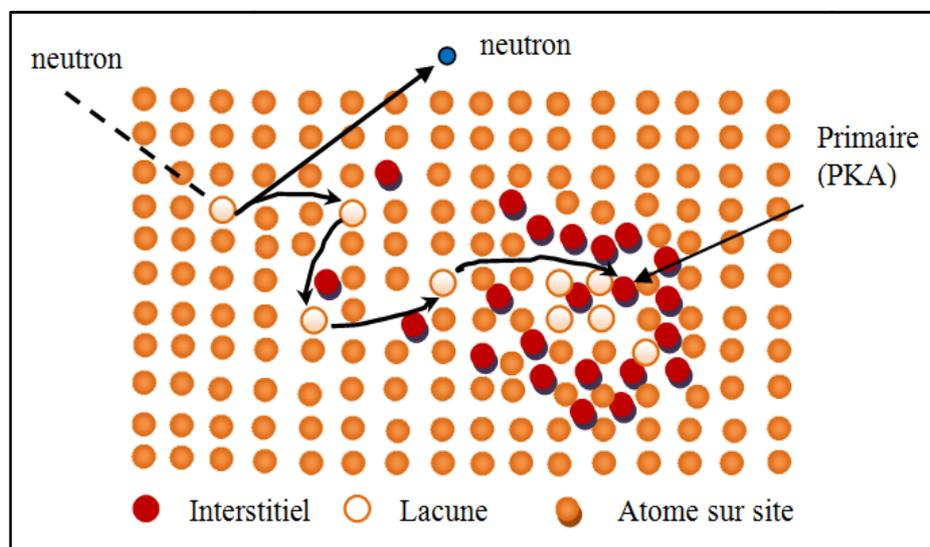


Figure 3.2. Représentation schématique de la cascade de déplacements.

Brinkman a été le premier, en 1954, à proposer le concept de cascade de déplacements [137]. Seeger a suggéré en 1956 qu'une particule énergétique passant à travers un matériau crée une zone fortement endommagée et très chaude [138]. On parle alors de *pic de chaleur* (*thermal spike*). Cette zone très restreinte est formée d'une région centrale dépeuplée, c'est-à-dire riche en lacunes, et d'une périphérie composée essentiellement d'atomes déplacés. La confirmation expérimentale de la création d'une telle zone a été faite par Beavan *et al.* [139]. Ils confirmèrent, suite à l'examen par microscopie ionique d'un échantillon de tungstène irradié, que la région endommagée du matériau est effectivement constituée d'un centre riche en lacunes entouré d'atomes interstitiels.

Les cascades initiées par un primaire de faible énergie (inférieure à 100 eV) sont moins développées et les dommages produits sont limités à quelques défauts isolés. Pour des

primaires d'énergie de quelques dizaines de keV et plus, la profondeur de pénétration dans le matériau est grande [89, 140] et les dégâts causés sont importants. En plus des défauts isolés générés, le regroupement de défauts identiques est également probable. Il donne lieu à la constitution d'amas de lacunes et d'interstitiels.

3.3.1.2. Canalisation

Lorsqu'une particule énergétique se meut dans un matériau parallèlement à une direction cristallographique de bas indice, le phénomène de canalisation se produit. Comme il est schématisé sur la figure 3.3, la particule suit une trajectoire entre les atomes, avec une section efficace de collision très faible (les interactions à petit paramètre d'impact sont peu probables). Ceci permet à la particule de parcourir de longues distances avant de subir des collisions importantes. La profondeur de pénétration dans les matériaux à structure cristallographique ordonnée est grande comparativement aux matériaux amorphes. Des expériences d'implantation d'ions ^{125}Xe de 40 keV dans une cible cristalline de tungstène ont révélé une pénétration à des profondeurs allant jusqu'à 10^{-6} m pour des faisceaux de particules dirigés le long d'axes cristallins, alors que la profondeur de pénétration maximale dans le tungstène amorphe est de 0.1×10^{-6} m [141].

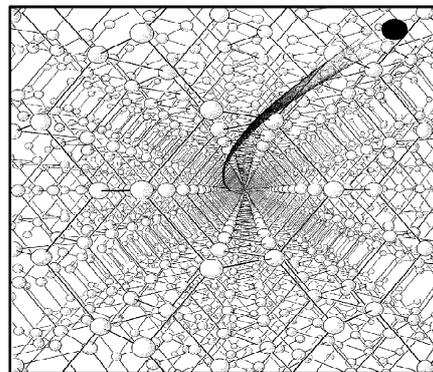


Figure 3.3. Schéma d'un atome se déplaçant dans un canal dans un réseau cristallin [106].

Sous l'effet du potentiel exercé par les atomes voisins, la trajectoire de l'atome dans le canal est ondulée (voir figure 3.4). Elle est donnée par [106] :

$$r = \theta_0 \left(\frac{E}{k}\right)^{1/2} \sin \left[\left(\frac{k}{E}\right)^{1/2} z \right], \quad (3.13)$$

avec θ_0 l'angle d'injection, E l'énergie cinétique de l'atome en mouvement et k donné par

$$k = \frac{A_{BM}}{D a_{BM}} \left(\frac{2\pi R_{ch}}{a_{BM}} \right) e^{-\frac{R_{ch}}{a_{BM}}}, \quad (3.14)$$

où R_{ch} est la largeur du canal et D la distance entre deux atomes voisins de la rangée atomique. L'angle critique, θ_{ch} , au-delà duquel la canalisation ne peut pas se produire est obtenu en posant la valeur maximale de r dans (3.13) égale au rayon R_{ch} du canal :

$$\theta_{ch} = R_{ch} \left(\frac{k}{E} \right)^{1/2}. \quad (3.15)$$

Dans la canalisation qui est un phénomène qui se produit à haute énergie, le mécanisme le plus important de la perte d'énergie est l'excitation ou l'ionisation des électrons des atomes entourant les trajets parcourus par les particules canalisées.

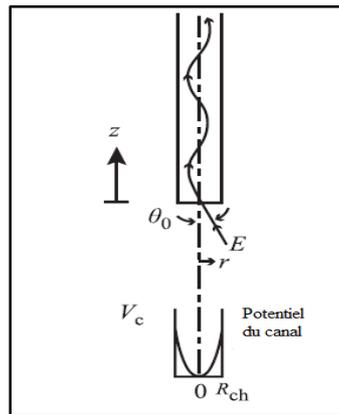


Figure 3.4. Trajectoire d'une particule canalisée [106].

3.3.1.3. Focalisation

La *focalisation* est un mécanisme de transfert d'énergie par collisions élastiques successives d'atomes voisins le long d'une rangée atomique sans impliquer un transfert de masse. Ce phénomène a tendance à se manifester dans les cascades de basses énergies ou vers la fin du développement des cascades énergétiques. Les études d'irradiation des matériaux ont indiqué que, dans la structure cubique à faces centrées, il est plus facile de déplacer les atomes de rangées cristallographiques de faibles indices (par exemple le $\langle 100 \rangle$ et $\langle 110 \rangle$) que ceux des autres directions [89].

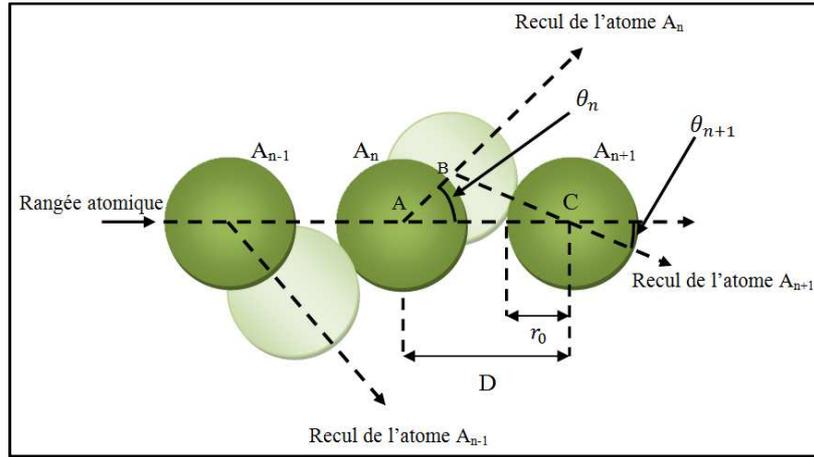


Figure 3.5. Schéma d'une séquence de focalisation [89].

Considérons, comme le montre la figure 3.5, trois atomes A_{n-1} , A_n et A_{n+1} d'une série de focalisation. L'atome A_{n-1} entre en collision avec A_n qui lui-même déplace l'atome A_{n+1} . Certaines caractéristiques de la focalisation peuvent être déterminées aisément à partir de l'approximation de la sphère dure. Désignons par r_0 le rayon d'un atome. θ_n et θ_{n+1} sont les angles de recul des atomes A_n et A_{n+1} par rapport à la direction de la rangée, respectivement. À partir du triangle ABC, on peut écrire la relation trigonométrique [89] :

$$\frac{\sin(\pi - \theta_n - \theta_{n+1})}{\sin \theta_n} = \frac{D}{2r_0}, \quad (3.16)$$

qui, pour de petits angles, se réduit à :

$$\frac{\theta_{n+1}}{\theta_n} \approx \frac{D}{2r_0} - 1. \quad (3.17)$$

La solution de cette équation aux différences finies d'ordre 1 est directe et donne l'angle θ_n en fonction de θ_0 , l'angle que faisait le premier atome de la séquence avec la direction de la rangée atomique :

$$\theta_n = \left(\frac{D}{2r_0} - 1 \right)^n \theta_0. \quad (3.18)$$

Il est clair que pour $D > 4r_0$, le coefficient de θ_0 sera supérieur à 1. Dans ce cas, les angles de recul $\theta_1, \theta_2, \dots$ augmenteront de plus en plus et il y aura *défocalisation*. Si, par contre, $D < 4r_0$, le coefficient sera inférieur à l'unité et on assiste à une focalisation de la séquence vers des collisions frontales. Donc, la valeur $D = 4r_0$ constitue une limite pour la focalisation, obtenue à partir de considérations purement géométriques. Dans un traitement plus réaliste

tenant compte des interactions entre les atomes, modélisées par exemple par le potentiel de Born-Mayer, on peut montrer que la séquence de focalisation, dans une collision frontale, ne peut commencer par un atome dont l'énergie cinétique est supérieure à une valeur E_f donnée par [89] :

$$E_f = 2 A_{BM} e^{-D/a_{BM}}, \quad (3.19)$$

Pour la structure cubique à faces centrées, les valeurs de D pour les directions $\langle 111 \rangle$, $\langle 100 \rangle$ et $\langle 110 \rangle$ sont, respectivement, $\sqrt{3}a_0$, a_0 et $a_0/\sqrt{2}$ où a_0 est le paramètre de maille. De (3.19), il apparaît que la valeur de E_f pour $\langle 110 \rangle$ est la plus grande. Ceci explique pourquoi cette direction est plus favorable à la focalisation que les autres. Vu la dépendance de E_f du paramètre de maille, sa valeur pour une direction donnée change d'un matériau à un autre. Par exemple, sa valeur pour le cuivre et l'or dans la direction $\langle 110 \rangle$ est, respectivement, 80 eV et 600 eV. Ces valeurs, qui restent faibles par rapport à l'énergie cinétique des primaires dans les cascades énergétiques, indiquent que la focalisation est un phénomène favorisé dans les cascades à faibles énergies et dans les cascades énergétiques vers la fin de leur développement.

En restant toujours dans l'approximation de la sphère dure, avec le potentiel d'interaction de Born-Mayer, on peut établir une valeur critique pour l'angle θ_0 pour laquelle la séquence de focalisation commence. Ce cas limite correspond à la situation où les cercles déplacés de la figure 3.5 sont tangents aux cercles de la rangée atomique. Le triangle ABC sera isocèle et on aura :

$$\cos(\theta_0^f) = \frac{D/2}{2r_0}. \quad (3.20)$$

Par substitution de la valeur de D de (3.19) et l'utilisation de la valeur $r_0 = (a_{BM}/2)\ln(2A_{BM}/E)$ pour le potentiel de Born-Mayer, nous aboutissons à l'expression suivante [89] :

$$\cos(\theta_0^f) = \frac{\ln(2 A_{BM}/E_f)}{\ln(2 A_{BM}/E)}, \quad (3.21)$$

où E représente l'énergie cinétique de l'atome en mouvement qui peut initier la focalisation. Les relations (3.19) et (3.21) expriment les conditions limites de création de la focalisation. À cause de la répulsion qu'ils exercent sur l'atome en mouvement, les atomes entourant la

chaîne de collisions constituent un facteur aidant dans le processus de focalisation. Ils sont, en même temps, un moyen de dissipation de l'énergie de la séquence de collisions.

3.3.1.4. Séquences de remplacement

Dans un remplacement, le projectile transfère la totalité de son énergie à l'atome cible et s'immobilise à sa place. Pour une séquence, il y a un *effet domino* qui se crée. Le long d'une rangée atomique, un projectile éjecte un atome du réseau et prend sa place. L'atome évincé éjecte à son tour un atome voisin et prend sa place et ainsi de suite. Un tel mécanisme est schématisé sur la figure 3.6. À la fin de la chaîne de remplacements, on se retrouve avec un atome interstitiel qui emporte, approximativement, la même énergie cinétique que le premier atome de la séquence.

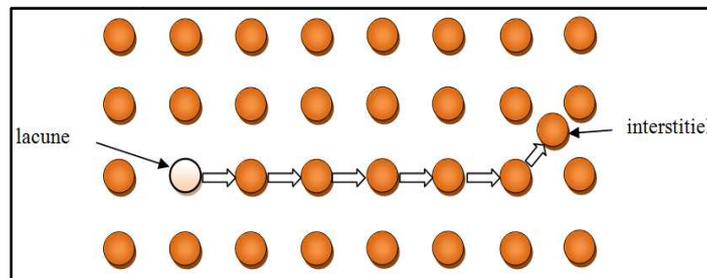


Figure 3.6. Schéma d'une séquence de remplacements.

En se basant sur le modèle de la sphère dure et en modélisant les interactions atomiques par le potentiel de Born-Mayer, on peut montrer qu'une séquence de remplacements peut avoir lieu lorsque l'énergie, E , transportée le long de la séquence satisfait la relation [106] :

$$E > E_r = \frac{A_{BM}}{2} e^{-D/2a_{BM}} = \frac{1}{4} E_f. \quad (3.22)$$

Les séquences de remplacements, par leur mécanisme qui consiste à transporter les atomes loin de leurs sites d'origine, peuvent contribuer efficacement à la création de défauts dans les matériaux irradiés. Les études théoriques montrent que les RCS peuvent atteindre une longueur de plusieurs centaines d'angströms et qu'elles diminuent rapidement si la température du cristal augmente [142].

3.3.1.5. Sous-cascades

La taille de la cascade augmente en fonction de l'énergie cinétique du primaire. À des basses énergies, l'énergie du primaire se dissipe dans un volume réduit et la cascade est

compacte. À des énergies élevées, le phénomène de canalisation des atomes de recul peut avoir lieu. Ces atomes traversent de longues distances avec des pertes d'énergie relativement minimales et finissent leurs parcours par des collisions dans lesquelles le transfert d'énergie aux atomes cibles est important. Ce qui mène à la formation de *sous-cascades*. La figure 3.7 présente des cascades de déplacements dans le fer pour différentes énergies du primaire. Si à 5 et 10 keV, les dommages causés par irradiation sont confinés dans des zones spatiales petites, à 100 keV, on observe la formation de plusieurs sous-cascades. La structure de la cascade de déplacements (la taille, le nombre de défauts produits, le nombre de sous-cascades) dépend de l'énergie du primaire et du matériau étudié. Il est difficile d'étudier expérimentalement la formation des sous-cascades car leur durée de vie est très courte (quelques ps) et leur taille est très petite (environ 10 nm). Néanmoins, il est possible d'obtenir des informations sur la structure des cascades de déplacements moyennant des méthodes de simulation ou via des approches théoriques. Ainsi, dans un modèle suggéré par Ryazanov, basé sur la résolution numérique de l'équation de transport de Boltzmann dans une approximation de collisions binaires, la valeur seuil de l'énergie du primaire au-delà de laquelle il y a formation de sous-cascades est donnée approximativement par [143] :

$$E(\text{keV}) = 0.0056 Z^{2.415}, \quad (3.23)$$

où Z est le numéro atomique du matériau. L'application de cette relation pour les métaux Cu, Ag et Au donne 20, 62 et 210 keV, respectivement. La simulation par la méthode de Monte-Carlo donne pour ces mêmes métaux les valeurs 26, 48 et 172 keV [143].

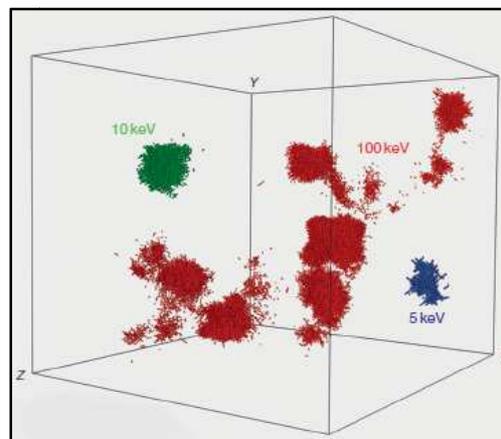


Figure 3.7. Formation de sous-cascades dans le fer en fonction de l'énergie du primaire

3.3.1.6. Création de défauts stables

Les collisions atomiques multiples au sein d'une cascade provoquent le déplacement des atomes du réseau et produisent des lacunes et des interstitiels. Un phénomène de réarrangement s'en suit à fin d'atténuer le désordre cristallin. Les défauts ponctuels générés vont, par effet thermique, diffuser dans le réseau atomique jusqu'à rencontrer une entité de type différent et se recombinaison. Ce processus de guérison a pour conséquence de réduire considérablement le dommage créé pendant la phase balistique. Dans les simulations par la dynamique moléculaire, une paire de Frenkel est considérée comme étant stable si elle survit durant un temps suffisamment long (environ 5 ps), comparé au temps de vie de la cascade (qui est de l'ordre de la picoseconde).

La BCA n'intègre pas la diffusion thermique des défauts dans son modèle. Pour tenir compte de la recombinaison, on introduit un *volume d'instabilité* [76, 144, 145]. On considère alors qu'une paire de Frenkel est stable si la distance qui sépare la lacune de l'interstitiel est supérieure au rayon de ce volume d'instabilité (appelé aussi *rayon de recombinaison*). La recombinaison ainsi définie est athermique et isotrope. Le rayon de recombinaison, r_v , dépend du potentiel d'interaction atomique utilisé. Donc, la position relative des défauts est un paramètre crucial dans la détermination de leur nombre final dans une cascade de déplacements. Si le rapprochement des entités différentes mène à leur annihilation, l'agglomération des entités de même espèce conduit à la formation d'amas [89].

3.3.2. Cinétique des collisions élastiques

La collision entre un atome en mouvement et un atome du réseau est souvent supposée élastique. Dans un tel événement, il y a conservation de l'énergie cinétique totale du système. La perte d'énergie inélastique est causée par l'excitation ou l'ionisation des électrons atomiques impliqués dans la collision. L'énergie transférée dans ce processus ne conduit pas aux déplacements atomiques et donc à la création de défauts [89]. Plusieurs grandeurs physiques caractérisant une collision binaire peuvent être obtenues par application des lois de conservation de l'énergie et de l'impulsion. Dans ce qui suit, nous allons examiner de près une seule collision atomique. Lors de l'analyse, nous prendrons deux instants, bien avant et bien après la collision, de sorte qu'aucune force ne soit exercée entre les deux particules et leur énergie se trouve uniquement sous forme d'énergie cinétique. Un traitement classique de la collision sera suffisant, étant donné que les énergies cinétiques considérées dans notre étude ne dépassent pas quelques dizaines de keV.

Deux modèles sont utilisés conjointement pour analyser le phénomène de collision binaire : la théorie des collisions élastiques et la théorie de la diffusion classique d'une particule chargée dans un champ de force central. Les calculs sont effectués dans le *référentiel du laboratoire* (L) et dans le *référentiel du centre de masse* (CM) dans lequel la dynamique s'exprime de manière remarquablement simple.

3.3.2.1. Système du laboratoire

Considérons un atome de masse m_1 , de vitesse \vec{v}_0 et d'énergie E_0 entrant en collision avec un atome cible immobile de masse m_2 . Désignons par \vec{v}_1 , \vec{v}_2 , respectivement, les vitesses du projectile et de l'atome cible après la collision et par Q l'énergie inélastique perdue par excitation électronique. La figure 3.8 schématise une collision binaire dans le système de référence du laboratoire. Les lois de conservation de l'énergie totale et de l'impulsion du système dans le référentiel du laboratoire s'écrivent [105] :

$$\frac{1}{2}m_1v_0^2 = \frac{1}{2}m_1v_1^2 + \frac{1}{2}m_2v_2^2 + Q, \quad (3.24)$$

$$m_1\vec{v}_0 = m_1\vec{v}_1 + m_2\vec{v}_2. \quad (3.25)$$

En raison de la très faible masse des électrons devant celle des atomes, l'impulsion emportée par les électrons est extrêmement faible et elle est négligée dans les calculs [105]. En décomposant les vecteurs-vitesse suivant l'axe du mouvement Ox et un axe perpendiculaire Oy , nous obtenons de la relation (3.25) :

$$\begin{cases} m_1v_0 = m_1v_1\cos\theta_1 + m_2v_2\cos\theta_2 \\ 0 = m_1v_1\sin\theta_1 - m_2v_2\sin\theta_2 \end{cases}, \quad (3.26)$$

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

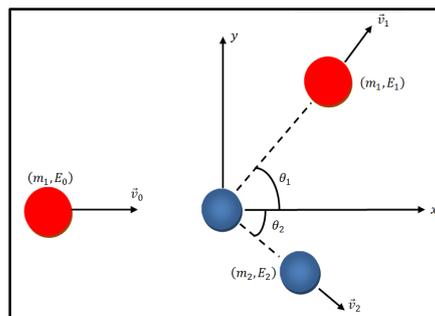


Figure 3.8. Schéma d'une collision binaire dans le système de référence du laboratoire.

L'utilisation des relations (3.24) et (3.26) permet la détermination des angles de diffusion θ_i en fonction des énergies $E_i = m_i v_i^2 / 2$ (avec $i = 0, 1, 2$ et $m_0 = m_1$) :

$$\cos\theta_1 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_1}{E_0}} (1 + A) + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_0}{E_1}} \left[1 - A \left(1 - \frac{Q}{E_0} \right) \right], \quad (3.27)$$

$$\cos\theta_2 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_2}{E_0}} \frac{1+A}{\sqrt{A}} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_0}{E_2}} \frac{1}{\sqrt{A}} \frac{Q}{E_0}, \quad (3.28)$$

avec $A = m_2/m_1$.

3.3.2.2. Système du centre de masse

Le centre de masse des deux atomes est animé d'une vitesse \vec{v} par rapport au référentiel du laboratoire. Désignons par \vec{v}_{1c} et \vec{v}_{2c} les vitesses du projectile et de l'atome cible avant la collision dans un référentiel lié au centre de masse (CM), respectivement. La loi de composition des vitesses permet d'écrire :

$$\begin{cases} \vec{v}_{1c} = \vec{v}_0 - \vec{v} \\ \vec{v}_{2c} = -\vec{v} \end{cases} \quad (3.29)$$

La loi de conservation de l'impulsion totale du système s'écrit :

$$m_1 \vec{v}_{1c} + m_2 \vec{v}_{2c} = m_1 \vec{v}'_{1c} + m_2 \vec{v}'_{2c} = 0, \quad (3.30)$$

\vec{v}'_{1c} et \vec{v}'_{2c} étant les vitesses du projectile et de l'atome cible après la collision dans le référentiel (CM), respectivement. À partir des relations (3.29) et (3.30), on déduit :

$$\vec{v} = \frac{1}{1+A} \vec{v}_0, \quad (3.31)$$

$$\vec{v}_{1c} = \frac{A}{1+A} \vec{v}_0, \quad (3.32)$$

$$\vec{v}_{2c} = \frac{-1}{1+A} \vec{v}_0. \quad (3.33)$$

La loi de conservation de l'énergie totale dans le référentiel (CM) a pour expression :

$$\frac{1}{2} m_1 v_{1c}^2 + \frac{1}{2} m_2 v_{2c}^2 = \frac{1}{2} m_1 v_{1c}^2 + \frac{1}{2} m_2 v_{2c}^2 + Q. \quad (3.34)$$

Par substitution de (3.32) et (3.33) dans (3.34), on obtient pour l'énergie totale dans le système (CM) :

$$E_r = E_{1c} + E_{2c} = \frac{A}{1+A} E_0 . \quad (3.35)$$

3.3.2.3. Relations entre le système du laboratoire et le système du centre de masse

Il est important de connaître les relations de passage entre les systèmes du laboratoire et du centre de masse afin de calculer l'angle de diffusion dans le système du laboratoire à partir de celui du (CM). Les relations entre les vitesses dans les deux référentiels sont illustrées sur la figure (3.9).

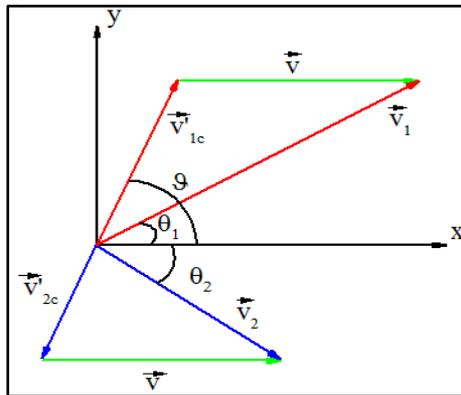


Figure 3.9. Relations entre les vitesses dans les référentiels du laboratoire et du centre de masse.

Nous avons pour les vitesses la relation suivante :

$$\vec{v}_1 = \vec{v}'_{1c} + \vec{v}. \quad (3.36)$$

La projection de cette relation sur les axes Ox et Oy conduit aux relations :

$$\begin{cases} v'_{1c} \cos\vartheta + v = v_1 \cos\theta_1 \\ v'_{1c} \sin\vartheta = v_1 \sin\theta_1 \end{cases} . \quad (3.37)$$

Le rapport des deux relations donne pour l'angle de diffusion θ_1 l'expression :

$$\tan\theta_1 = \frac{\sin\vartheta}{\cos\vartheta + v/v'_{1c}} . \quad (3.38)$$

Afin d'obtenir une relation directe entre θ_1 et ϑ , nous utilisons dans un premier temps les relations (3.30), (3.31) et (3.34) pour obtenir :

$$\left(\frac{v'_{1c}}{v_{1c}}\right)^2 = 1 - \frac{1+A}{A} \frac{Q}{E_0} = 1 - \frac{Q}{E_r} = f^2, \quad (3.39)$$

où $f = \sqrt{1 - \frac{Q}{E_r}}$, puis nous utilisons les relations (3.31), (3.32) et (3.39) pour obtenir :

$$\frac{v}{v'_{1c}} = (f A)^{-1}. \quad (3.40)$$

Portons maintenant (3.40) dans (3.38) :

$$\tan\theta_1 = \frac{A f \sin\vartheta}{1+A f \cos\vartheta}. \quad (3.41)$$

Un calcul similaire donne pour l'angle θ_2 :

$$\tan\theta_2 = \frac{\sin\vartheta}{1-f \cos\vartheta}. \quad (3.42)$$

Finalement, à partir de (3.41), (3.42) et la relation trigonométrique $\cos = 1/\sqrt{1 + \tan^2(\theta_i)}$, nous pouvons écrire :

$$\cos\theta_1 = \frac{1+A f \cos\vartheta}{\sqrt{1+2 A f \cos\vartheta+A^2 f^2}}, \quad (3.43)$$

et

$$\cos\theta_2 = \frac{1-f \cos\vartheta}{\sqrt{2-2 f \cos\vartheta-(1-f^2) \cos^2\vartheta}}. \quad (3.44)$$

3.3.2.4. Transfert d'énergie

Afin de calculer l'énergie restant au projectile après la collision et l'énergie transférée à l'atome cible en fonction de l'angle de diffusion dans le centre du masse, tirons tout d'abord des relations (3.27) et (3.28) les rapports E_1/E_0 et E_2/E_0 :

$$\frac{E_1}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} \left(\cos\theta_1 \pm \sqrt{A^2 f^2 - \sin^2\theta_1}\right)^2 = \left(\frac{v_1}{v_0}\right)^2, \quad (3.45)$$

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{A}{(1+A)^2} \left(\cos\theta_2 \pm \sqrt{f^2 - \sin^2\theta_2}\right)^{m_2} = A \left(\frac{v_2}{v_0}\right)^2, \quad (3.46)$$

puis utilisons les expressions (3.43) et (3.44) :

$$\frac{E_1}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} \left((1 + A f)^2 - 4 A f \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right), \quad (3.47)$$

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{A}{(1+A)^2} \left((1 - f)^2 + 4 f \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right). \quad (3.48)$$

A l'aide de (3.35) et (3.46), l'énergie transférée à l'atome cible prend la forme finale suivante :

$$E_2 = T = \frac{E_r}{(1+A)} \left((1 - f)^2 + 4 f \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right). \quad (3.49)$$

L'énergie cinétique transférée à l'atome cible prend sa valeur maximale lorsque l'énergie transférée aux électrons est nulle ($Q = 0$), ce qui revient à poser : $f = 1$ et $\sin^2(\vartheta/2) = 1$:

$$T_{max} = \frac{4}{1+A} E_r = \frac{4 A}{(1+A)^2} E_0. \quad (3.50)$$

3.3.2.5. Angle de diffusion et l'intégrale du temps

Soit $V(r)$ le potentiel interatomique qui décrit l'interaction entre le projectile et l'atome cible. Il dépend de la distance entre les deux atomes ($r = |\vec{r}_1 - \vec{r}_2|$) et il est invariant vis-à-vis des translations et des rotations d'ensemble. Pour un potentiel central, il y a conservation du moment cinétique du système. L'énergie totale dans le système du centre de masse est [105] :

$$E_c = \frac{1}{2} m_1 v_{1c}^2 + \frac{1}{2} m_2 v_{2c}^2. \quad (3.51)$$

Cette relation se transforme à l'aide des formules (3.32) et (3.33) sous la forme :

$$E_c = \frac{1}{2} \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2} v_0^2 = E_r. \quad (3.52)$$

Il connu que le problème à deux corps en interaction ($V(|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|)$) peut être résolu de façon exacte en considérant tout d'abord le mouvement d'une particule de masse

$\mu = m_1 m_2 / (m_1 + m_2)$ (appelée masse réduite) dans un champ de force central. En coordonnées polaires illustrées dans la figure (3.10), nous pouvons écrire pour cette particule :

$$\frac{\mu}{2} (\dot{r}^2 + r^2 \dot{\varphi}^2) + V(r) = E_r . \quad (3.53)$$

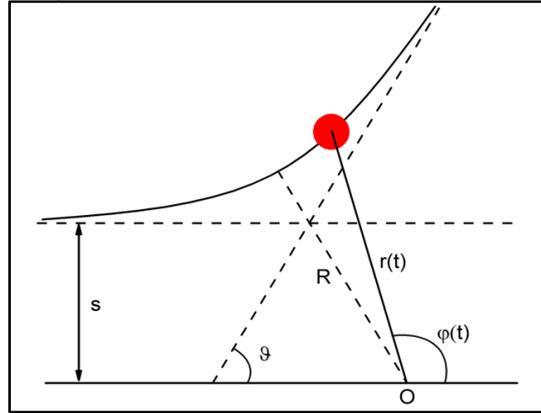


Figure 3.10. Définition de l'angle de diffusion ϑ et des coordonnées polaires $r(t)$ et $\varphi(t)$ dans le référentiel du centre de masse.

La conservation du moment cinétique donne :

$$r^2 \dot{\varphi} = -v_0 s, \quad (3.54)$$

où s est le paramètre d'impact qui est la distance perpendiculaire entre la trajectoire initiale du projectile et la position initiale de la cible. La substitution de (3.54) dans (3.53) permet la détermination de la vitesse radiale :

$$\dot{r} = \pm \sqrt{\frac{2}{\mu} [E_r - V(r)] - \frac{v_0^2 s^2}{r^2}} = \pm v_0 \sqrt{1 - \frac{V(r) - \frac{s^2}{r^2}}{E_r}} . \quad (3.55)$$

Les signes *plus* et *moins* font la distinction entre les deux phases de la collision : l'approche et la séparation du projectile de la cible. La distance minimale d'approche entre les deux atomes en collision, R , est la distance à laquelle la composante de la vitesse \dot{r} s'annule. Elle est solution de l'équation :

$$g(R) = 0, \quad (3.56)$$

avec

$$g(r) = \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_r} - \frac{s^2}{r^2}}. \quad (3.57)$$

Evaluons maintenant l'angle de diffusion ϑ . À partir des relations (3.54) et (3.55), nous pouvons écrire :

$$\frac{d\varphi}{dr} = \frac{\dot{\varphi}}{\dot{r}} = \pm \frac{s}{g(r) r^2}. \quad (3.58)$$

Le signe plus est utilisé pour la partie de la trajectoire avant d'atteindre l'abscisse de collision, alors que le signe moins est utilisé dans la partie restante de la trajectoire :

$$\int_{\pi}^{\vartheta} d\varphi = \int_{\infty}^R \frac{s dr}{r^2 g(r)} - \int_R^{\infty} \frac{s dr}{r^2 g(r)} = 2 s \int_{\infty}^R \frac{dr}{r^2 g(r)}. \quad (3.59)$$

L'intégration du membre gauche de l'équation donne l'angle de diffusion :

$$\vartheta = \pi - 2 s \int_R^{\infty} \frac{dr}{r^2 g(r)}. \quad (3.60)$$

L'intégrale du temps est donnée par l'expression [105] :

$$\tau = \sqrt{R^2 - s^2} - \int_R^{\infty} dr \left[\frac{1}{g(r)} - \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{s^2}{r^2}}} \right]. \quad (3.61)$$

Les intégrales dans les expressions (3.60) et (3.61) sont estimées numériquement par la formule de quadrature de Gauss-Mehler [131]. Les abscisses x_1 et x_2 des points d'intersection des asymptotes du projectile et de l'atome cible (voir figure 3.11) sont données par [131] :

$$x_1 = \frac{[(1+f)\tau + (f A - 1) s \tan \frac{\vartheta}{2}]}{f(1+A)}, \quad (3.62)$$

$$x_2 = s \tan \frac{\vartheta}{2} - x_1. \quad (3.63)$$

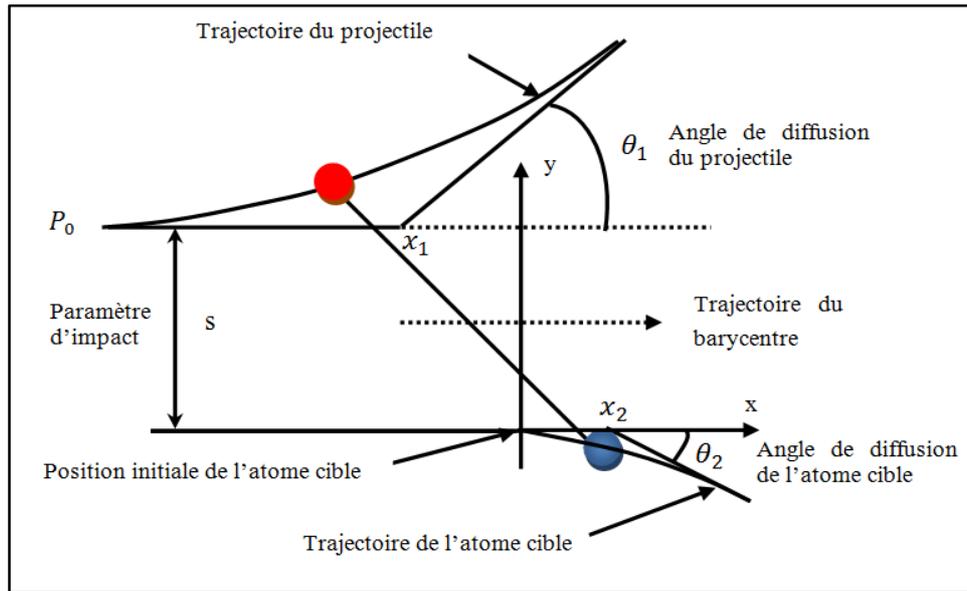


Figure 3.11. Trajectoires du projectile et de la cible et les asymptotes de leurs trajectoires dans le référentiel du laboratoire [131].

3.3.3. Mécanisme de la perte d'énergie

Lorsqu'une particule pénètre dans la matière, elle cède son énergie au milieu, principalement par deux processus : la collision nucléaire et la collision électronique. La collision nucléaire traduit les chocs élastiques directs avec les atomes de la substance. La structure électronique des atomes reste inchangée et il y a conservation de l'énergie cinétique et de la quantité du mouvement du système. La collision électronique ou inélastique traduit l'interaction entre le projectile et le nuage électronique des atomes cibles menant à l'excitation et l'ionisation de ceux-ci. Ce processus de perte d'énergie, qui est considéré comme continu, est assimilé au mouvement du projectile dans un milieu visqueux. Ainsi le projectile dépose de l'énergie le long de son parcours [89, 119, 146, 147].

Le *pouvoir d'arrêt* d'un matériau pour une particule est une mesure de la quantité d'énergie que celle-ci perd par unité de longueur le long de son parcours ($-dE/dx$). Lorsque le pouvoir d'arrêt est rapporté ou normalisé à la densité atomique N de la substance, on parle de *section efficace d'arrêt* :

$$S = \frac{1}{N} \left(-\frac{dE}{dx} \right). \quad (3.64)$$

Nous nous intéressons, dans ce qui suit, au pouvoir d'arrêt pour chaque type d'interaction.

3.3.3.1. Pertes d'énergie électronique

Le pouvoir d'arrêt électronique, $(-dE/dx)_e$, dépend de la vitesse du projectile et de sa charge Z_1 . Trois domaines de vitesse sont à distinguer, définis par rapport à la quantité $v = Z_1^{2/3} e^2/\hbar$ où $\hbar = h/2\pi$ avec h la constante de Planck [146].

À des vitesses $v \gg Z_1^{2/3} e^2/\hbar$, la probabilité que la particule en mouvement se trouve totalement épluchée de ses électrons externes est grande. La particule se meut dans le matériau comme un ion de charge effective Z_{eff} et elle interagit à travers un potentiel coulombien avec les électrons de la cible. Les travaux de Bethe [148], Bloch [149] et Ziegler [150] ont mené à l'expression suivante du pouvoir d'arrêt qui intègre les effets quantiques et relativistes :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = NS_{BB} = \frac{e^4}{2\pi\epsilon_0^2} \frac{Z_{\text{eff}}^2}{m_e v^2} N Z_2 \left[\ln\left(\frac{2m_e v^2}{I}\right) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 - \frac{C_K}{Z_2} - \frac{\delta}{2} \right], \quad (3.65)$$

où I est le potentiel moyen d'excitation de l'atome cible, Z_2 est le numéro atomique de l'atome cible, ϵ_0 est la permittivité du vide, C_K est une correction introduite pour tenir compte du fait que les électrons de la couche K sont bien liés pour pouvoir être éjectés facilement, δ est une constante de correction de la densité de charge due au fait que le champ électrique de la particule incidente polarise les atomes près de sa trajectoire et mène à la réduction de la perte d'énergie et $\beta = v/C$ avec C la vitesse de la lumière dans le vide. Le paramètre C_K est donné par la relation empirique [151] :

$$C_K = (0.4224 \gamma^{-2} + 0.0304 \gamma^{-4} - 0.000381 \gamma^{-6}) 10^{-6} I^2 + (3.8502 \gamma^{-2} - 0.1668 \gamma^{-4} - 0.001579 \gamma^{-6}) 10^{-9} I^3, \quad (3.66)$$

où $\gamma = 1/\sqrt{1 - \beta^2}$. La valeur du potentiel moyen d'excitation, I , peut être estimée à partir des formules empiriques suivantes [152] :

$$I \cong \begin{cases} 19.0 & \text{eV} & Z_2 = 1 \\ 11.2 + 11.7 Z_2 & \text{eV} & 2 \leq Z_2 \leq 13. \\ 52.8 + 8.71 Z_2 & \text{eV} & Z > 13 \end{cases} \quad (3.67)$$

Différentes formules empiriques existent pour évaluer la charge effective de la particule en mouvement. Citons à titre d'exemple la relation de Barkas [153] :

$$Z_{eff} = Z_1 \left(1 - e^{-125 \beta Z_1^{-2/3}} \right) \quad (3.68)$$

et celle suggérée par Hubert *et al.* [154] où Z_{eff} dépend de la vitesse du projectile et du numéro atomique des atomes composant le milieu :

$$Z_{eff} = Z_1 \left(1 - \alpha_1 e^{-\alpha_2 (E/A)^{\alpha_3} \beta Z_2^{-\alpha_4}} \right), \quad (3.69)$$

avec

$$\begin{cases} \alpha_1 = 1.164 + 0.2319 e^{-0.004302 Z_2} + 1.658 e^{-0.0517 Z_2} \\ \alpha_2 = 8.144 + 0.098976 \ln(Z_2) \\ \alpha_3 = 0.314 + 0.01072 \ln(Z_2) \end{cases} . \quad (3.70)$$

La formule de Bethe-Bloch est une bonne approximation pour les particules lourdes d'énergie 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.

Pour des vitesses $v \ll Z_1^{2/3} e^2/\hbar$, la formule (3.65) n'est plus valable. Deux modèles fondés sur les collisions binaires sont souvent utilisés pour estimer le pouvoir d'arrêt du milieu dans ce domaine de vitesse : le *modèle de Firsov* [155] et le *modèle de Lindhard-Scharff-Schiott* (LSS) [156]. Dans l'approche de Firsov, basée sur le modèle de Thomas-Fermi, le projectile et l'atome-cible sont supposés former une quasi-molécule durant la période de leur interaction [70] (voir figure 3.12). L'interaction entre les deux corps donne lieu à des échanges électroniques qui nécessitent l'acquisition d'impulsion provenant de la collision. Le pouvoir d'arrêt obtenu par Firsov est donné par :

$$\left(-\frac{dE}{dx} \right)_e = 5.15 \cdot 10^{-15} N (Z_1 + Z_2) \frac{v}{v_B}, \quad (3.71)$$

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

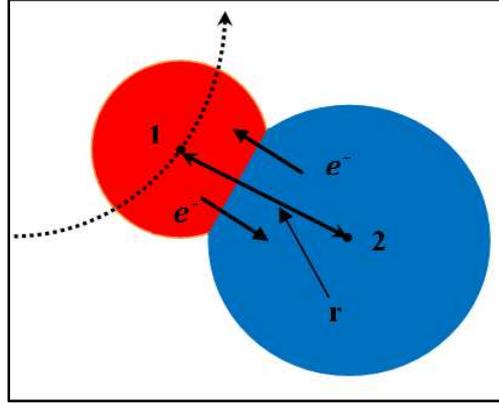


Figure 3.12. Schéma correspondant à la perte d'énergie électronique selon le modèle de Firsov.

Dans le modèle LSS, le milieu dans lequel se produit l'interaction est décrit comme un gaz d'électrons libres. Les échanges d'électrons entre le projectile et les atomes cibles se traduisent par un transfert d'énergie au nuage électronique produisant des vibrations thermiques au sein de celui-ci. En utilisant le modèle statistique de Thomas-Fermi, Lindhard *et al.* ont obtenu l'expression suivante pour le pouvoir d'arrêt électronique [157] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = NS_{LS} = \frac{8 \pi e^2 N a_B Z_1^{7/6} Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \frac{v}{v_B} . \quad (3.72)$$

En utilisant la relation entre l'énergie cinétique d'une particule et sa vitesse on obtient :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = k \sqrt{E}, \quad (3.73)$$

où k est une constante. Dans ce domaine énergétique, le pouvoir d'arrêt augmente avec l'énergie de la particule. Il possède un caractère non local puisqu'il est indépendant de la position du projectile par rapport aux atomes cibles avec lesquels il interagit. Par conséquent, à chaque collision, la perte d'énergie inélastique est indépendante du paramètre d'impact.

La région des vitesses intermédiaires $v \approx Z_1^{2/3} e^2 / \hbar$ est difficile à décrire théoriquement. Des phénomènes de perte et de capture d'électrons entre le projectile et les atomes du milieu interviennent. Selon Varelas et Biersack [105], le pouvoir d'arrêt dans cette région peut être décrit à partir de ceux des deux autres régions par une interpolation de la forme :

$$\frac{1}{s} = \frac{1}{s_{BB}} + \frac{1}{s_{LS}}. \quad (3.74)$$

L'utilisation de (3.74) a donné des résultats en accord satisfaisant avec les résultats expérimentaux [158].

3.3.3.2. Pertes d'énergie élastiques

Les pertes d'énergie élastiques correspondent aux cessions de la quantité d'énergie par le projectile aux atomes du milieu lorsqu'il a déjà été fortement ralenti, c'est-à-dire vers la fin de son parcours. Les collisions élastiques du projectile avec les noyaux de la cible se succèdent jusqu'à son arrêt. Le pouvoir d'arrêt élastique ou nucléaire est donné par [159] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = N \int_{T_{min}}^{T_{max}} T \sigma(T) dT, \quad (3.75)$$

où T est l'énergie transférée à l'atome cible et qui est susceptible de le déplacer pour créer une lacune. Elle est donnée par l'expression (3.49). T_{min} et T_{max} désignent, respectivement, l'énergie minimale et l'énergie maximale pouvant être communiquées à l'atome cible durant le choc. σ représente la section efficace de diffusion, c'est-à-dire la probabilité pour que le projectile cède l'énergie T à l'atome cible. L'évaluation de l'intégrale (3.75) nécessite le calcul de l'angle de déflexion qui dépend lui-même du potentiel interatomique. Les calculs faisant usage d'un potentiel coulombien $V(r) = (Z_1 Z_2 e^2)/r^2$ ont donné [159] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = \frac{2\pi N m_1 Z_1^2 Z_2^2 e^4}{m_2 E} \ln\left(\frac{T_{max}}{T_{min}}\right). \quad (3.76)$$

Le pouvoir d'arrêt, ainsi calculé, ne tient pas compte des nuages électroniques du projectile et de l'atome cible qui font écran aux charges des noyaux et atténuent la force de répulsion coulombienne. Un traitement plus réaliste passe par l'utilisation d'un potentiel écranté de type (voir relation (2.10)) :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi\left(\frac{r}{a_{12}}\right). \quad (3.77)$$

Se basant sur un potentiel écranté de type Thomas-Fermi, Biersack proposa l'expression suivante pour le pouvoir d'arrêt nucléaire :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = 4\pi N Z_1 Z_2 e^2 a_{12} \frac{m_1}{(m_1+m_2)} \frac{\ln \epsilon}{2\epsilon (1-\epsilon^{-1.49})}, \quad (3.78)$$

où ϵ est l'énergie réduite donnée par :

$$\epsilon = \frac{m_2 a_{12}}{(m_1+m_2)} \frac{E}{Z_1 Z_2 e^2} \quad (3.79)$$

et a_{12} est le paramètre d'écran donné par :

$$a_{12} = \frac{0.4685}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}}. \quad (3.80)$$

Des calculs similaires utilisant le potentiel ZBL mènent à l'approximation suivante [106] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_N = \frac{8.462 \times 10^{-15} Z_1 Z_2 m_1}{(m_1+m_2) (Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})} S_n(\epsilon), \quad (\text{eV}/(\text{atome}/\text{cm}^2)), \quad (3.81)$$

avec

$$S_n(\epsilon) = \begin{cases} \frac{\ln(1+1.1383 \epsilon)}{2(\epsilon+0.01321 \epsilon^{0.212226} + 0.19593 \epsilon^{0.5})} & \epsilon \leq 30 \text{ keV} \\ \frac{\ln \epsilon}{2\epsilon} & \epsilon > 30 \text{ keV} \end{cases}. \quad (3.82)$$

L'énergie réduite est maintenant donnée par :

$$\epsilon = \frac{32.53 m_2}{Z_1 Z_2 (m_1+m_2) (Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})} E. \quad (3.83)$$

3.3.3.3. Perte d'énergie totale

La superposition des deux processus de la perte d'énergie, électronique et nucléaire, donne le pouvoir d'arrêt total du projectile dans le matériau :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_t = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_N + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_e. \quad (3.84)$$

Les deux mécanismes sont en compétition et leur importance relative dépend à la fois du projectile (énergie, masse, charge) et des caractéristiques de la cible. 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 est négligeable peut être

établie en se basant sur le fait que l'atome étant un système quantifié, un électron ne peut accepter une énergie insuffisante pour l'exciter vers un état libre. Donc, le projectile doit transférer à l'électron une énergie au moins égale à son énergie de liaison, I , dans le matériau. L'énergie qu'un électron acquiert dans une collision frontale avec un atome en mouvement de masse m_1 est donnée par (3.50) (on pose $m_2 = m_e, T_{max} = I, E_0 = E^*$) [89] :

$$E^* = \frac{m_1}{4 m_e} I. \quad (3.85)$$

Pour les métaux, la valeur $I = 2eV$ constitue une bonne approximation [89]. En prenant $m_e \cong 1/2000$ uma, nous obtenons :

$$E^* \cong 1000 m_1 [eV] = m_1 [keV]. \quad (3.86)$$

Ainsi, lorsque l'énergie cinétique d'une particule traversant un solide devient inférieure à sa masse exprimée en keV, la perte d'énergie par collisions nucléaires devient le mécanisme le plus prépondérant. Par exemple, pour le fer, ^{56}Fe , la valeur de l'énergie seuil est $E^* \cong 56keV$. Comme nous l'avons précisé, le projectile passe par divers états de charge. À haute énergie, il est au départ dépouillé de ses électrons puis, en ralentissant dans la cible, il capture des électrons des atomes du milieu pour finalement atteindre sa charge d'équilibre. Le ralentissement est alors essentiellement de nature électronique. Vers la fin du parcours du projectile, ce qui correspond aux basses énergies, le ralentissement est essentiellement de nature nucléaire.

Dans les tables, il est d'usage d'utiliser le pouvoir d'arrêt massique qui est obtenu en divisant la formule de la perte d'énergie par la masse volumique ρ du matériau traversé, ce qui permet de construire des tables de valeurs numériques très générales :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_m = \frac{1}{\rho} \left(-\frac{dE}{dx}\right). \quad (3.87)$$

La figure (3.13) représente le pouvoir d'arrêt massique du tantale pour des atomes de tantale.

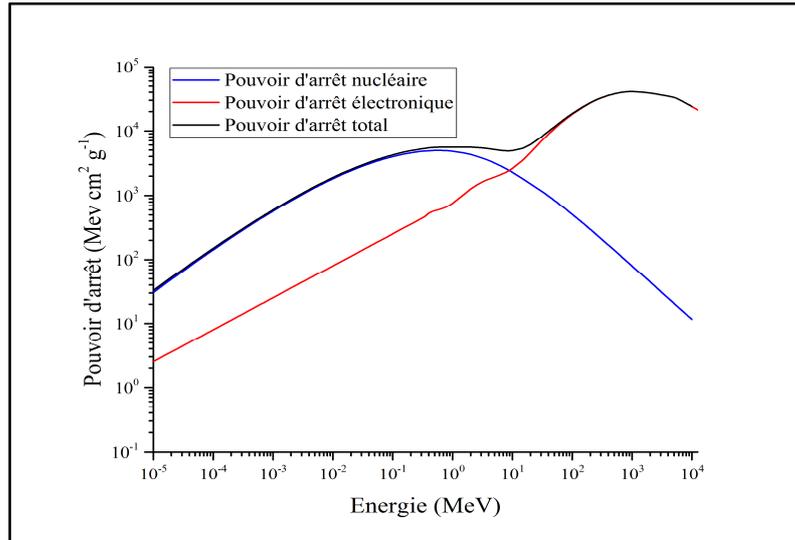


Figure 3.13. Pouvoir d'arrêt du tantale pour des atomes de tantale.

Selon la règle d'additivité de Bragg, pour un milieu contenant plus d'un élément, le pouvoir d'arrêt du composé est la somme des pouvoirs d'arrêt dus à chacun des éléments, pondérés par leur abondance respective [160] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{composé} = \sum_i f_i \left(-\frac{dE}{dx}\right)_i, \quad (3.88)$$

avec $(-dE/dx)_i$ le pouvoir d'arrêt de l'élément i et f_i sa fraction en masse.

La connaissance de la perte d'énergie d'une particule est une donnée fondamentale dans l'étude du ralentissement. Elle permet l'estimation du parcours, R , qui est la longueur totale de la trajectoire de la particule dans le milieu lorsque son énergie décroît de E_0 à 0 :

$$R = \int_0^R dx = \int_0^{E_0} \frac{dE}{(-dE/dx)_t}. \quad (3.89)$$

3.3.4. Energie seuil de déplacement

Dans le modèle BCA, il est supposé qu'un déplacement atomique ne peut produire une paire de Frenkel stable que si l'énergie transférée à l'atome cible, T , est supérieure à une valeur, E_d , appelée énergie seuil de déplacement. Si T est inférieure à E_d , l'atome heurté effectue des vibrations autour de sa position d'équilibre et évacue l'énergie sous forme de chaleur. La détermination d'une valeur appropriée pour l'énergie seuil de déplacement est une tâche difficile, vu sa forte dépendance des directions cristallographiques. Pour une structure cubique simple, les directions cristallographiques présentant plus de facilité pour le déplacement des atomes sont $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$, alors que pour une structure cubique à

faces centrées c'est la direction $\langle 110 \rangle$ et pour la structure cubique centrée c'est la direction $\langle 111 \rangle$ [106]. Le long de ces directions, l'énergie seuil de déplacement est faible. Pour les calculs théoriques et de simulations, il est fréquent de prendre pour E_d les valeurs moyennes tabulées par la société américaine de test des matériaux (ASTM) (pour *American Society for Testing of Materials*). Le tableau (3.1) donne les valeurs de E_d pour quelques métaux [161].

Tableau 3.1. Valeurs moyennes de l'énergie de déplacement pour quelques métaux.

Métal	Structure	E_d (eV) [161]
Al	cfc	25
Cu	cfc	30
Fe	cc	40
Mo	cc	60
Ni	cfc	40
W	cc	90
Ta	cc	90
Pb	cc	25
V	cc	40
Zr	hcp	40
Ti	hcp	30

3.3.5. Nombre d'atomes déplacés et paires de Frenkel

La détermination du nombre d'atomes déplacés 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, plusieurs modèles théoriques ont été développés en se basant sur la BCA. Parmi ces modèles, citons les plus connus : le *modèle de Kinchin-Pease* (KP) [162] et le *modèle de Norgett-Robinson-Torrens* (NRT) [163].

3.3.5.1. Modèle de Kinchin-Pease

Ce modèle est basé sur l'ensemble des suppositions suivantes [106] :

- 1- la cascade est décrite comme étant une succession de collisions binaires ;
- 2- la probabilité de déplacement d'un atome qui reçoit une énergie supérieure à E_d est égale à 1 ;

3- l'énergie E_d est négligée dans la loi de conservation d'énergie, c'est-à-dire qu'aucune énergie n'est consommée pour libérer l'atome cible ; $E = E' + T$ où E est l'énergie de l'atome en mouvement avant la collision, E' son énergie après la collision et T l'énergie de l'atome éjecté ;

4- il y a une énergie seuil, E^* . Pour $E > E^*$, la perte d'énergie est purement électronique et aucun déplacement n'a lieu. Pour $E \leq E^*$, aucune énergie n'est transférée aux électrons et les collisions sont totalement élastiques ;

5- le modèle de la sphère dure est utilisé dans les collisions ;

6- le matériau est supposé être amorphe. Les effets dûs à la structure cristalline tels que la canalisation et la focalisation sont ignorés.

Nous pouvons retrouver les résultats de ce modèle par des arguments simples [164]. Si l'énergie cinétique du primaire est inférieure à l'énergie seuil de déplacement le nombre d'atomes déplacés est nul : $N_d(E) = 0$. Pour $E_d < E < 2E_d$, la collision du primaire avec l'atome cible aura l'un des deux résultats suivants : l'énergie communiquée à l'atome cible, T , est supérieure à E_d et ce dernier sera éjecté de son site. Dans ce cas, le primaire laissé avec une énergie inférieure à E_d s'immobilisera dans le site vacant. Si, par contre, $T < E_d$, l'atome heurté ne quittera pas son site et le primaire continuera son mouvement. Dans les deux cas, la collision du primaire donne lieu à un seul déplacement ; $N_d(E) = 1$ et la cascade de déplacements ne se développera pas.

Lorsque $E > 2E_d$, on aura, après le premier choc, deux atomes en mouvement (le primaire et l'atome déplacé) avec une énergie moyenne $E/2$. Les deux collisions suivantes engendreront quatre atomes en mouvement, chacun avec une énergie moyenne de $E/2^2$. Après n collisions, on aura 2^n atomes en mouvement, chacun avec une énergie moyenne de $E/2^n$. Lorsque $E/2^n \leq 2E_d$, les atomes mobiles ne seront plus en mesure de déplacer de nouveaux atomes de leurs sites. Ainsi, nous pouvons écrire :

$$\frac{E}{2^{n_f}} = 2 E_d, \quad (3.90)$$

où 2^{n_f} est le nombre final d'atomes déplacés. Donc, nous avons :

$$N_d(E) = 2^{n_f} = \frac{E}{2 E_d}. \quad (3.91)$$

Lorsque l'énergie du primaire est supérieure à l'énergie seuil, E^* , donnée par l'équation (3.86), la perte d'énergie est supposée être totalement électronique et aucun atome n'est éjecté de sa position. La perte d'énergie électronique se poursuivra jusqu'à ce que l'énergie du primaire se réduise à E^* . Pour $E \leq E^*$, la perte d'énergie se fera exclusivement par le mécanisme des collisions élastiques et générera des défauts permanents.

En résumé, le nombre moyen de déplacements produits par un primaire d'énergie initiale E dans un matériau est donné, selon le modèle de Kinchin-Pease, par :

$$N_d(E) = \begin{cases} 0 & \text{si } E < E_d \\ 1 & \text{si } E_d \leq E < 2E_d \\ \frac{E}{2E_d} & \text{si } 2E_d \leq E < E^* \\ \frac{E^*}{2E_d} & \text{si } E \geq E^* \end{cases} \quad (3.92)$$

La dépendance du nombre de paires de Frenkel produites à l'énergie du primaire est illustrée sur la figure (3.14).

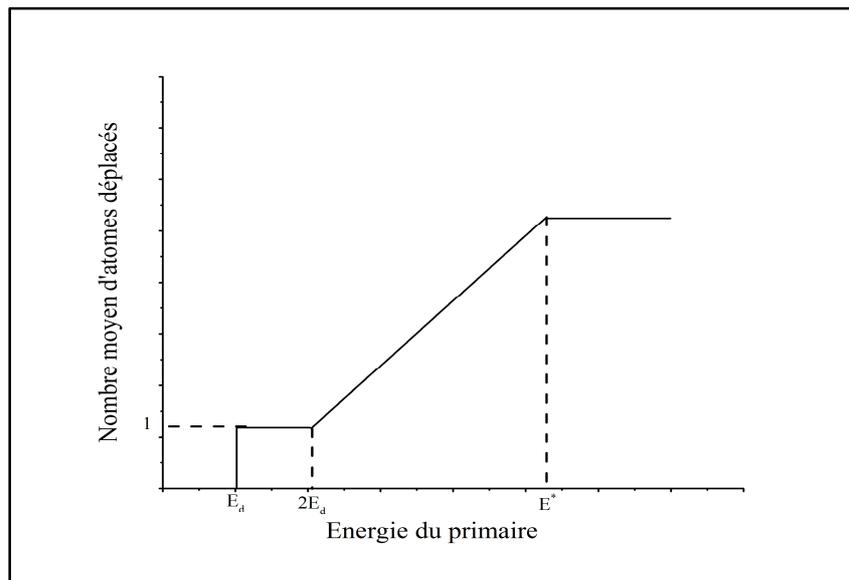


Figure 3.14. Nombre moyen d'atomes déplacés dans une cascade en fonction de l'énergie du primaire selon le modèle de Kinchin-Pease.

Les travaux sur les dommages dans les métaux irradiés ont montré une surestimation d'un facteur de 2 à 10 du nombre de défauts calculé à partir de la relation (3.92). Des efforts considérables ont été faits pour améliorer le modèle de Kinchin-Pease. Snyder et Neufeld [165] sont parvenus à une relation améliorée de KP en tenant compte de l'énergie E_d dans la loi de conservation de l'énergie ($E = E' + T + E_d$) :

$$N_d(E) = 0.56 \left(1 + \frac{E}{E_d}\right), \quad E > 4 E_d. \quad (3.93)$$

Sanders [166], en utilisant un potentiel plus réaliste que celui de la sphère dure et qui est proportionnel à r^{-s} , a pu établir la relation suivante :

$$N_d(E) = s \left(2^{\frac{1}{s+1}} - 1\right) \frac{E}{2 E_d}, \quad (3.94)$$

qui donne pour $s = 2$:

$$N_d(E) = 0.52 \frac{E}{2 E_d}, \quad (3.95)$$

ce qui réduit le résultat de KP par un facteur de 2. En prenant en considération des éventuels effets de canalisation et de focalisation, Oen et Robinson [167] ont obtenu l'expression suivante pour le nombre de déplacements :

$$N_d(E) = \frac{1-P}{1-2P} \left(\frac{E}{2 E_d}\right)^{(1-2P)} - \frac{P}{1-2P}, \quad (3.96)$$

où P est la probabilité des effets cristallins de canalisation et focalisation. Pour $P = 0$, cette relation se réduit à celle de KP.

3.3.5.2. Modèle de Norgett-Robinson-Torrens

Le modèle de partition de l'énergie du primaire entre les pertes électroniques et nucléaires développé par Lindhard *et al.* [156] en se basant sur le potentiel de Thomas-Fermi a permis une transition en douceur entre les deux régimes de perte d'énergie et a conduit au modèle plus raffiné proposé par Norgett, Robinson et Torrens [163, 168] :

$$N_{NRT}(E) = 0.8 \frac{E_{dam}(E)}{2 E_d}, \quad (3.97)$$

où E_{dam} est l'énergie disponible pour le déplacement atomique. C'est l'énergie dissipée par collisions élastiques et qui conduit à la création des défauts. Elle a pour expression :

$$E_{dam}(E) = \frac{E}{1+k_N g(\epsilon_N)}, \quad (3.98)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} g(\varepsilon_N) = 3.4008 \varepsilon_N^{1/6} + 0.40244 \varepsilon_N^{3/4} + \varepsilon_N \\ k_N = 0.1337 Z_1^{1/6} \left(\frac{Z_1}{A_1}\right)^{1/2} \\ \varepsilon_N = \left(\frac{A_2 E}{A_1 + A_2}\right) \left(\frac{a}{Z_1 Z_2 e^2}\right) \\ a = \left(\frac{9 \pi^2}{128}\right)^{1/3} \frac{a_B}{\sqrt{Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}}} \end{array} \right. , \quad (3.99)$$

où A_1 et A_2 sont, respectivement, les nombres de masse du primaire et de l'atome cible. Une modification est apportée au modèle NRT en introduisant le coefficient d'efficacité du déplacement η [60, 169] de sorte que le nombre de paires de Frenkel produits dans un matériau par un primaire d'énergie E est donné par la formule [62] :

$$N(E) = \eta N_{NRT}. \quad (3.100)$$

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

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exposé les modèles utilisés habituellement pour simuler l'irradiation des matériaux. Nous avons décrit brièvement la méthode de la dynamique moléculaire et passé en revue la méthode de l'approximation des collisions binaires. Nous avons jeté la lumière sur les phénomènes qui peuvent avoir lieu pendant le développement d'une cascade de déplacements et sur les modèles théoriques existants pour estimer les pertes des énergies nucléaire et électronique, ainsi que le nombre de défauts générés. Nous avons aussi examiné de près une collision binaire en utilisant conjointement la théorie des collisions élastiques et la théorie de la diffusion classique d'une particule chargée dans un champ de force central. Ceci nous a permis d'établir les différentes formules nécessaires pour le calcul des angles de diffusion du projectile et de l'atome cible et pour le calcul du transfert d'énergie.

Chapitre 4
Code Marlowe

4.1. Introduction

Marlowe [170] est un programme basé sur l'approximation des collisions binaires. Il est largement utilisé pour simuler les cascades de déplacements dans les matériaux. Il a été mis au point par M. T. Robinson au *Laboratoire National de Oak Ridge* (ORNL pour *Oak Ridge National Laboratory*, Tennessee, USA) au début des années 60. Depuis, des améliorations sont apportées au programme de temps à autre [131-134, 168, 171]. Marlowe a permis la prédiction du phénomène de canalisation dans les métaux, en 1963, lors de calculs de trajectoires d'ions Cu dans du cuivre [172]. Il a été appliqué avec succès à divers phénomènes associés à l'irradiation des matériaux, tels que la rétrodiffusion, la pulvérisation, et les dommages causés par les rayonnements [71-77, 130]. Il est écrit en langage Fortran et conçu pour s'exécuter sur les deux systèmes d'exploitation Windows et UNIX. Il est flexible et permet de simuler l'irradiation des matériaux à hautes énergies. En outre, son coût réduit en temps de calcul facilite l'accumulation de très grandes quantités de statistiques.

4.2. Structure du programme et modèle d'analyse

Le programme Marlowe est composé de plus de 60 procédures structurées en trois phases. La première phase est consacrée à la lecture de données relatives au projectile (masse, numéro atomique, énergie cinétique, nombre de projectiles), au matériau irradié (structure cristalline, masse, numéro atomique, énergie de liaison, température du matériau et température de Debye), ainsi qu'à l'initialisation de plusieurs paramètres liés au modèle de calcul (paramètres du potentiel interatomique, modèle de la perte d'énergie inélastique, irradiation interne ou externe, énergie de coupure). Ces données sont groupées, dans un fichier d'entrée, sous forme de listes (NAMELIST). La deuxième phase est destinée à la génération des cascades requises, à leur analyse individuelle et au lancement de l'analyse statistique de l'ensemble des cascades. La dernière phase complète l'analyse de l'ensemble des cascades et reporte les résultats dans un fichier de sortie. La structure de Marlowe en procédures facilite la modification, l'ajout ou l'omission de certaines parties du code [170].

Après la lecture des données, Marlowe simule, pour chaque projectile, une cascade de collisions atomiques. Dans le cas d'une irradiation interne, la cascade est initiée par un primaire qui est lancé à partir d'un site du réseau. La cascade est décrite comme étant une succession de collisions à deux corps et les atomes impliqués sont supposés se déplacer, entre les collisions, le long des asymptotes de leurs trajectoires réelles. Les atomes en mouvement ralentissent dans le matériau en perdant leur énergie cinétique dans les collisions élastiques et l'excitation électronique.

Pour chaque collision binaire, l'angle de diffusion dans le système (CM) (3.60) et l'intégrale du temps (3.61) sont évalués en utilisant la quadrature de Gauss-Mehler. Les angles de diffusion des deux atomes en collision dans le système du laboratoire, l'énergie transférée à l'atome cible ainsi que les abscisses x_1 et x_2 sont ensuite calculés au moyen des formules (3.43), (3.44), (3.49), (3.62) et (3.63). Dans la collision, le projectile d'énergie cinétique initiale E_0 transfère une énergie T à l'atome cible et émerge avec une énergie E_1 qui a la valeur :

$$E_1 = E_0 - T - Q, \quad (4.1)$$

où Q est l'énergie perdue par excitation électronique. L'énergie cinétique de l'atome de recul est $E_2 = T - E_b$ où E_b est l'énergie de liaison. Dans les simulations par Marlowe, E_b peut prendre différentes valeurs dépendamment du phénomène de collision traité. Dans le cas de déplacement d'un atome du réseau, E_b est prise égale à l'énergie de cohésion du matériau. Sa valeur est de quelques dixièmes d'électron-volt dans le cas d'un phénomène de remplacement. Pour un atome arrêté de la cascade, l'énergie de liaison est supposée être nulle. L'énergie de coupure, E_c , est prise égale à l'énergie de cohésion [133, 134, 173-175].

Le potentiel interatomique utilisé pour évaluer l'intégrale de diffusion est choisi parmi une grande variété de potentiels disponibles dans le package du code. Les utilisateurs peuvent aussi définir leurs propres fonctions. Les pertes d'énergie inélastiques (locales ou non locales) peuvent être incluses. Le nombre de collisions subies par un atome pendant son ralentissement est contrôlé par une valeur maximale du paramètre d'impact précisée par l'utilisateur.

Les vibrations thermiques des atomes du matériau peuvent être prises en compte en utilisant un modèle gaussien de déplacements thermiques non corrélés le long des axes de coordonnées. La variance de la distribution peut être fournie par l'utilisateur ou peut être calculée à partir du modèle de Debye [176].

Lorsqu'il ne reste dans la cascade aucun atome avec une énergie cinétique dépassant l'énergie de coupure E_c , les interstitiels et les lacunes sont classés, en fonction de leurs distances de séparation, dans différentes classes de paires de Frenkel. Seules les paires avec des distances de séparation supérieures au rayon de recombinaison sont considérées comme étant des défauts permanents.

Le programme permet de déterminer le nombre moyen de paires de Frenkel, leur distribution en fonction de la distance de séparation lacune-interstitiel, le nombre moyen de

séquences de déplacements et leur distribution en longueur, l'évolution temporelle du nombre d'atomes déplacés et du nombre d'atomes en mouvement, les amas et leurs tailles ainsi que d'autres grandeurs liées à la cascade de déplacement. Le module d'analyse des résultats est généralement modifié en fonction des informations que l'on désire recueillir.

4.3. Description de la cible et conditions d'irradiation

Dans Marlowe, le cristal est décrit en précisant le type de réseau et en donnant les coordonnées d'un nombre réduit de sites atomiques de la maille élémentaire dans un référentiel cartésien dont l'origine est placée à l'un des sites. Dans le cas d'un réseau cubique simple, centré ou à faces centrées, le code génère automatiquement les positions des atomes à partir du site à l'origine. Pour le diamant, ZnS, NaCl et les métaux à structure hexagonale compacte, la connaissance des positions de deux atomes est suffisante pour reproduire les sites du réseau.

Lors du développement de la cascade, l'origine des coordonnées est placée au site le plus proche du projectile et le code établit une liste des sites atomiques jusqu'à une distance, DMAX, spécifiée dans les données. La recherche d'un partenaire de la collision parmi les atomes de cette liste est entamée. Si la valeur de DMAX est petite, l'exécution du code peut se terminer avec une erreur signifiant l'absence de cibles appropriées pour la collision. Une valeur de DMAX légèrement supérieure à la distance des deuxièmes proches voisins constitue souvent un bon choix. Pour des valeurs beaucoup plus grandes, le projectile peut avoir plusieurs cibles potentielles à la fois et le temps d'exécution du code augmente sensiblement [170].

Bien que Marlowe soit destiné au traitement de cibles cristallines, le programme peut être utilisé pour simuler les cascades de déplacements dans des milieux polycristallins ou amorphes. La simulation d'un milieu polycristallin se fait par rotation aléatoire, des axes du système de référence au début de chaque cascade. Pour un milieu amorphe, la rotation se fait après chaque collision. La cible peut contenir initialement des lacunes, des atomes interstitiels ou des impuretés à des positions que l'utilisateur doit préciser dans le fichier d'entrée. La cible peut être constituée de plusieurs couches, chacune avec sa propre structure cristalline et avec des atomes de natures chimiques différentes. Le cristal peut être infini, avec une surface plane unique ou avec deux surfaces parallèles dont la distance de séparation, spécifiée dans les données, représente l'épaisseur. La surface d'incidence est définie par un système d'axes dont deux lui appartiennent, le troisième lui étant normal et pointant vers l'intérieur du milieu. L'irradiation peut être interne ou externe. Dans les deux cas, le nombre de cascades à simuler,

l'énergie cinétique initiale des projectiles, les masses atomiques et les numéros atomiques des atomes cibles et du projectile sont donnés. Lorsque l'irradiation est externe, la direction initiale du projectile est fixée par l'utilisateur ou est choisie aléatoirement dans un angle solide prédéterminé. Les points d'impact des projectiles sont choisis dans un parallélogramme ou dans un triangle déterminé par deux axes du plan de la surface. Les dimensions de l'aire d'impact sont choisies par l'utilisateur. Dans le cas de l'irradiation interne, la direction du primaire est, selon le désir, sélectionnée isotropiquement dans tout l'espace de l'hémisphère $z \geq 0$ ou fixée en donnant les angles polaire et azimutal.

Les cascades sont organisées en groupes, si désiré. La première cascade de chaque groupe est simulée dans un matériau sans dommages. Les cascades suivantes du groupe sont développées dans un milieu dans lequel les dégâts sont accumulés d'une cascade à l'autre.

4.4. Sélection des atomes cibles

Pour sélectionner un atome pour la collision, Marlowe prend le site du dernier atome heurté comme site de référence et génère les positions des atomes voisins à une distance DMAX. Les atomes candidats à la collision sont ceux qui se trouvent à l'intérieur du cylindre d'axe passant par le centre de masse du projectile et orienté dans la direction de mouvement de celui-ci et de rayon de section égal au paramètre d'impact maximum s_{max} (voir figure 4.1).

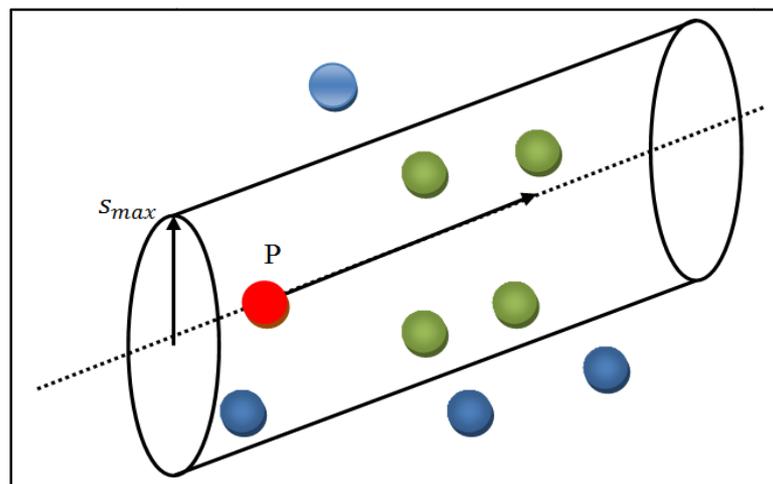


Figure 4.1. Schéma de sélection des cibles. Les atomes en vert sont des cibles possibles ceux en bleu sont des cibles rejetées.

La procédure de recherche d'une cible pour la collision est montrée sur la figure 4.2. Supposons que le projectile (P) après collision avec l'atome au site R prend la direction

donnée par le vecteur unitaire $\vec{\lambda}_0$. Le programme génère la liste des proches voisins de R . Le site T est un élément de cette liste. Les quantités suivantes sont calculées :

$$\xi = \vec{\lambda}_0 \cdot \overrightarrow{\Delta x} \quad , \quad (4.2)$$

$$s^2 = (\overrightarrow{\Delta x} \times \vec{\lambda}_0)^2 \quad . \quad (4.3)$$

Si $\xi > \xi_{min} \geq 0$, alors le site T se trouve dans la bonne direction pour être un partenaire de la collision. Si le paramètre d'impact s est supérieur à s_{max} , alors T est considéré assez loin de la trajectoire du projectile pour influencer le mouvement de celui-ci. La valeur de s_{max} est choisie suffisamment grande pour que dans aucune partie du cristal le projectile ne soit libre de l'influence des atomes avoisinants, mais suffisamment petite pour éviter trop de collisions impliquant de très petits transferts d'énergie [131].

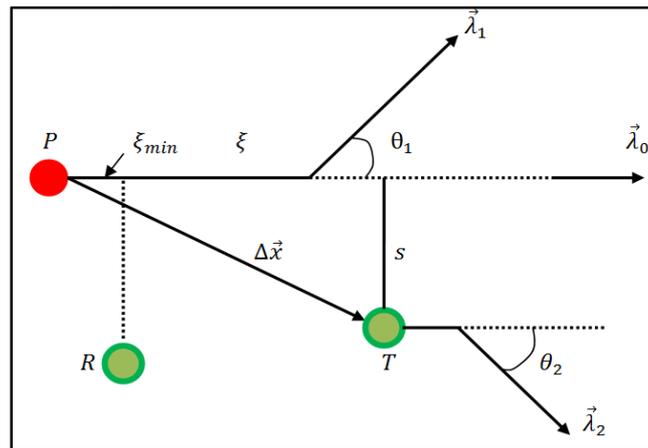


Figure 4.2. Schéma représentant les bases de la procédure de recherche des cibles [131].

La direction du projectile après la collision est donnée par :

$$\vec{\lambda}_1 = \left[\cos\theta_1 + \frac{\xi}{s} \sin\theta_1 \right] \vec{\lambda}_0 - \left[\frac{1}{s} \sin\theta_1 \right] \Delta \vec{x}. \quad (4.4)$$

De la même manière, la direction de mouvement de l'atome cible est :

$$\vec{\lambda}_2 = \left[\cos\theta_2 - \frac{\xi}{s} \sin\theta_2 \right] \vec{\lambda}_0 + \left[\frac{1}{s} \sin\theta_2 \right] \Delta \vec{x}. \quad (4.5)$$

La procédure de recherche d'une cible ainsi décrite est répétée jusqu'à la fin de la cascade.

Dans le phénomène de canalisation, le projectile suit une trajectoire passant entre des atomes disposés symétriquement par rapport à sa direction de mouvement. Dans ce cas, l'interaction avec ces atomes est simultanée. La procédure utilisée par Marlowe pour traiter ces cas consiste à supposer que chaque collision d'un ensemble de collisions simultanées s'effectue indépendamment des autres. La direction finale du projectile est obtenue en additionnant vectoriellement toutes les déflexions [131].

4.5. Potentiels interatomiques

La simulation des cascades de déplacements dans les matériaux irradiés nécessite l'utilisation d'un potentiel interatomique pour modéliser l'interaction entre les atomes en collision. Le package Marlowe recèle six fonctions d'énergie potentielle. Le programme fournit des valeurs par défaut pour les paramètres de ces potentiels. La structure de Marlowe permet à l'utilisateur d'intégrer son propre potentiel dans le programme, pourvu qu'il soit représenté par une fonction analytique continue et dérivable.

4.5.1. Potentiel de Molière

L'une des fonctions potentiel les plus utilisées dans la simulation des dommages causés par irradiation dans les matériaux est l'approximation de Molière au potentiel de Thomas-Fermi. C'est un potentiel coulombien écranté par la charge, qui s'écrit [116] :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \left[0.35 e^{-\left(0.3 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.55 e^{-\left(1.2 \frac{r}{a_M}\right)} + 0.1 e^{-\left(6.0 \frac{r}{a_M}\right)} \right]. \quad (4.6)$$

Le rayon d'écran a_M est évalué, dans le programme, à partir de la relation de Firsov (2.11).

4.5.2. Potentiel de Ziegler, Biersack et Littmark

Le potentiel ZBL ou potentiel « universel » est un potentiel moyen construit à partir de centaines de potentiels d'interaction entre des paires d'atomes. L'expression de ce potentiel est [119] :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \sum_{i=1}^4 c_i e^{-(d_i r/a_{ZBL})}. \quad (4.7)$$

Les valeurs des coefficients c_i et d_i sont : $c_i = (0.028171, 0.28022, 0.50986, 0.18175)$ et $d_i = (0.20162, 0.4029, 0.94229, 3.1998)$. Le rayon d'écran a_{ZBL} est calculé à partir de la relation (2.23).

4.5.3. Potentiel moyen modifié de Lenz-Jensen

Le *potentiel moyen modifié de Lenz-Jensen* est un potentiel utilisé extensivement dans la simulation des cascades de déplacements, au même titre que les potentiels de Molière et ZBL. Du point de vue efficacité en termes de calcul, l'utilisation du potentiel AMLJ réduit de façon notable le temps de simulation. Il est donné par [120, 121, 123, 177] :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2}{r} e^{-\alpha_1 \left(\frac{r}{a_{AMLJ}}\right) + \alpha_2 \left(\frac{r}{a_{AMLJ}}\right)^{3/2} - \alpha_3 \left(\frac{r}{a_{AMLJ}}\right)^2}, \quad (4.8)$$

où les paramètres α_1 , α_2 et α_3 sont évalués selon les expressions suivantes :

$$\begin{cases} \alpha_1 = 1.51 \\ \alpha_2 = 0.763 \left(\frac{Z_1^{0.169} + Z_2^{0.169}}{Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307}} \right) \\ \alpha_3 = 0.191 \left(\frac{Z_1^{0.0418} + Z_2^{0.0418}}{Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307}} \right)^{4/3} \end{cases}. \quad (4.9)$$

Le paramètre d'écran est estimé dans le programme comme suit :

$$a_{AMLJ} = \frac{0.8853 a_B}{(Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307})^{2/3}}. \quad (4.10)$$

4.5.4. Potentiel de Born-Mayer

C'est un potentiel répulsif, de forme exponentielle. Les paramètres de ce potentiel utilisés par Marlowe se basent sur les relations données par Anderson et Sigmund [109] :

$$V(r) = A_{BM} e^{-r/a_{BM}}, \quad (4.11)$$

avec

$$\begin{cases} A_{BM} = 52 (Z_1 Z_2)^{3/4} \text{ eV} \\ a_{BM} = 0.219 \text{ \AA} \end{cases}. \quad (4.12)$$

4.5.5. Potentiel de Morse

Le potentiel introduit par Morse est composé de deux fonctions exponentielles [178] :

$$V(r) = D e^{-2\alpha(r-r_0)} - 2D e^{-\alpha(r-r_0)}. \quad (4.13)$$

Le premier terme est responsable de la partie répulsive, alors que le deuxième terme domine pour de grandes valeurs de la distance de séparation, r , entre les deux atomes. Le paramètre α contrôle la largeur du puits de potentiel alors que D , qui est mesuré en eV, représente sa profondeur. Le paramètre r_0 est la distance interatomique à laquelle le potentiel atteint son minimum. Le potentiel devient répulsif à $r = r_0 - \ln 2/\alpha$. L'utilisateur doit préciser les valeurs des paramètres de ce potentiel car Marlowe ne les fournit pas. Girifalco et Weizer [179] et Harrison [180] donnent ces paramètres pour de nombreux matériaux.

4.6. Intégrale de diffusion

Pour l'évaluation de l'angle de diffusion dans le système du centre de masse (3.60) et de l'intégrale du temps (3.61), l'utilisation d'une méthode numérique s'impose. Un changement de variable $r = R/u$ transforme les deux intégrales comme suit [105] :

$$\vartheta = \pi - \frac{2s}{R} \int_0^1 \frac{H(u)}{\sqrt{1-u^2}} du \quad (4.14)$$

et

$$\tau = \sqrt{R^2 - s^2} - R \int_0^1 \frac{[H(u)-I(u)]}{u^2 \sqrt{1-u^2}} du, \quad (4.15)$$

avec

$$H(u) = \frac{\sqrt{1-u^2}}{\sqrt{1 - \frac{s^2 u^2}{R^2} - \frac{V(R/u)}{E_r}}} \quad (4.16)$$

et

$$I(u) = \frac{\sqrt{1-u^2}}{\sqrt{1 - \frac{s^2 u^2}{R^2}}}. \quad (4.17)$$

Marlowe approche les intégrales dans (4.14) et (4.15) par la quadrature de Gauss-Mehler qui a la forme :

$$\int_{-1}^1 \frac{f(x)}{\sqrt{1-x^2}} dx = \sum_{i=1}^n w_i f(a_i), \quad (4.18)$$

où les abscisses a_i et les poids w_i ont pour expressions :

$$\begin{cases} a_i = \cos\left(\frac{2i-1}{2n}\pi\right) \\ w_i = \frac{\pi}{n} \end{cases} \quad (4.19)$$

Le nombre de points de la quadrature est initialisé dans le programme à $n = 4$. Toutefois, ce nombre peut être augmenté pour avoir plus de précision dans les calculs.

4.7. Energie inélastique perdue

La perte d'énergie inélastique due à l'excitation des électrons du projectile et des atomes du milieu se divise en deux parties. Lorsque la perte d'énergie dépend de l'énergie cinétique du projectile, E , et de la distance qu'il parcourt, la perte d'énergie inélastique est dite non-locale. Cette partie est estimée, dans Marlowe, à partir de l'expression donnée par la théorie LSS [156,170, 181] :

$$-\frac{dE}{dx} = k \sqrt{E}, \quad (4.20)$$

avec

$$k = 8\pi\sqrt{2} a_B \hbar \frac{Z_1^{7/6} Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \frac{1}{\sqrt{m_1}} \quad (4.21)$$

Dans la partie locale, la perte d'énergie inélastique dépend non seulement de l'énergie de la particule mais aussi de la distance de séparation entre le projectile et l'atome cible. Pour le calcul de cette partie, Marlowe nous offre le choix entre le modèle de Firsov [155] avec la correction de Robinson-Torrens [131] qui consiste à utiliser la distance minimale d'approche, $R(s, E)$, entre le projectile et l'atome cible à la place du paramètre d'impact s et le modèle de Oen-Robinson [182]. Pour la première approche, la perte d'énergie dans une seule collision est donnée par [105] :

$$Q_F(s, E) = \frac{\alpha_{12}\sqrt{E}}{[1+\beta_{12}R(s,E)]^5} \quad (eV), \quad (4.22)$$

avec

$$\alpha_{12} = 0.61 \left(\frac{2\hbar}{\pi a_B}\right) \left(\frac{2}{m_1}\right)^{1/2} \left(\frac{9\pi^2}{128}\right)^{1/3} (Z_1 + Z_2)^{1/3} \quad (eV^{1/2}), \quad (4.23)$$

et

$$\beta_{12} = \left(\frac{0.285}{2a_B}\right) \left(\frac{128}{9\pi^2}\right)^{1/3} (Z_1 + Z_2)^{1/3} \quad (\text{\AA}^{-1}). \quad (4.24)$$

La validité de la relation (4.22) est dictée par la condition $E < (e^4/2\hbar^2)m_1Z_1^{4/3} = 24.97m_1Z_1^{4/3}[\text{keV}]$.

Dans le deuxième modèle, la dépendance à la distance minimale d'approche est exponentielle [105] :

$$Q_{OR}(s, E) = k \sqrt{E} \left(\frac{\gamma^2}{2\pi a_M^2}\right) e^{-\frac{\gamma R(s, E)}{a_M}}, \quad (4.25)$$

où a_M est le rayon d'écran du potentiel utilisé et $\gamma = 0.3$.

Le modèle de Oen-Robinson prédit une perte d'énergie électronique plus faible en comparaison avec le modèle LSS. Cette différence augmente avec la diminution de l'énergie jusqu'à atteindre un facteur de 10 à basse énergie [105].

Le programme utilise la règle d'additivité de Bragg (3.87) pour estimer la perte d'énergie électronique dans un composé. Marlowe offre la possibilité d'inclure dans la simulation les deux parties locale et non-locale de la perte d'énergie, de tenir compte de l'une d'elles seulement ou de les omettre toutes les deux.

4.8. Vibrations thermiques

Un modèle simple de vibrations thermiques est disponible dans Marlowe en option. Des déplacements indépendants sont choisis aléatoirement le long des axes orthogonaux du système de coordonnées, suivant une distribution gaussienne. Aucune corrélation n'est supposée exister entre les déplacements des atomes voisins. La largeur de la distribution est fournie par l'utilisateur ou calculée par Marlowe à l'aide du modèle de Debye [176]. Dans ce dernier cas, les seuls paramètres requis pour les calculs sont la température de Debye, T_D , et la température du cristal, T .

La probabilité $P(u) du$ de trouver un atome à une distance entre u et $u + du$ de sa position d'équilibre est donnée par la loi normale suivante [105, 183] :

$$P(u) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2}u^2}, \quad (4.26)$$

où u est donnée en terme de $\langle u_i^2 \rangle^{1/2}$. Selon le modèle de Debye, la moyenne des carrés des déplacements dans la direction i s'écrit [105] :

$$\langle u_i^2 \rangle = \frac{3 \hbar^2}{m_2 k_B T_D} \left[\frac{T^2}{T_D^2} \int_0^{T_D/T} \frac{x dx}{e^x - 1} + \frac{1}{4} \right], \quad (4.27)$$

Les amplitudes de vibration sont toujours petites comparées à la constante du réseau. L'intégrale dans (4.27) est approchée, dans Marlowe, en utilisant les formes en séries [184] :

$$\int_0^x \frac{t dt}{e^t - 1} = x \left[1 - \frac{x}{4} + \sum_{k=1}^{\infty} \frac{B_{2k} x^{2k}}{(2k+1)(2k)!} \right], \quad |x| < 2\pi, \quad (4.28)$$

où B_{2k} sont les nombres de Bernoulli définis par [184] :

$$B_{2k} = \frac{(-1)^{n-1} 2 (2k)!}{(2\pi)^{2k}} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^{2k}}, \quad (4.29)$$

$$\int_0^x \frac{t dt}{e^t - 1} = \frac{\pi^2}{6} - \sum_{k=1}^{\infty} e^{-kx} \left(\frac{x}{k} + \frac{1}{k^2} \right), \quad x > 0. \quad (4.30)$$

Les sommes dans (4.28) et (4.30) sont évaluées, dans Marlowe, jusqu'à $k = 10$.

4.9. Défauts ponctuels

À la fin d'une cascade simulée par Marlowe, les atomes déplacés et les lacunes sont regroupés en paires. Le programme construit une fonction de distribution qui donne le nombre de paires de Frenkel en fonction de la distance de séparation interstitiel-lacune. Il cherche la plus courte distance de séparation interstitiel-lacune dans la cascade, puis la distance suivante et ainsi de suite jusqu'à ce que tous les interstitiels et les lacunes produits soient appariés. Les paires sont classées en trois catégories. Dans la première, nommée "paires proches", le site le plus proche de l'interstitiel est vacant. Dans la deuxième catégorie, appelée "paires voisines", le site le plus proche de l'interstitiel est occupé ou bien il est déjà apparié mais un site voisin défini par la description du cristal est vide et non apparié. Toutes les autres paires sont classées en des "paires distantes". Dans un matériau polyatomique, la paire est dite « appropriée » si l'interstitiel est du type approprié pour occuper le site vacant, sinon la paire

est « inappropriée ». Lorsque l'interstitiel est éjecté du site avec lequel il est apparié, la paire est dite « corrélée ». Autrement, elle est dite « non-corrélée » [170].

4.10. Volume de la cascade

Il est essentiel dans l'étude des dégâts induits par irradiation, de faire une estimation du volume de la zone endommagée et de scruter sa morphologie. À cette fin, plusieurs méthodes ont été introduites. Une première approche consiste à assimiler la cascade à une sphère dont le rayon serait la dispersion moyenne des défauts autour du centre de la cascade. L'inconvénient de cette méthode, à un seul paramètre, est qu'elle ne donne pas la bonne représentation géométrique de la cascade. Une autre approche consiste à substituer un cylindre à la sphère et calculer son rayon de base et sa longueur par des moyens statistiques. Cette méthode à deux paramètres ne décrit pas non plus, fidèlement, la morphologie de certaines cascades comme par exemple les cascades plates.

La méthode la plus utilisée pour évaluer l'étendue spatiale des dégâts d'irradiation est de substituer à la cascade un ellipsoïde défini par les longueurs de ses trois axes principaux. Avec ces trois données, un calcul du volume de la cascade et une représentation fine de sa géométrie peuvent être effectués.

La méthode statistique d'analyse en composantes principales permet, à partir des défauts ponctuels considérés comme un nuage de points dans l'espace à trois dimensions, de trouver la longueur et l'orientation spatiale des axes principaux de l'ellipsoïde [105, 174, 185].

Soient n le nombre de défauts ponctuels dans la cascade, G le barycentre de cette collection de points, \vec{r}_k le vecteur position reliant G au point k et \vec{u} un vecteur unitaire ($\vec{u} \cdot \vec{u} = 1$). La projection de \vec{r}_k sur \vec{u} est donnée par $\vec{u} \cdot \vec{r}_k$. La variance de la distribution des défauts s'écrit :

$$S^2 = \sum_{k=1}^n (\vec{u} \cdot \vec{r}_k)^2. \quad (4.31)$$

On cherche le vecteur \vec{u} qui maximise S^2 . En introduisant la matrice :

$$R = \sum_{k=1}^n r_{ki} r_{kj} \quad , \quad i, j = 1, 2, 3, \quad (4.32)$$

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

$$S^2 = \vec{u} R \vec{u}, \quad (4.33)$$

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

$$R \vec{u} = \alpha^2 \vec{u}, \quad (4.34)$$

qui montre que \vec{u} est un vecteur propre de la matrice R associé à la valeur propre α^2 (ou S^2). De façon analogue, les vecteurs \vec{v} et \vec{w} (qui définissent avec \vec{u} un trièdre orthogonal) sont aussi des vecteurs propres de R associés aux valeurs propres β^2 et γ^2 .

Les trois valeurs propres et les vecteurs propres qui leur sont associés sont utilisés pour décrire la configuration spatiale de la distribution des défauts ponctuels. Un ellipsoïde dont les directions des axes principaux sont données par \vec{u} , \vec{v} et \vec{w} et les longueurs de ses demi-axes sont α , β et γ est défini. Le volume de l'ellipsoïde, et donc de la cascade, est calculé aisément à partir des longueurs de ses demi-axes et l'anisotropie est évaluée à partir des rapports α/γ , β/γ et α/β . La densité de la cascade est donnée par :

$$\rho = \frac{4 \pi \alpha \beta \gamma}{3 n'}, \quad (4.35)$$

où n' est le nombre de défauts à l'intérieur de l'ellipsoïde. L'application de l'analyse en composantes principales sur chaque cascade permet de construire une distribution des volumes et d'en tirer des conclusions concernant l'étendue des dégâts dans les matériaux irradiés.

4.11 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit le code Marlowe utilisé pour simuler les cascades de déplacements dans les matériaux étudiés. Il est basé sur le modèle de l'approximation des collisions binaires. Nous avons présenté sa structure et les différents modèles de potentiels et de calcul de la perte d'énergie électronique qu'il recèle dans son package. Nous avons décrit la méthode utilisée par le programme pour estimer le nombre de paires de Frenkel ainsi que la méthode statistique de l'analyse en composantes principales, employée pour assimiler la cascade à un ellipsoïde et estimer son volume.

Chapitre 5
Résultats et discussion

5.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats de simulations de l'irradiation du tantale [63, 186], du carbure de tantale [187] et du pentoxyde de tantale en utilisant le code Marlowe. L'étude des défauts produits par irradiation d'un matériau passe forcément par le calcul du nombre d'atomes déplacés car ceux-ci sont à la base de la création des défauts. Il est aussi primordial de connaître la distribution spatiale des lacunes et des interstitiels, puisque le nombre final de paires de Frenkel dépend des distances de séparation entre les deux types de défauts. Il est également intéressant d'évaluer l'étendue du dégât dans le matériau en calculant le volume de la zone endommagée. Enfin, il sera question d'examiner le nombre des amas et leur taille en fonction de l'énergie cinétique du primaire.

Dans nos calculs, des échantillons de 5000 cascades ont été générés. L'irradiation des matériaux est interne, c'est-à-dire qu'une cascade de déplacements est initiée par un atome du réseau. Cet atome qui constitue le primaire est lancé avec une énergie cinétique couvrant la plage énergétique de 5 à 30 keV. La direction initiale de mouvement du primaire est sélectionnée de façon isotrope dans tout l'espace. Les interactions entre les atomes en collision ont été modélisées en utilisant les potentiels de paires de Molière, Born-Mayer, AMLJ et ZBL. Les déplacements thermiques des atomes du réseau autour de leurs positions d'équilibre sont décrits par le modèle de Debye. Toutes les collisions avec un paramètre d'impact inférieur ou égal au paramètre d'impact maximum p_{\max} sont évaluées. Pour qu'un atome du réseau soit ajouté à la cascade, il doit surmonter une énergie de liaison égale à l'énergie de cohésion du matériau notée E_{th} . Dans un événement de remplacement, l'énergie de liaison des atomes cibles est désignée par E_r , alors que dans le cas d'un redéplacement, l'énergie de liaison est dénotée par E_b . L'énergie de coupure au-dessous de laquelle un atome est considéré immobile est notée E_c .

5.2. Application au tantale

5.2.1. Paramètres de simulation

Le tantale est un métal de transition de numéro atomique $Z = 73$ et de masse atomique $W = 180.94788$. Il appartient à la classe des métaux réfractaires avec une température de fusion de 3017 °C qui n'est dépassée que par celles de quatre éléments : l'osmium, le tungstène, le carbone et le rhénium [188]. La structure cristalline du tantale est montrée dans la figure 5.1. Elle est cubique centrée, avec une constante du réseau $a_0 = 3.304 \text{ \AA}$ [47,189].

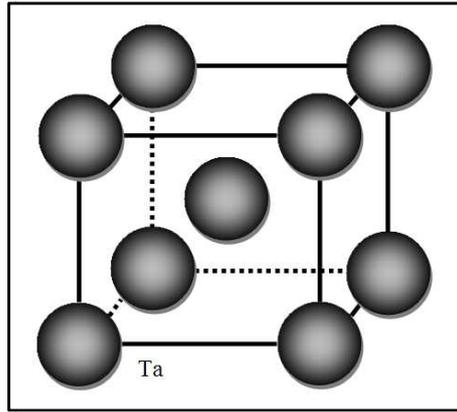


Figure 5.1. Maille élémentaire du tantale.

Les potentiels interatomiques utilisés pour la simulation des cascades de déplacements dans le tantale sont l'approximation de Molière au potentiel de Thomas-Fermi (4.6), le potentiel Born-Mayer (4.11) et le potentiel AMLJ (4.8). La variation de ces potentiels en fonction de la distance interatomique est représentée à la figure 5.2. À courte distance, le potentiel de Born-Mayer est le moins répulsif. Les valeurs du paramètre d'écran évaluées en utilisant les relations (2.11), (4.10) et (4.12) sont $a_M = 0.07062 \text{ \AA}$, $a_{BM} = 0.219 \text{ \AA}$ et $a_{AMLJ} = 0.12496 \text{ \AA}$. Le paramètre d'impact maximum est $p_{\max} = 0.71 a_0$, les énergies de liaison sont $E_{th} = 8.09 \text{ eV}$ [190], $E_b = 0 \text{ eV}$ et $E_r = 0.2 \text{ eV}$ alors que l'énergie de coupure est $E_c = E_{th}$. La température de Debye du tantale est $T_D = 240 \text{ K}$ [86].

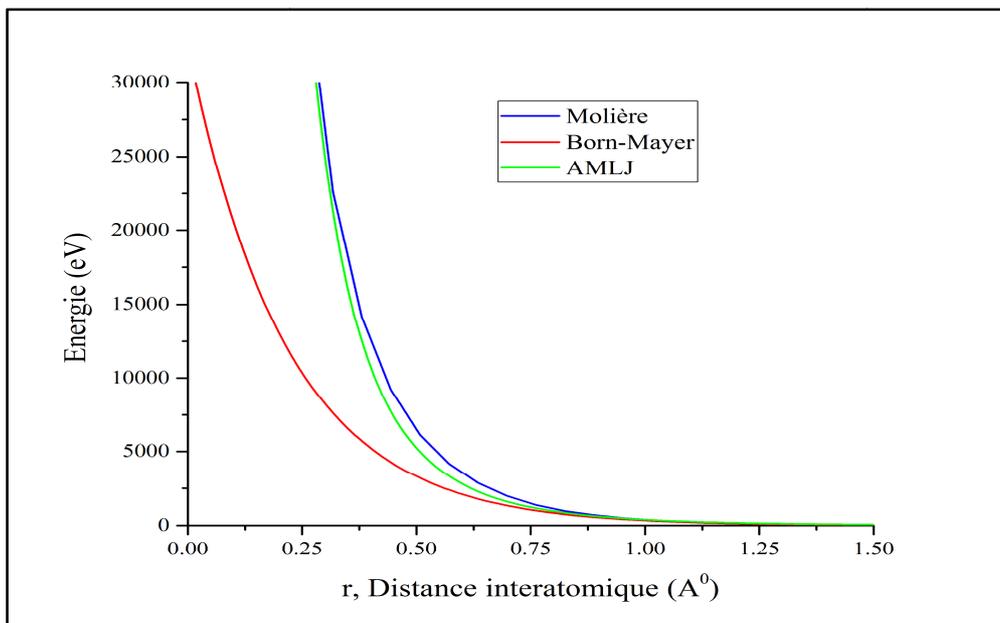


Figure 5.2. Potentiels interatomiques entre deux atomes de tantale.

5.2.2. Atomes en mouvement et énergie cinétique

Afin d'étudier l'évolution temporelle de la cascade, nous nous sommes intéressés à la variation du nombre d'atomes en mouvement, $\langle N_m \rangle$, et de l'énergie cinétique totale des atomes de la cascade, $\langle E_k \rangle$, en fonction du temps. Les résultats de ces études sont présentés sur les figures 5.3 et 5.4. La cascade dans le tantale est initiée par un primaire d'énergie cinétique de 20 keV. Cette énergie est dissipée durant le développement de la cascade de différentes manières. Une partie est utilisée pour déloger des atomes du réseau de leur position et pour redéplacer des atomes arrêtés de la cascade. Une deuxième partie est dissipée inélastiquement en excitant les électrons atomiques du milieu et une dernière partie est perdue dans des collisions où l'énergie transférée est inférieure à l'énergie de liaison de déplacement. On enregistre ainsi une décroissance de l'énergie cinétique totale des atomes dans la cascade avec le temps. Cette perte d'énergie, qui est très faiblement affectée par la température du cristal, est plus importante pour le potentiel AMLJ que pour les autres potentiels.

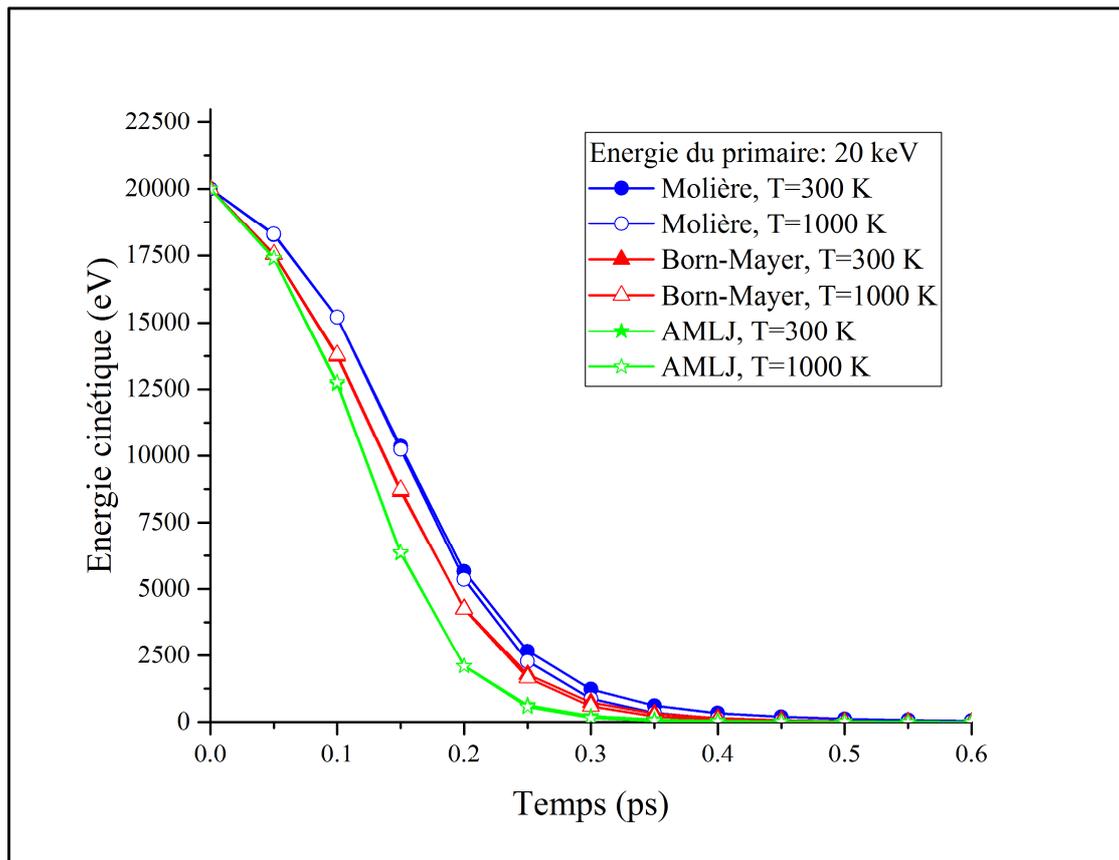


Figure 5.3. Energie cinétique de la cascade en fonction du temps dans le tantale.

Dans Marlowe, les atomes de la cascade sont suivis jusqu'à ce que leur énergie cinétique soit inférieure à l'énergie de coupure E_c . Durant les premiers instants du

développement de la cascade, les atomes éjectés du réseau entrent en collision avec leurs voisins, provoquant leur déplacement. Avec l'évolution de la cascade, les atomes arrêtés sont aussi heurtés et mis en mouvement. On enregistre ainsi une augmentation du nombre d'atomes en mouvement avec le temps. Cette tendance persistera jusqu'à atteindre un maximum à environ 120 fs pour le potentiel AMLJ et 160 fs pour les potentiels de Molière et Born-Mayer. Du fait que l'énergie cinétique des atomes en mouvement diminue par transfert dans les collisions élastiques et par excitation des électrons atomiques, les atomes de la cascade ralentissent dans le matériau. Et comme tout atome avec une énergie cinétique inférieure à E_c est considéré comme arrêté, alors on enregistre, à long terme, une baisse importante du nombre d'atomes en mouvement. Un tel comportement de $\langle N_m \rangle$ en fonction du temps est observé dans d'autres matériaux comme l'or et le cuivre qui ont une structure cristalline différente de celle du tantale [133]. On constate dans les figures 5.3 et 5.4 que le développement temporel d'une cascade dans le tantale suite à son irradiation est peu sensible à la température du cristal. Par contre, sa dépendance au potentiel d'interaction atomique est forte. Le développement d'une cascade dure quelques dixièmes de picoseconde. Un modèle de simulation avec le potentiel AMLJ prédit un temps d'expansion des cascades plus court que ceux avec les deux autres potentiels.

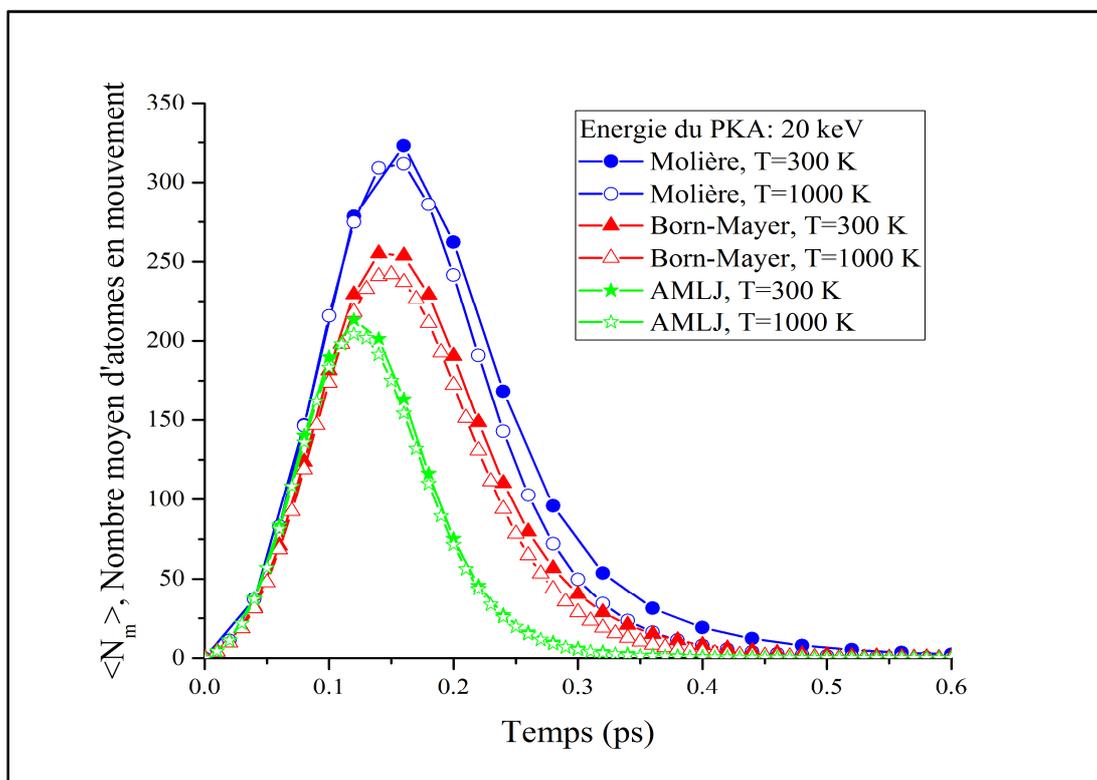


Figure 5.4. Nombre moyen d'atomes en mouvement pour un primaire de 20 keV dans le tantale.

5.2.3. Atomes déplacés

Le calcul du nombre d'atomes déplacés dans une cascade est une tâche incontournable dans l'étude des dommages induits par irradiation. Ceci vient du fait que les interstitiels et les lacunes qui subsistent à la fin de la cascade sont une conséquence directe de ces déplacements. La figure 5.5 illustre le nombre moyen d'atomes déplacés, $\langle N_d \rangle$, dans le tantale en fonction du temps. Les collisions que font le primaire et les premiers atomes de recul sont essentiellement avec les atomes du réseau car les atomes arrêtés de la cascade ne sont pas encore nombreux. Ceci se traduit par une augmentation de $\langle N_d \rangle$ avec le temps. Cette croissance se maintiendra tant que l'énergie cinétique transférée aux atomes du réseau est supérieure à l'énergie de liaison E_{th} . La dissipation de l'énergie cinétique des atomes en mouvement dans les chocs élastiques et inélastiques fait, qu'avec le temps, il y aura affaiblissement de l'énergie transférée aux atomes cibles. On constate qu'à partir de ~ 0.25 ps l'augmentation de $\langle N_d \rangle$ devient lente. Lorsqu'un atome du réseau reçoit une énergie inférieure à E_{th} , il oscillera autour de sa position d'équilibre, sans quitter son site, et dissipera l'énergie acquise sous forme de chaleur. Cette situation qui devient prépondérante à long terme fait que les atomes délogés de leurs sites se font de plus en plus rares et $\langle N_d \rangle$ finira par devenir constant dans le temps.

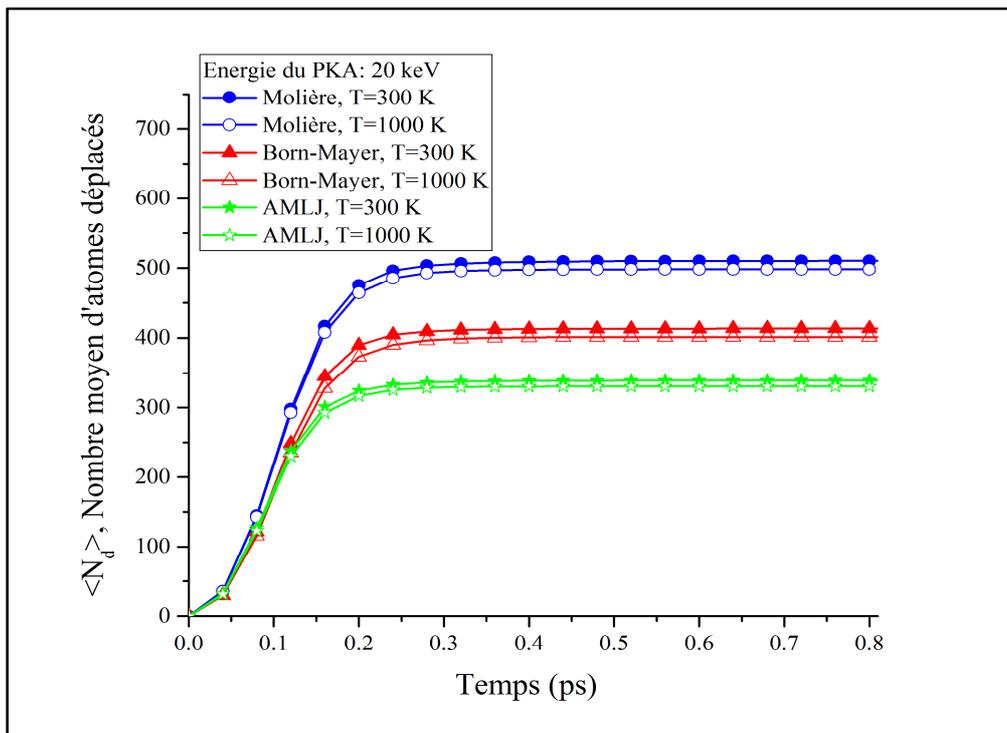


Figure 5.5. Nombre moyen d'atomes déplacés pour un primaire de 20 keV dans le tantale.

Les résultats de la simulation montrent que la dépendance du nombre d'atomes déplacés au potentiel est forte. En effet, à la fin de la cascade, et à la température 300 K, $\langle N_d \rangle$ pour le potentiel AMLJ est ~34 % plus faible que pour le potentiel de Molière. Il apparaît aussi de ces résultats que $\langle N_d \rangle$ est peu affecté par la température du cristal. On enregistre une diminution de $\langle N_d \rangle$ de 2.5 % lorsque la température du cristal est augmentée de 300 K à 1000 K, et ce, pour tous les potentiels.

5.2.4. Paires de Frenkel

Il est bien établi dans les études des dommages causés par irradiation des matériaux que les défauts ponctuels générés pendant la phase balistique de la cascade ne constituent pas tous des défauts permanents. En réalité, le nombre final de paires de Frenkel stables dépend des positions relatives des lacunes et des interstitiels. Les atomes déplacés qui terminent leurs trajectoires à proximité des lacunes se recombinaient avec celles-ci. Ce processus de guérison conduit à des défauts permanents beaucoup moins nombreux que les déplacements initiaux. Pour tenir compte de ce processus, on utilise dans Marlowe une technique basée sur le rayon de recombinaison r_V . Dans cette technique largement utilisée dans les études des dégâts d'irradiation par la BCA [76, 145], il est considéré qu'une paire de Frenkel reste stable si la distance de séparation interstitiel-lacune, r_{VI} , est plus grande que r_V . Autrement, il y a recombinaison entre les membres de la paire et elle ne sera pas comptée parmi les défauts permanents.

À partir des positions calculées des lacunes et des interstitiels, on peut construire la fonction de distribution spatiale des paires de Frenkel en fonction de la distance r_{VI} . Elle donne, pour une valeur r_{VI} , le nombre de paires de distance de séparation supérieure à r_{VI} . Sur la figure 5.6 est rapportée la fonction de distribution de paires de Frenkel corrélées, la figure 5.7 concerne les paires non corrélées tandis que la figure 5.8 donne la fonction de distribution du nombre total de paires de Frenkel (corrélées et non corrélées). Il ressort des deux premières figures que la plupart des paires de Frenkel produites sont composées de paires non corrélées. Ceci signifie que la majorité des atomes déplacés finissent leurs parcours loin de leurs sites d'origine. On observe une décroissance rapide du nombre total de paires de Frenkel en fonction de r_{VI} . Pour des valeurs faibles de r_{VI} , un grand nombre de défauts sont éliminés. Ce résultat indique qu'un nombre conséquent d'interstitiels sont immobilisés au voisinage immédiat des lacunes. Il apparaît, également, que le potentiel de Molière favorise la création de défauts plus que les autres potentiels utilisés.

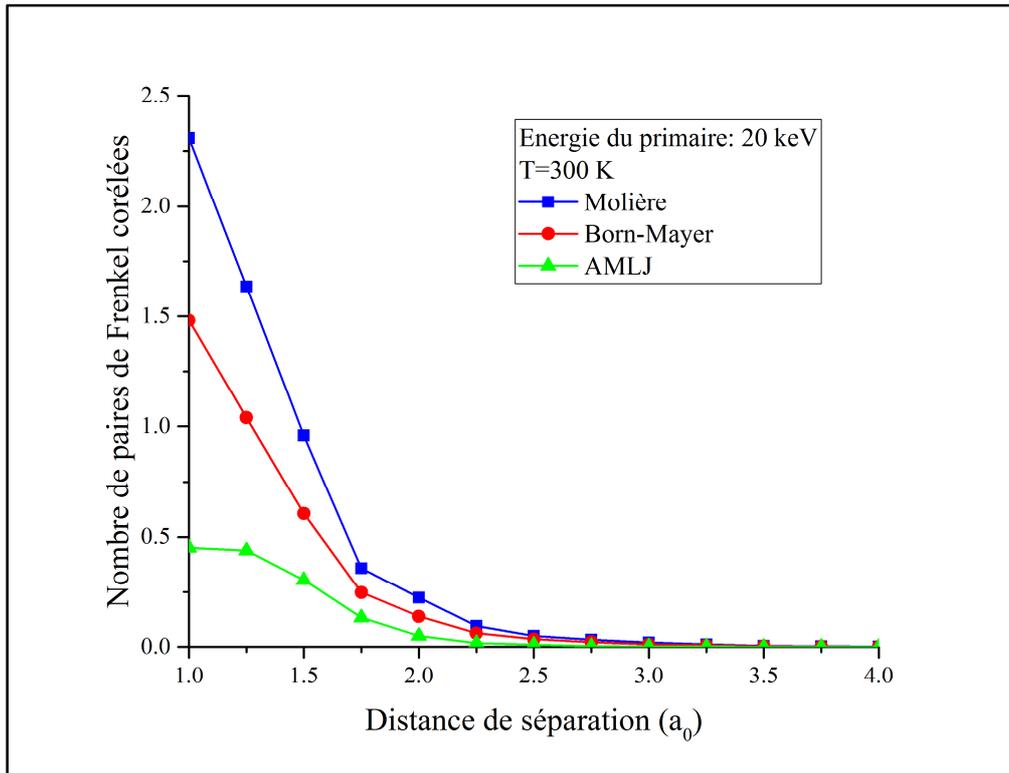


Figure 5.6. Nombre de paires de Frenkel corrélées pour un PKA de 20 keV dans le tantale.

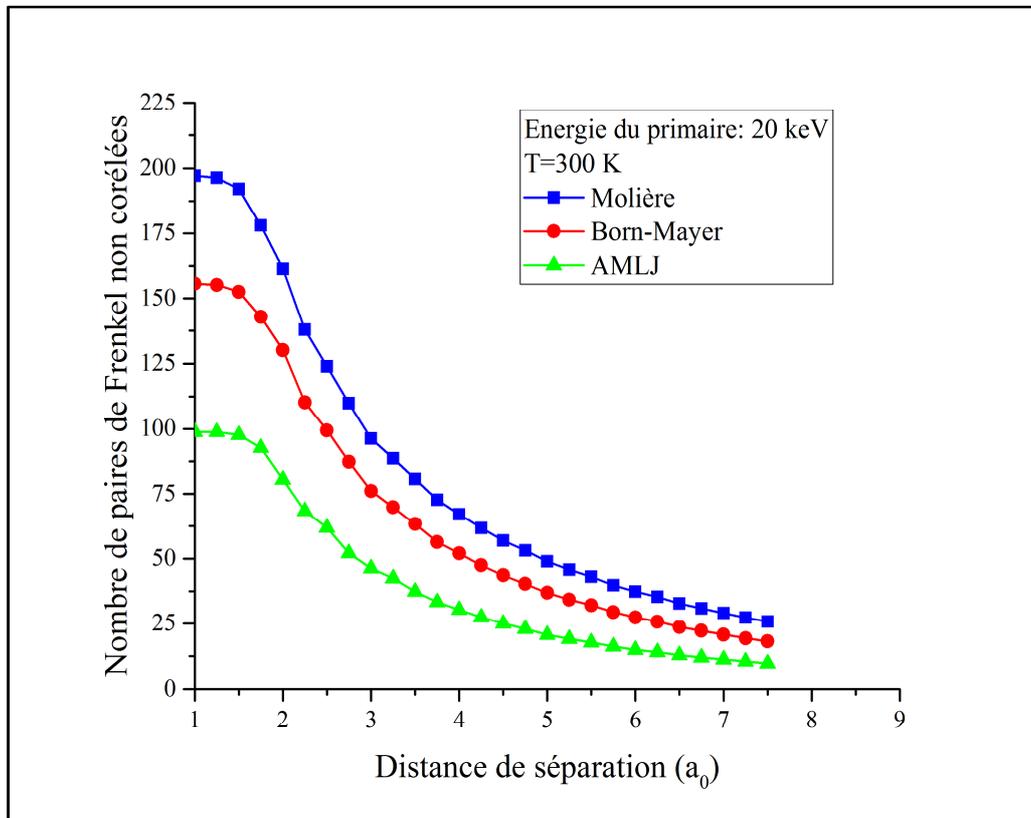


Figure 5.7. Nombre de paires de Frenkel non-corrélées pour un PKA de 20 keV dans le tantale.

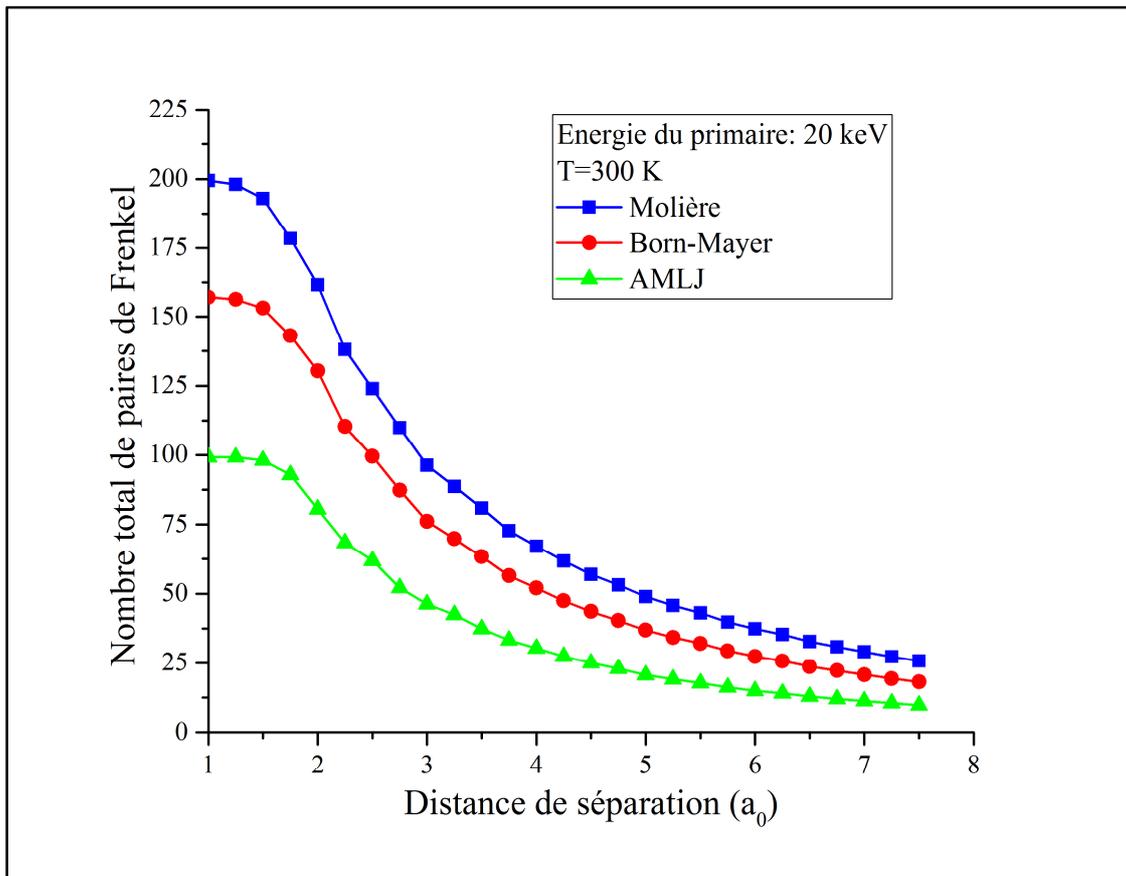


Figure 5.8. Nombre total de paires de Frenkel pour un PKA de 20 keV dans le tantale.

Pour une détermination précise du rayon de recombinaison, nous avons tout d'abord calculé le nombre de paires de Frenkel pour des énergies du primaire de 5 à 30 keV en utilisant la relation (3.100) avec la valeur du coefficient d'efficacité de déplacement $\langle \eta \rangle = 0.73$ obtenue expérimentalement de la mesure de la résistivité, et l'énergie seuil de déplacement $E_d = 90$ eV [62]. Nous avons ensuite essayé de reproduire les mêmes résultats en changeant le rayon de recombinaison dans le code Marlowe. Ce travail est répété pour les trois potentiels. Le tableau 5.1 regroupe le nombre de paires de Frenkel prédit par les modèles Kinchin-Pease et NRT modifié et calculé par Marlowe pour des primaires d'énergie variant de 5 à 30 keV. Comme il est montré sur les figures 5.9a, 5.9b et 5.9c, les résultats concordent pour les rayons de recombinaison $4.5a_0$, $3.75a_0$ et $2.5a_0$ respectivement pour les potentiels de Molière, Born-Mayer et AMLJ. Les résultats indiquent que la majorité des défauts créés dans la phase balistique ne survivent pas à la recombinaison. La fraction d'atomes déplacés qui constituent des défauts permanents dans une cascade de 20 keV est 10.4 % pour le potentiel de Molière et 15.4 % pour le potentiel AMLJ.

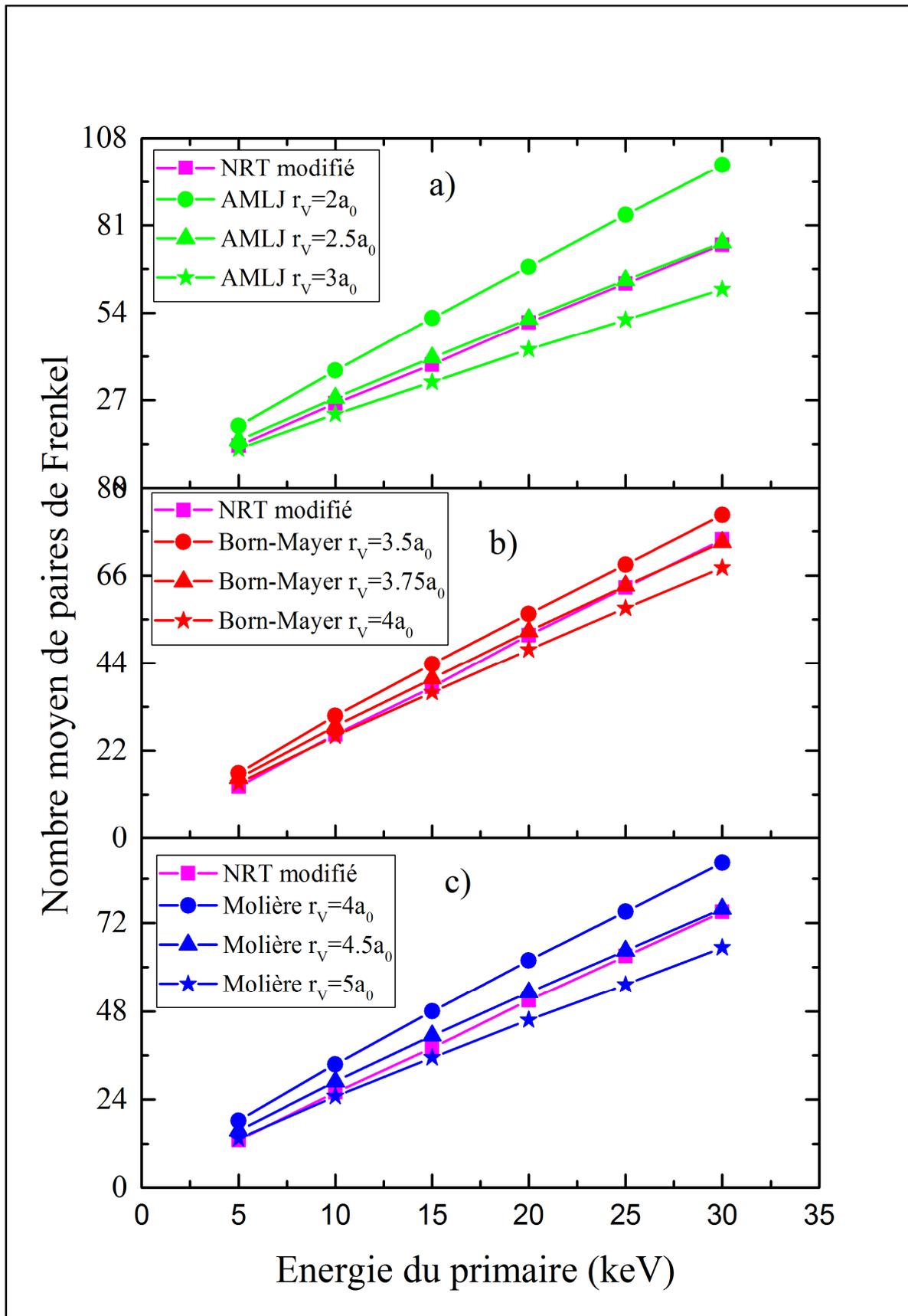


Figure 5.9. Nombre de paires de Frenkel pour différentes valeurs du rayon de recombinaison.

Tableau 5.1. Nombre de paires de Frenkel dans le tantale pour différentes énergies du primaire.

Energie du primaire (keV)		5	10	15	20	25	30	
Nombre de paires de Frenkel	Modèle KP	28	56	83	111	139	167	
	Modèle NRT modifié	13	26	38	51	63	75	
	Marlowe	Molière ($r_V = 4.5a_0$)	16	29	41	53	64	76
		Born-Mayer($r_V = 3.75a_0$)	15	28	40	52	63	74
		AMLJ ($r_V = 2.5a_0$)	15	28	40	52	64	76

5.2.5. Séquences de remplacements

Dans les matériaux à structure cristalline ordonnée, les séquences de remplacements peuvent constituer, un mécanisme efficace pour la création de défauts permanents et le développement de cascades volumineuses. Ces séquences sont favorisées, à basse énergie, le long des directions cristallographiques de bas indices. Lorsqu'une séquence est longue, elle se termine par un interstitiel dans une position lointaine du site vacant qui se trouve au début de la séquence. Ainsi, elle défavorise la recombinaison entre l'interstitiel et la lacune.

Nous avons examiné la sensibilité du nombre et de la distribution en longueur de telles séquences au potentiel d'interaction atomique et à la température du cristal. Les résultats des simulations qui sont portés sur les figures 5.10 et 5.11 et 5.12 montrent que le nombre des RCS augmente proportionnellement à l'énergie du primaire.

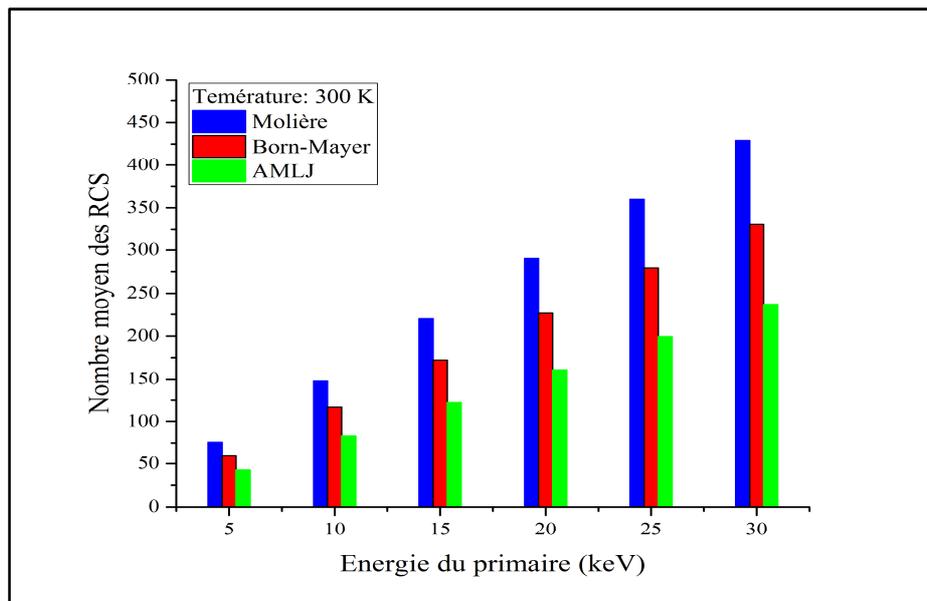


Figure 5.10. Nombre des RCS dans le tantale en fonction de l'énergie du primaire pour différents potentiels.

Les RCS sont également influencées par le potentiel. Elles sont nettement plus nombreuses pour le potentiel de Molière. Pour une cascade de 20 keV, le nombre de RCS pour le potentiel de Molière est approximativement deux fois plus grand que celui du potentiel AMLJ. On constate que le nombre et la longueur des RCS sont peu affectés par la température du cristal.

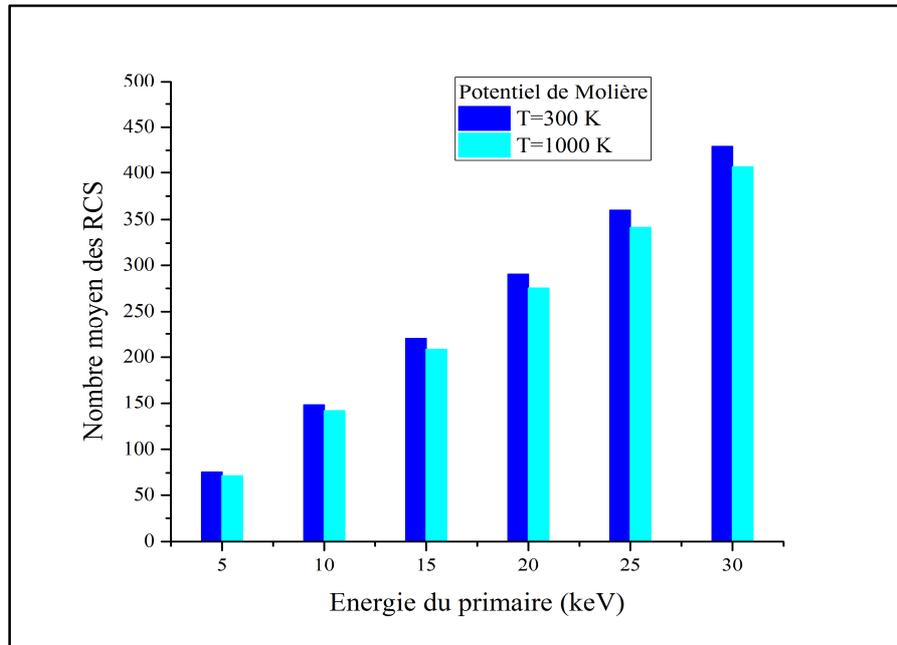


Figure 5.11. Nombre des RCS dans le tantale en fonction de l'énergie du primaire pour différentes températures.

La figure 5.12 montre clairement que les RCS sont courtes. Par exemple dans le cas du potentiel de Molière, les séquences de longueurs 3 et 4 ne constituent que 7 % et 4 % du nombre total des RCS produites, respectivement. À la lumière de ces résultats, on peut conclure de les RCS ne contribuent pas de manière significative dans la production de défauts dans le tantale.

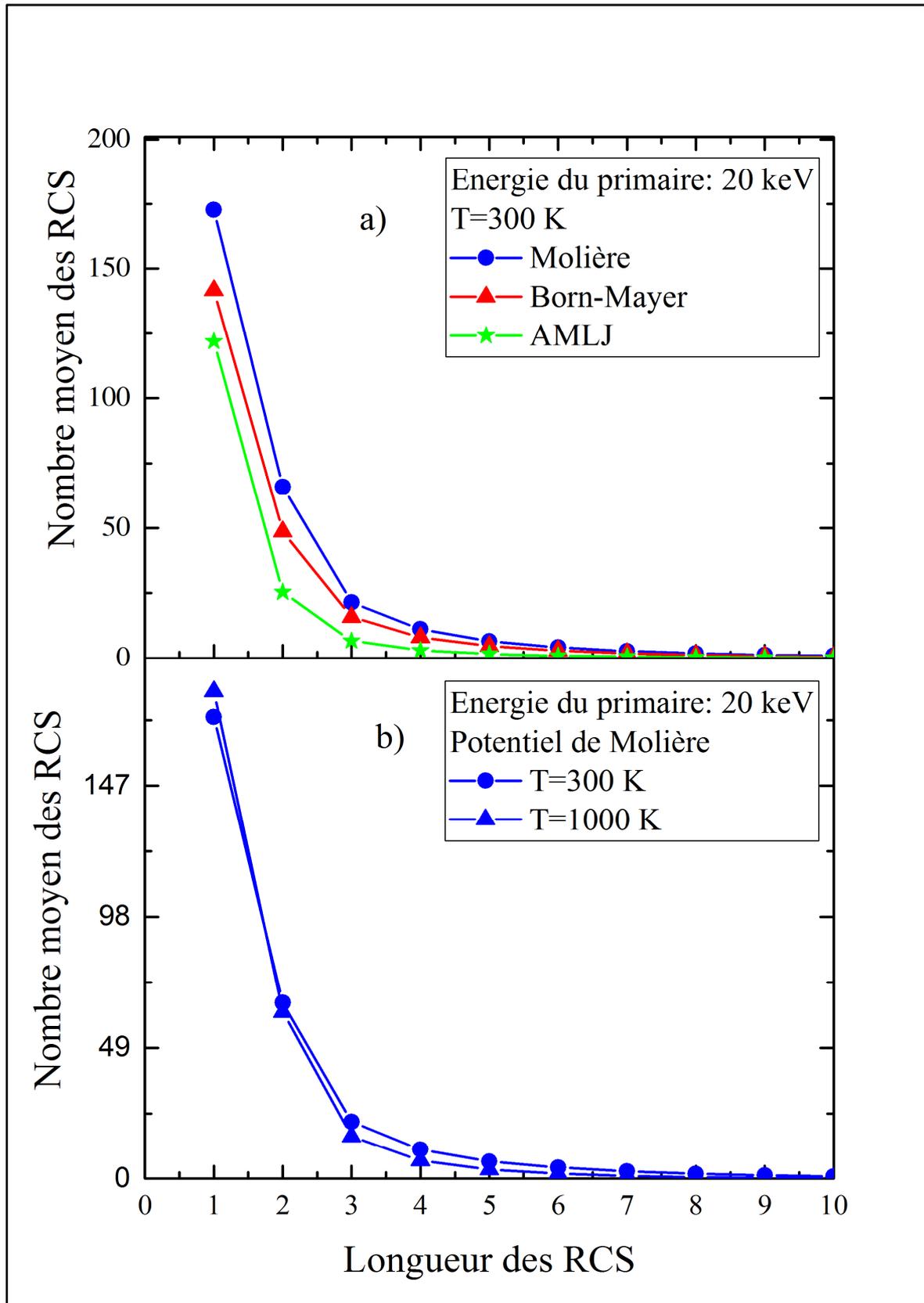


Figure 5.12. Distribution des RCS en fonction de la longueur dans le tantale.

5.2.6. Distribution spatiale des défauts

Il est possible avec Marlowe d'examiner la configuration spatiale finale d'une cascade. Ceci est fait en enregistrant les coordonnées des défauts ponctuels qui survivent à la recombinaison. Rappelons que la question de la distribution spatiale des lacunes et des interstitiels dans une cascade a été traitée analytiquement par Brinkman [191] avec le résultat que les lacunes occupent majoritairement une région centrale et sont entourées d'une couronne d'interstitiels. La figure 5.13 donne une représentation visuelle de la répartition spatiale des défauts obtenus d'une cascade de déplacements de 20 keV dans le tantale. La configuration spatiale confirme l'image de Brinkman. Il y a séparation entre les deux types de défauts ponctuels, les lacunes sont rassemblées dans la zone centrale de la cascade et les interstitiels sont condensés dans un halo entourant cette zone.

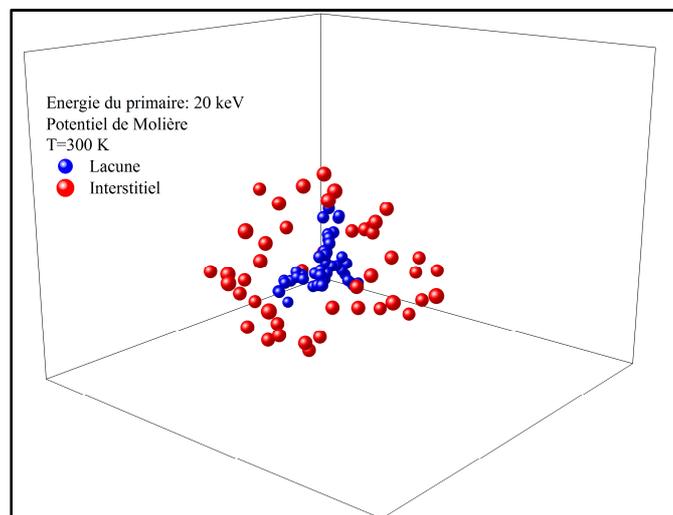


Figure 5.13. Distribution spatiale des interstitiels et des lacunes dans une cascade de 20 keV dans le tantale.

5.2.7. Volume de la cascade

Pour évaluer l'étendue des dégâts dans le tantale irradié, nous avons appliqué la technique de l'analyse en composantes principales sur le nuage des points formé par les défauts ponctuels produits. Rappelons que cette méthode permet d'associer à chaque cascade de déplacements un ellipsoïde dont la longueur et la direction des axes principaux sont calculées à partir des positions des défauts ponctuels. Le volume de la cascade est approché par le volume de l'ellipsoïde. Ce travail répété sur 5000 cascades permet de construire une distribution de volumes.

La figure 5.14 montre les distributions de volumes obtenues pour des primaires de 20 keV dans le tantale. On constate que l'asymétrie est un aspect commun entre les trois

distributions. Le coefficient d'asymétrie, sk , et le coefficient d'aplatissement, K , sont des grandeurs statistiques qui donnent des informations quantitatives sur la forme des distributions [192]. Nos calculs montrent que pour un modèle avec le potentiel de Molière, $sk = 7.60$ et $K = 108.96$, alors qu'avec le potentiel AMLJ, $sk = 3.20$ et $K = 16.84$. Le coefficient de variation qui mesure la dispersion de la distribution a pour valeur 58 % pour le potentiel de Molière et 44 % pour le potentiel AMLJ. Pour la distribution de volume de Born-Mayer, nous avons trouvé $sk = 3.17$, $K = 16.31$ et 38 % pour le coefficient de variation. Ces valeurs élevées indiquent clairement que les distributions s'écartent d'une distribution gaussienne. Leurs queues sont très étirées vers les volumes les plus élevés et les écarts entre les volumes moyens et les volumes les plus probables sont significatifs. Les volumes sont répartis sur une large plage de valeurs montrant une forte dispersion. Ces résultats indiquent que des cascades développées à partir des mêmes conditions initiales (énergie du primaire et potentiel d'interaction atomique) peuvent avoir des configurations finales très différentes. La perte de corrélation entre les conditions initiales et la configuration finale de la cascade a été observée aussi dans le fer et a été attribuée aux vibrations thermiques des atomes du réseau [175]. Nos résultats montrent également que l'étendue spatiale des dégâts dépend fortement du potentiel. En effet, un modèle avec le potentiel de Molière favorise le développement de cascades plus volumineuses que celles obtenues avec des modèles utilisant les potentiels de Born-Mayer et AMLJ.

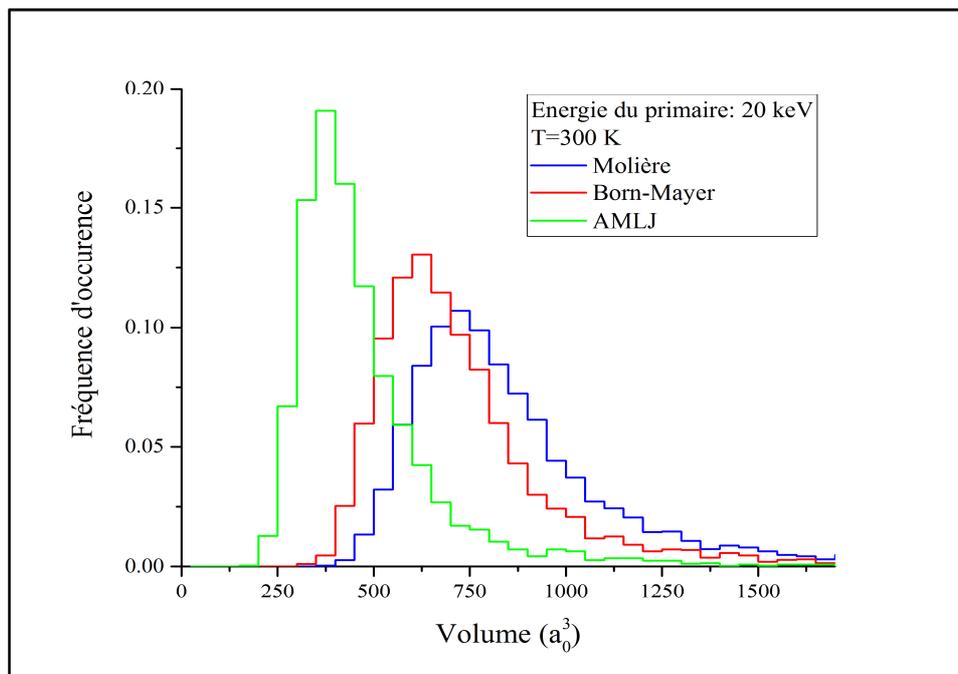


Figure 5.14. Distributions de volumes dans l'irradiation du tantale par un primaire de 20 keV.

5.2.8. Amas

Comme nous l'avons décrit précédemment, une cascade de déplacements dans un matériau finit par produire une zone fortement désordonnée peuplée de défauts ponctuels. Les interstitiels et les lacunes proches les uns des autres se recombinent. Les défauts ponctuels voisins de même type s'agglomèrent donnant naissance à des amas. Les amas d'interstitiels se transforment toujours en boucles de dislocations. Les lacunes qui sont, en particulier, concentrées au cœur de la cascade ont tendance à se rassembler pour former des cavités qui peuvent évoluer et provoquer un gonflement du matériau [106, 193].

Les amas peuvent migrer à l'extérieur de la cascade jusqu'à atteindre des dislocations ou des joints de grains. Les amas de lacunes sont moins stables et également moins mobiles que les amas d'interstitiels [106]. La fraction des défauts dans l'amas semble dépendre de la structure cristalline. Elle est la plus élevée pour la structure cubique à faces centrées et la plus faible pour la structure cubique centrée [106, 194]. Sur la base des mesures de la taille et de la densité des amas de lacunes dans les métaux irradiés, la fraction des lacunes dans les amas est estimée à moins de 15 %. Ce pourcentage peut être revu à la hausse si on tient compte de l'invisibilité des petits amas lacunaires et de leurs instabilités [106].

Dans nos simulations, nous avons considéré qu'une lacune appartient à un amas si elle a au moins une lacune à une distance inférieure ou égale à la distance des deuxièmes proches voisins. La taille de l'amas est définie par le nombre de lacunes formant l'amas. La figure 5.15 illustre la variation du nombre d'amas lacunaires et de leurs tailles dans le tantale en fonction de l'énergie du primaire. Le nombre d'amas manifeste une nette dépendance à l'énergie du primaire. Il augmente avec celle-ci. La taille des amas présente un comportement similaire. La dépendance au potentiel interatomique est très faible. On constate la formation d'amas lacunaires de petites tailles dans le tantale irradié. L'amas lacunaire le plus grand est trouvé pour une énergie du primaire de 20 keV. Il est formé de 5 lacunes. La fraction des lacunes, considérées comme des défauts ponctuels isolés dans une cascade de 20 keV, est égale à 41 % pour le potentiel de Molière et 43 % pour le potentiel AMLJ. Ces résultats sont en très bon accord avec ceux de simulations effectuées sur le fer [174] qui a la même structure cristalline que le tantale. Le pourcentage des lacunes isolées était de 45 % et la taille maximale des amas était aussi égale à cinq. Des calculs utilisant la dynamique moléculaire montrent que la faible agglomération des lacunes en amas est un comportement présent dans d'autres métaux à structure cubique centrée tels que le tungstène [169] et le vanadium [195].

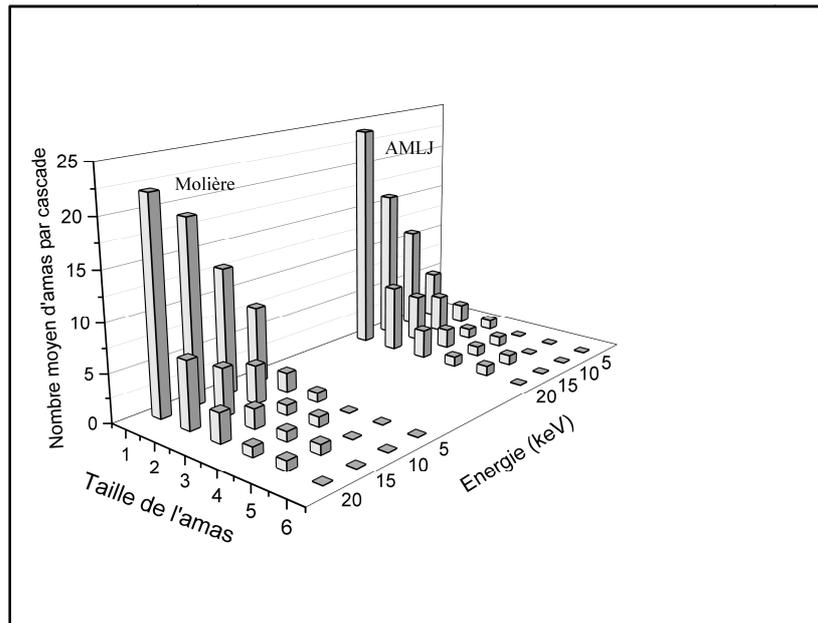


Figure 5.15. Nombre d'amas et leurs tailles dans le tantale en fonction de l'énergie du primaire.

5.3. Application au carbure de tantale

5.3.1. Paramètres de simulation

Le carbure de tantale stœchiométrique TaC est un matériau céramique réfractaire très dur et cassant. Sa température de fusion de 3880 °C [188] est parmi les plus élevées des composés binaires connus. Il cristallise dans la structure du chlorure de sodium (NaCl) dans le groupe spatial $Fm\bar{3}m$. Les atomes de tantale forment une structure cubique à faces centrées avec un paramètre de maille $a_0 = 4.453\text{Å}$ alors que tous les sites interstitiels octaédriques sont occupés par les atomes de carbone (voir figure 5.16) [196, 197].

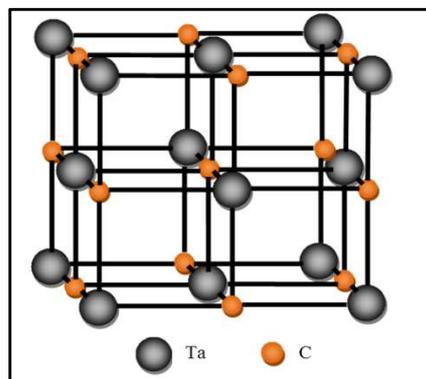


Figure 5.16. Maille cristalline du carbure de tantale stœchiométrique.

Les potentiels de paires utilisés pour rendre compte des interactions entre les atomes en collision sont le potentiel de Molière (2.23), le potentiel de Born-Mayer (2.1) et le potentiel

universel ZBL (2.28). Le paramètre d'écran du potentiel de Born-Mayer est $a_{BM} = 0.219\text{\AA}$ pour toutes les interactions. Le paramètre A_{BM} de ce potentiel est évalué en utilisant la relation (2.4). Le paramètre d'écran pour les potentiels de Molière et ZBL est calculé à partir des relations (2.11) et (2.27), respectivement. Les résultats sont donnés dans le tableau 5.2.

Tableau 5.2. Paramètres des potentiels interatomiques Molière, Born-Mayer et ZBL.

Potentiel de Molière			Potentiel ZBL			Potentiel de Born-Mayer		
Paramètre d'écran (\AA)			Paramètre d'écran (\AA)			Paramètre A_{BM} (eV)		
Ta-Ta	Ta-C	C-C	Ta-Ta	Ta-C	C-C	Ta-Ta	Ta-C	C-C
0.07062	0.09476	0.16242	0.08732	0.11174	0.15513	32433.038	4978.619	764.241

L'énergie de liaison d'un atome pour un déplacement est prise égale à l'énergie de cohésion $E_{th} = 8.56\text{eV}$ [198, 199]. Pour des événements de remplacement et redéplacement, l'énergie de liaison est $E_r = 0.2\text{eV}$ et $E_b = 0.0\text{eV}$, respectivement. Une valeur maximale de $0.45a_0$ du paramètre d'impact a été fixée. Les vibrations thermiques des atomes du réseau sont décrites par le modèle de Debye avec les températures de Debye 225 K pour le tantale et 1550 K pour le carbone, respectivement [200]. Les simulations ont été faites pour la température de cristal 300 K. La théorie LSS a été utilisée pour tenir compte de la perte d'énergie inélastique. Pour la formation des paires de Frenkel, vu que le matériau est diatomique, nous avons imposé dans le processus d'appariement que l'interstitiel soit du même type que le site vacant avec lequel est apparié.

5.3.2. Atomes déplacés

La figure 5.17 représente le nombre d'atomes de carbone et de tantale déplacés pendant des intervalles de temps réguliers de 10 fs. Les cascades sont initiées par un primaire d'énergie 20 keV. On constate qu'il y a deux phases dans la génération d'atomes déplacés. La première phase est caractérisée par une augmentation qui s'achève par un maximum entre les instants 0.07 et 0.08 ps pour le carbone et entre 0.08 et 0.09 ps pour le tantale. Puis, il y a entame de la deuxième phase dans laquelle il y a diminution avec le temps du nombre d'atomes déplacés. Pendant toute la durée de cette dernière phase, qui s'achève à environ 0.25 ps, il y a toujours plus d'atomes de tantale éjectés de leurs sites que d'atomes de carbone et ce, pour tous les potentiels.

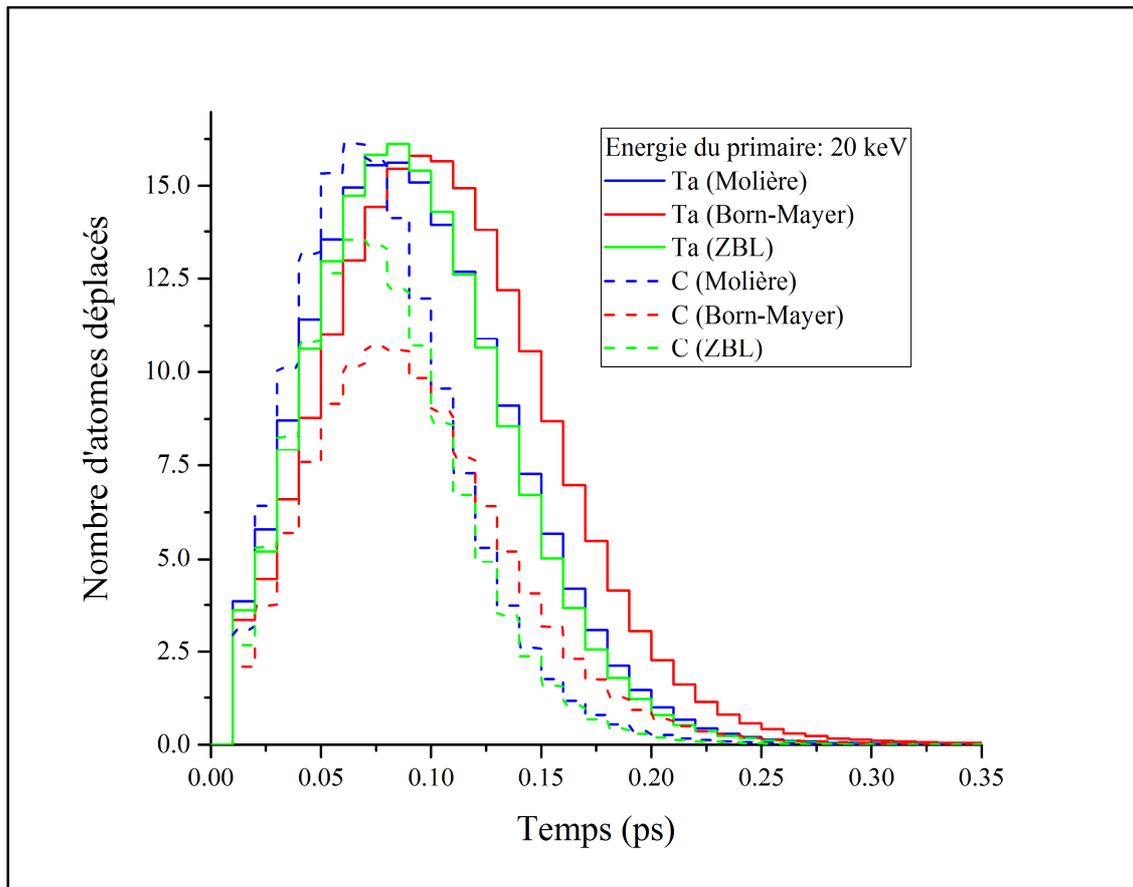


Figure 5.17. Histogramme du nombre d'atomes déplacés dans TaC pour un primaire de 20 keV.

Une deuxième manière d'analyser l'évolution temporelle du nombre d'atomes déplacés est illustrée sur la figure 5.18. Elle représente le nombre cumulé, c'est-à-dire le nombre total d'atomes, de chaque type, évincés de leurs positions d'équilibre. Le commentaire du phénomène de saturation reste identique à celui de la figure 5.5. À la fin de la phase balistique, nous remarquons un excès notable d'atomes de tantale parmi le nombre total d'atomes déplacés du réseau pour tous les potentiels utilisés. En effet, les calculs indiquent que le nombre moyen d'atomes Ta délogés de leurs sites est plus élevé que celui des atomes C d'environ 21 %, 30 % et 42 % pour les potentiels de Molière, ZBL et Born-Mayer, respectivement. L'excès d'atomes de tantale déplacés est probablement dû à leur taille qui favorise la collision plus que les atomes d'oxygène.

Le choix du potentiel interatomique influence les résultats. On trouve une augmentation de 10 % d'atomes Ta déplacés dans le cas du potentiel de Born-Mayer par rapport au potentiel de Molière, alors que pour les atomes C, il y a une diminution de 19 %.

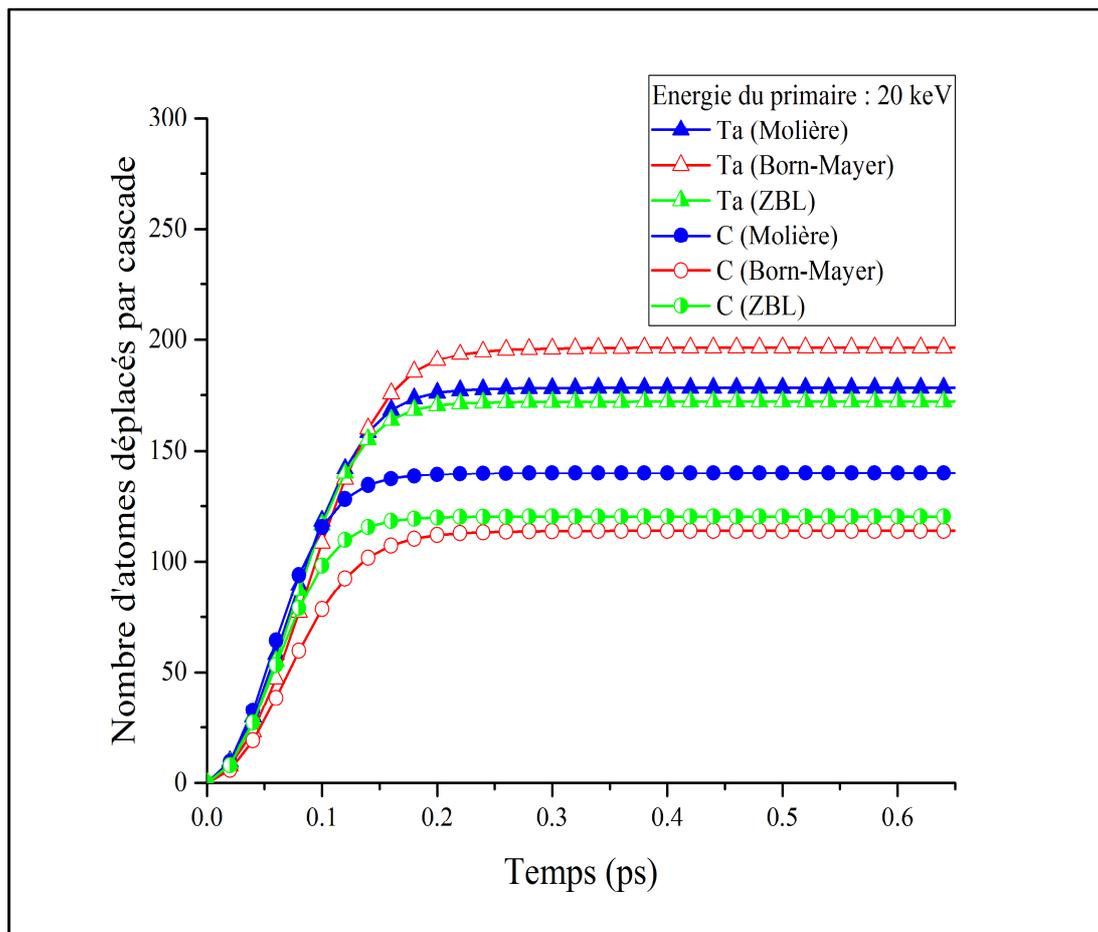


Figure 5.18. Nombre moyen d'atomes déplacés par cascade dans TaC pour un primaire de 20 keV.

5.3.3. Paires de Frenkel

La figure 5.19 représente la fonction de distribution des paires de Frenkel du tantale et du carbone en fonction de la distance de séparation interstitiel-lacune. Trois résultats importants doivent être signalés. Tout d'abord, la diminution rapide du nombre de paires de Frenkel avec l'augmentation de la distance de séparation des paires. Pour tous les potentiels utilisés, lorsque la distance r_{VI} est doublée de a_0 à $2a_0$, le nombre de paires de Frenkel diminue de presque 50 %. Ceci reflète le fait qu'un grand nombre d'atomes déplacés sont à proximité des sites vacants du même type. Deuxièmement, le modèle avec le potentiel de Born-Mayer prédit plus de paires de Frenkel que les autres modèles. En prenant un rayon de recombinaison égal à la distance des deuxièmes proches voisins, nous avons trouvé que 33 % et 39 % des atomes déplacés de Ta constituent des paires de Frenkel permanentes pour les potentiels ZBL et Molière, respectivement. Pour les atomes de carbone, les rapports sont 26 % et 22 %. Pour le potentiel de Born-Mayer, les taux sont 40 % pour Ta et 38 % pour C. Enfin, il y a un excès significatif du nombre de paires de Frenkel du tantale parmi les défauts

créés. Le nombre de paires de Frenkel stables pour Ta et C est donné dans le tableau 5.3. Le nombre de paires survivantes du tantale est presque le double de celui du carbone.

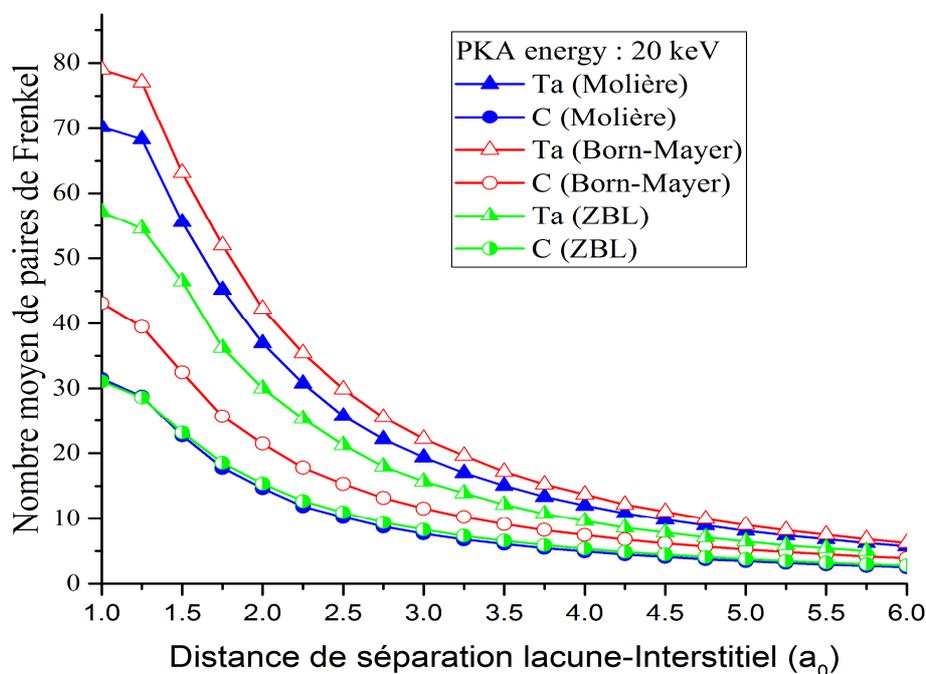


Figure 5.19. Nombre moyen de paires de Frenkel dans TaC en fonction de la distance de séparation interstitiel-lacune.

Tableau 5.3. Nombre de paires de Frenkel stables dans TaC pour un primaire de 20 keV.

		Potentiel interatomique		
		Molière	Born-Mayer	ZBL
Nombre de paires de Frenkel stables	Ta	70	79	57
	C	31	43	31

5.3.4. Séquences de remplacements

Les distributions en longueur des séquences de remplacements dans TaC pour différents potentiels sont données sur la figure 5.20. Comme on peut le voir sur la figure, les longueurs des séquences sont faiblement affectées par le potentiel. Les RCS pour le potentiel de Born-Mayer sont, relativement, les plus nombreuses et les plus longues. Pour ce potentiel, les RCS de longueur trois ne représentent que 3.4 % du nombre total des RCS générées. Ce qui signifie que la plupart des RCS ne se propagent pas sur de longues distances dans le cristal. Comme nous l'avons rapporté précédemment, l'irradiation du tantale sous les mêmes

conditions (même énergie du primaire, même température et même potentiel) a donné un nombre de RCS approximativement deux fois plus grand que dans le cas de TaC. Cette différence est probablement due à la structure cristalline différente des deux cristaux.

Le développement des RCS n'est pas favorisé dans les composés. En effet, la présence d'atomes de masses différentes dans les rangées atomiques cause une dissipation d'énergie dans la chaîne de collisions. Lorsqu'un atome léger positionné entre deux atomes lourds est heurté, il va rebondir sur l'atome lourd en aval pour revenir à l'atome en amont duquel il a reçu l'impact initial. Ces collisions multiples détruisent le caractère unidirectionnel de la séquence de remplacements et entraînent une perte d'énergie substantielle.

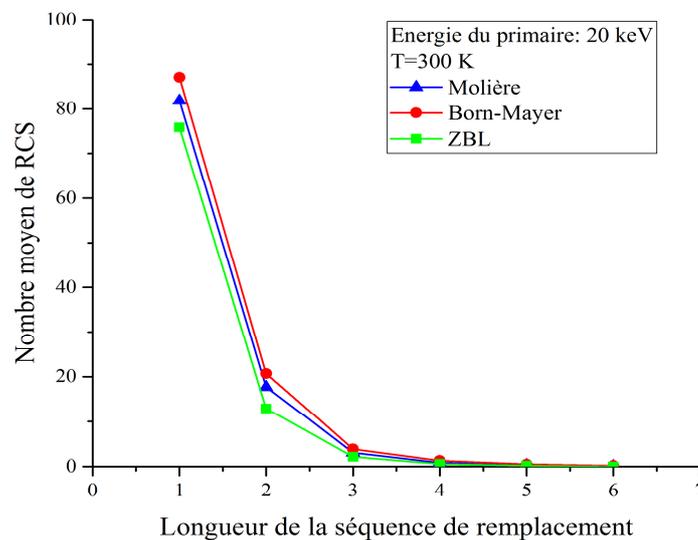


Figure 5.20. Distribution en longueur des séquences de remplacements dans TaC.

5.3.5. Volume de la cascade

L'application de l'analyse en composantes principales à chacune des 5000 cascades a permis de construire les distributions des volumes montrées à la figure 5.21. Ces distributions présentent des caractéristiques similaires à celles du tantale. Elles sont asymétriques, avec des queues étirées vers les volumes les plus élevés. Elles montrent une haute variabilité avec un grand écart entre la valeur moyenne et la valeur la plus probable. Le potentiel ne semble pas avoir une influence aussi marquée sur les distributions que dans le cas du tantale. Le volume des cascades le plus probable dans TaC est approximativement $200a_0^3$. Les cascades dans TaC sont nettement moins volumineuses que les cascades dans le tantale.

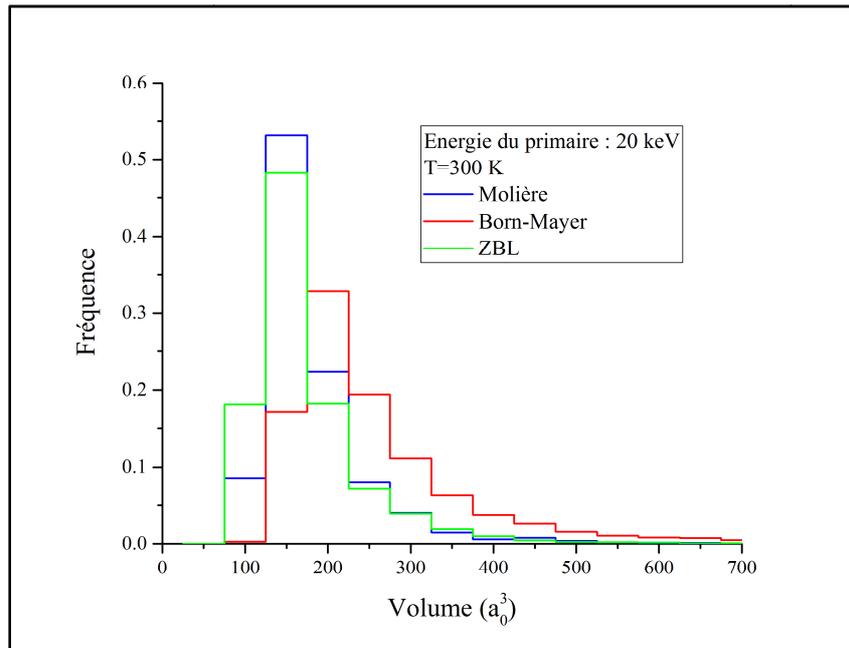


Figure 5.21. Distributions des volumes dans TaC.

5.3.6. Amas

La figure 5.22 illustre la distribution du nombre et de la taille des amas de lacunes en fonction de l'énergie du primaire dans le carbure de tantale. Seuls les résultats pour le potentiel de Molière sont donnés. Les résultats pour les autres potentiels sont sensiblement les mêmes. Le nombre d'amas et leur taille augmentent avec l'énergie des primaires. De petits amas de lacunes sont observés dans TaC irradié dans la plage énergétique étudiée. Le plus grand amas est trouvé pour l'énergie du primaire de 20 keV et il est composé de sept lacunes. La fraction de lacunes considérées comme des défauts ponctuels isolés dans une cascade de 20 keV est d'environ 33 %.

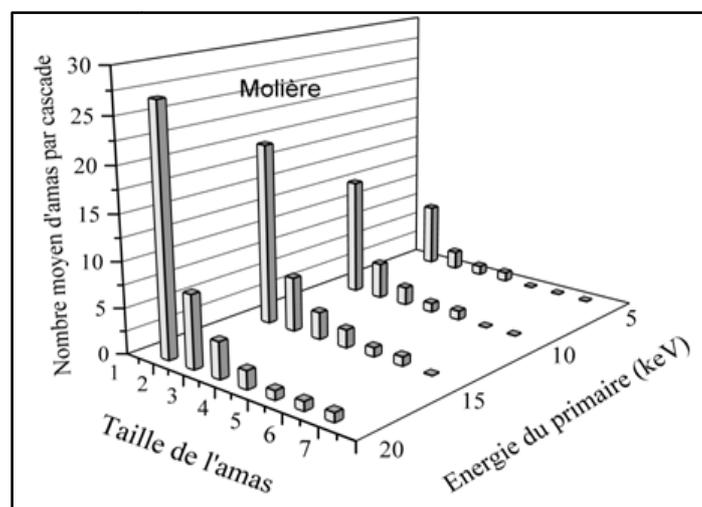


Figure 5.22. Nombre d'amas lacunaires et leurs tailles dans TaC en fonction de l'énergie du primaire.

5.4. Application au pentoxyde de tantale

5.4.1. Paramètres de simulation

Le pentoxyde de tantale est un oxyde de métal de transition présentant une constante diélectrique et un indice de réfraction élevés. Il est fréquemment utilisé dans la fabrication de condensateurs. Il a une excellente résistance à la corrosion, une bonne biocompatibilité et un comportement piézoélectrique [17, 20, 201-203]. La structure cristalline du pentoxyde de tantale fait l'objet de débats depuis longtemps [204-207]. Deux phases cristallines ont été observées pour ce matériau : une phase orthorhombique et une phase hexagonale. La phase orthorhombique peut être divisée, selon la température, en deux formes : une forme à basse température, connue sous le nom de β -Ta₂O₅, et une forme à haute température notée α -Ta₂O₅. La transition entre ces deux formes est lente, réversible et se déroule de 1 000 à 1 360 °C [17, 208]. Entre les deux températures, les deux formes coexistent. À température ambiante les paramètres de maille de la structure orthorhombique β -Ta₂O₅ sont $a_0 = 6.425\text{Å}$, $b_0 = 3.776\text{Å}$ et $c_0 = 7.706\text{Å}$ [209]. Les positions des atomes de tantale et d'oxygène sont données par Hollerweger *et al.* [209]. Les primaires qui ont été choisis parmi les atomes de tantale ont été lancés isotropiquement de leurs sites avec des énergies cinétiques allant jusqu'à 20 keV. Les potentiels interatomiques utilisés pour décrire l'interaction entre les atomes en collision sont les potentiels de ZBL, Molière et AMLJ. Les valeurs du paramètre d'écran pour les différentes interactions sont données dans le tableau 5.4.

Tableau 5.4. Paramètres des potentiels interatomiques de Molière, ZBL et AMLJ.

Potentiel de Molière Paramètre d'écran (Å)			Potentiel ZBL Paramètre d'écran (Å)			Potentiel AMLJ Paramètre d'écran (Å)		
Ta-Ta	Ta-O	O-O	Ta-Ta	Ta-O	O-O	Ta-Ta	Ta-O	O-O
0.070617	0.092641	0.147566	0.087319	0.109055	0.145199	0.122603	0.148047	0.192764

L'énergie de liaison des atomes à leurs sites de réseau est prise égale à l'énergie de cohésion du matériau $E_{th} = 7.41$ eV [210]. Les énergies de liaison pour les événements de remplacement et redéplacement ont été fixées à 0.2 eV et 0 eV, respectivement [133, 173, 175]. Pour l'énergie de coupure nous avons $E_c = E_{th}$. Les collisions avec un paramètre d'impact maximal de $0.45a_0$ ont été évaluées. Les calculs sont faits pour une température du cristal de 300 K. Les vibrations thermiques des atomes du réseau sont décrites par le modèle de Debye [176] avec les températures de Debye 225 K et 500 K pour le tantale et l'oxygène

respectivement [200]. Nous avons utilisé le modèle LSS pour calculer la perte d'énergie inélastique. Les collisions avec un paramètre d'impact maximal de $0.45a_0$ sont évaluées.

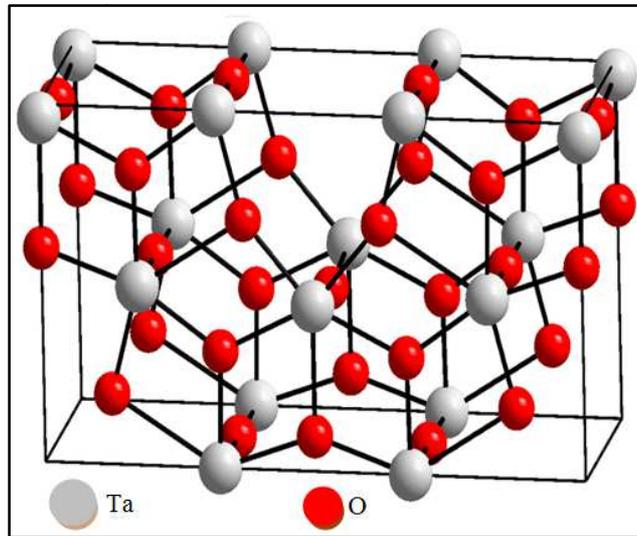


Figure 5.23. Structure cristalline du pentoxyde de tantale.

5.4.2. Atomes en mouvement

La figure 5.24 montre la variation du nombre moyen d'atomes en mouvement de tantale et d'oxygène en fonction du temps dans une cascade de 20 keV dans le pentoxyde de tantale. Comme nous l'avons expliqué dans le commentaire de la figure 5.4, le primaire déplace des atomes du réseau qui heurtent à leur tour d'autres atomes et ainsi de suite. Ceci entraîne une avalanche de collisions atomiques provoquant l'augmentation du nombre d'atomes mobiles avec le temps jusqu'à atteindre un maximum à environ 0.12 ps pour les atomes d'oxygène et 0.14 ps pour les atomes de tantale. L'accroissement du nombre d'atomes d'oxygène se fait plus rapidement que celui du tantale. Le nombre maximal d'atomes O est approximativement le double du nombre d'atomes Ta. Ceci est essentiellement dû à l'abondance des atomes d'oxygène dans le matériau. Au fur et à mesure que la cascade se développe, l'énergie cinétique des atomes mobiles se dissipe dans les collisions élastiques et inélastiques jusqu'à atteindre l'énergie de coupure. Par conséquent, le nombre d'atomes en mouvement diminue avec le temps. L'abondance et la mobilité des atomes d'oxygène leur permettent de subir un plus grand nombre de collisions et de perdre beaucoup plus d'énergie inélastique que ceux du tantale. En effet, nos simulations montrent que pour tous les modèles de potentiel utilisés, les atomes d'oxygène sont impliqués dans environ 79 % du nombre total de collisions dans la cascade. On constate que l'écart entre les résultats trouvés pour le potentiel ZBL et le potentiel AMLJ est très faible. Un modèle avec le potentiel de Molière

prédit des cascades avec un temps d'expansion plus long mais avec des atomes d'oxygène qui s'immobilisent rapidement.

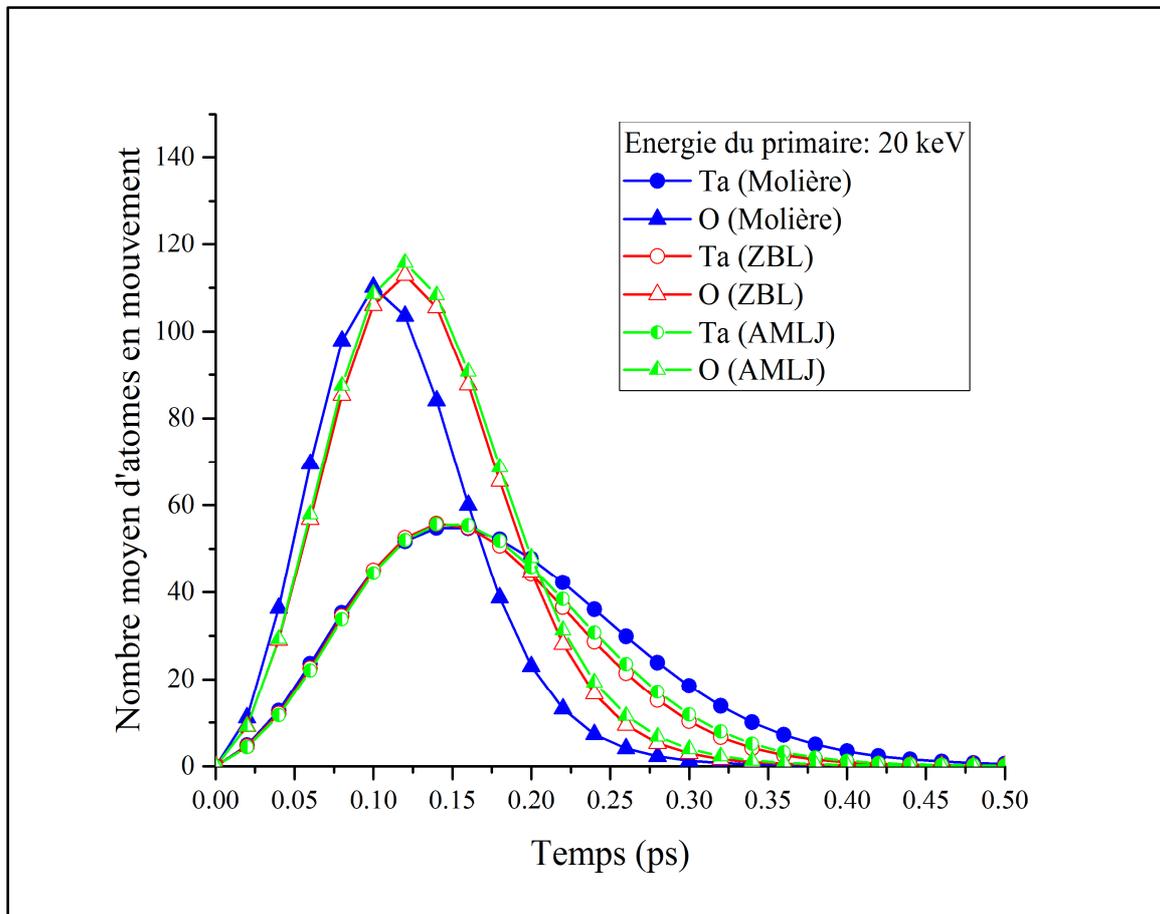


Figure 5.24. Atomes de tantale et d'oxygène en mouvement dans une cascade dans Ta_2O_5 de 20 keV.

5.4.3. Atomes déplacés

La figure 5.25 représente le nombre moyen d'atomes de tantale et d'oxygène déplacés, $\langle N_d \rangle$, dans une cascade 20 keV dans le pentoxyde de tantale. Lorsque les atomes mobiles ne seront plus en mesure de transmettre aux atomes du réseau une énergie supérieure à l'énergie de liaison de déplacement, aucun atome ne sera ajouté à la cascade et $\langle N_d \rangle$ n'augmentera plus. À la fin de la cascade, nous observons un déficit significatif des atomes de tantale parmi le nombre total d'atomes déplacés. Le nombre d'atomes d'oxygène déplacés est environ 2.5 fois plus élevé que celui du tantale pour le potentiel ZBL alors qu'il est environ 3 fois plus élevé pour un modèle avec le potentiel de Molière. Les potentiels ZBL et AMLJ donnent des résultats très proches.

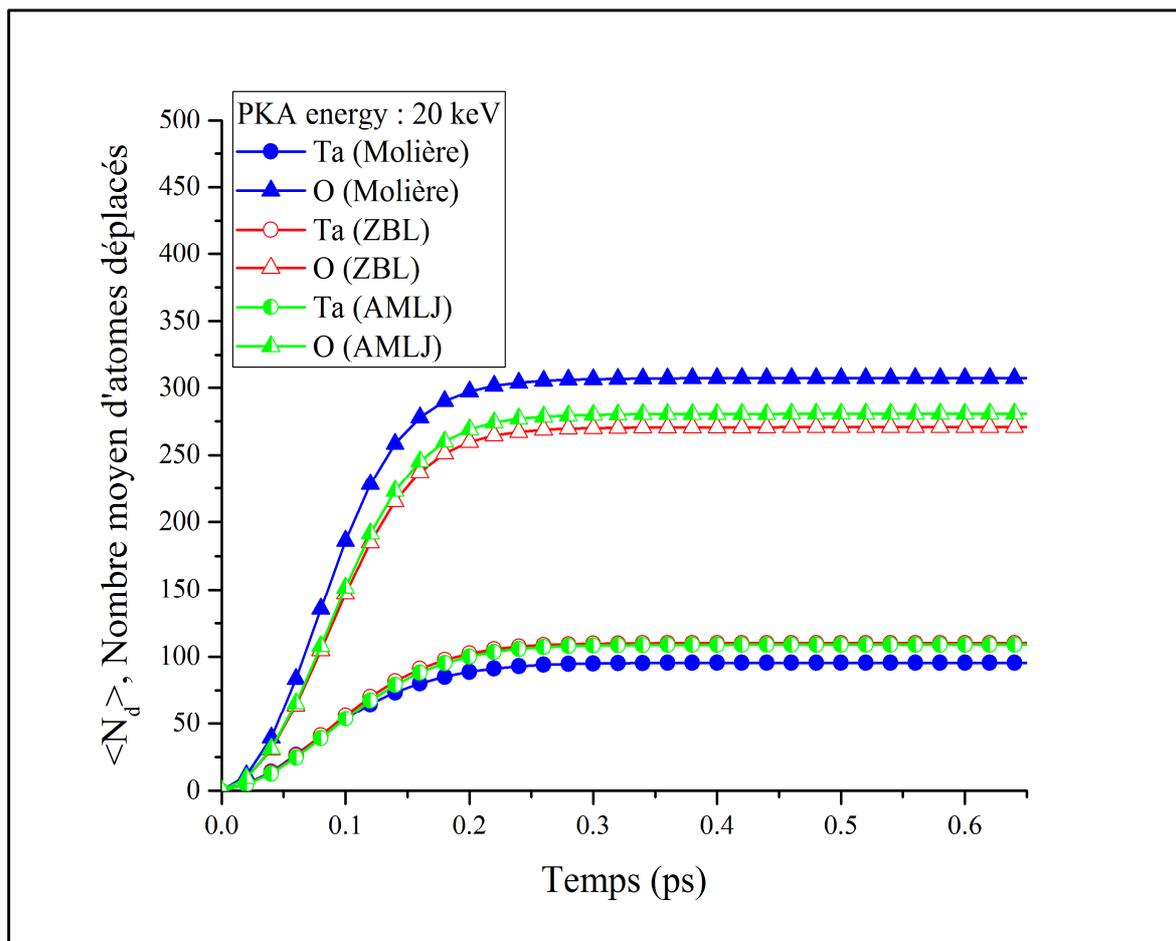


Figure 5.25. Atomes de tantale et d'oxygène déplacés dans une cascade dans Ta_2O_5 de 20 keV.

5.4.4. Paires de Frenkel

La figure 5.26 donne la fonction de distribution des paires de Frenkel en fonction de la distance de séparation interstitiel-lacune dans Ta_2O_5 irradié avec des primaires de 20 keV. Comme c'est le cas dans tous les matériaux irradiés, un grand nombre de défauts générés dans les cascades de déplacements sont éliminés par recombinaison. Pour une distance de séparation interstitiel-lacune donnée, il y a toujours moins de paires de Frenkel de tantale que d'oxygène. Le rapport du nombre de paires de Frenkel stables au nombre total d'atomes déplacés est nettement différent pour les deux types d'atomes. Nos simulations avec le potentiel ZBL montrent que 34 % des atomes de tantale déplacés constituent des paires de Frenkel stables alors que ce taux est d'environ 44 % pour les atomes d'oxygène. Dans un modèle avec le potentiel de Molière, les rapports sont 40 % et 36 % pour les atomes Ta et O, respectivement. Pour tous les potentiels utilisés, le nombre moyen de paires de Frenkel d'oxygène est environ 3 fois plus grand que celui du tantale. Il est à noter que les trois potentiels prédisent quasiment le même nombre de paires de Frenkel de tantale stables qui est

d'environ 35 paires. Le tableau 5.5 résume les résultats trouvés pour le nombre de paires de Frenkel stables dans le pentoxyde de tantale pour un primaire de 20 keV.

Tableau 5.5. Nombre de paires de Frenkel stables dans Ta₂O₅ pour un primaire de 20 keV.

		Potentiel interatomique		
		Molière	ZBL	AMLJ
Nombre de paires de Frenkel stables	Ta	35	35	36
	O	109	117	129

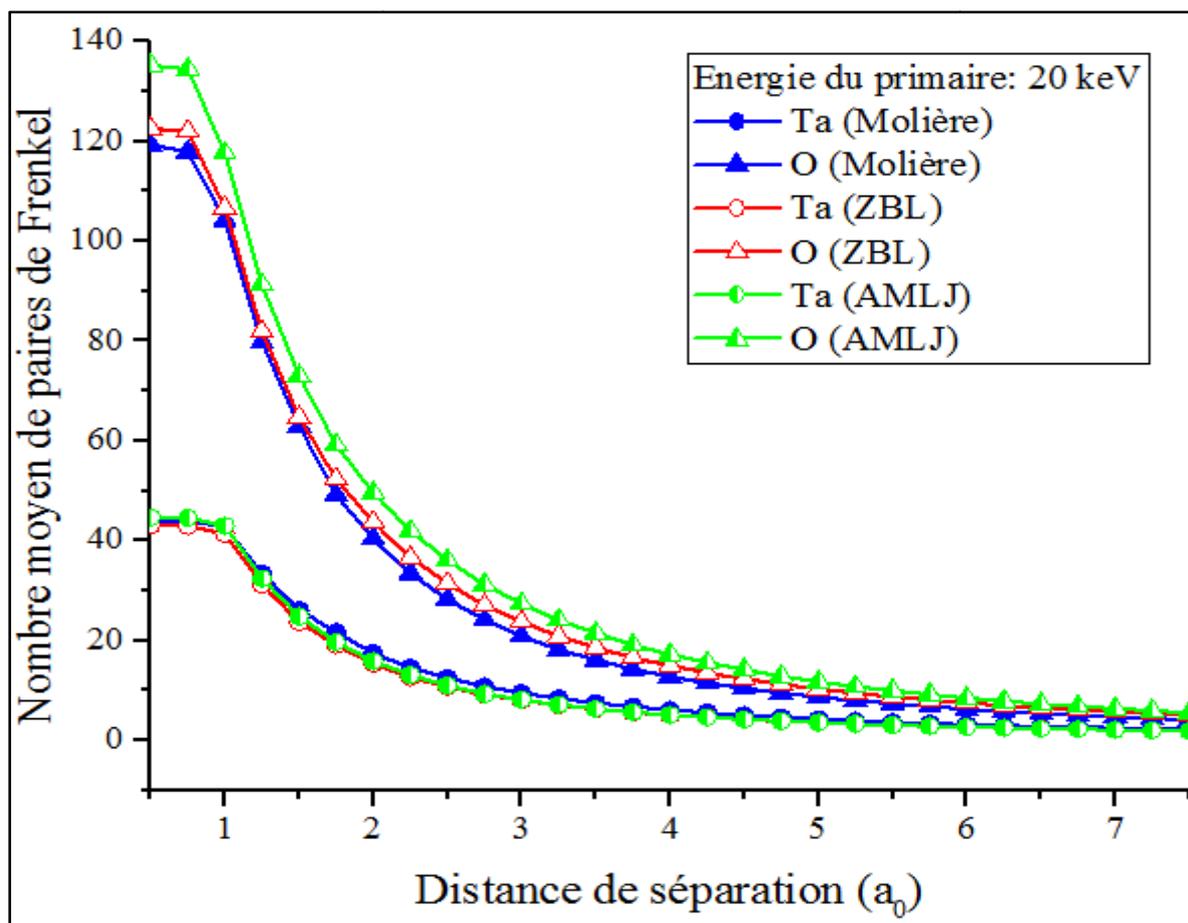


Figure 5.26. Nombre de paires de Frenkel produites dans une cascade dans Ta₂O₅ de 20 keV.

5.4.5. Volume de la cascade

La figure 5.27 montre les distributions des volumes des cascades de déplacements obtenues avec des primaires d'énergie 20 keV dans Ta₂O₅. Ces distributions sont obtenues par l'application de l'analyse en composantes principales aux 5000 cascades. Outre l'asymétrie et la haute dispersion qui ont été observées également dans les cas du tantale et du carbure de tantale, les distributions sont moins sensibles aux potentiels que dans Ta et TaC. L'intervalle

de la classe modale pour les trois distributions est $150 \text{ à } 200a_0^3$. On observe qu'il y a une tendance pour que les cascades pour AMLJ soient les plus développées et celles de Molière soient les plus petites.

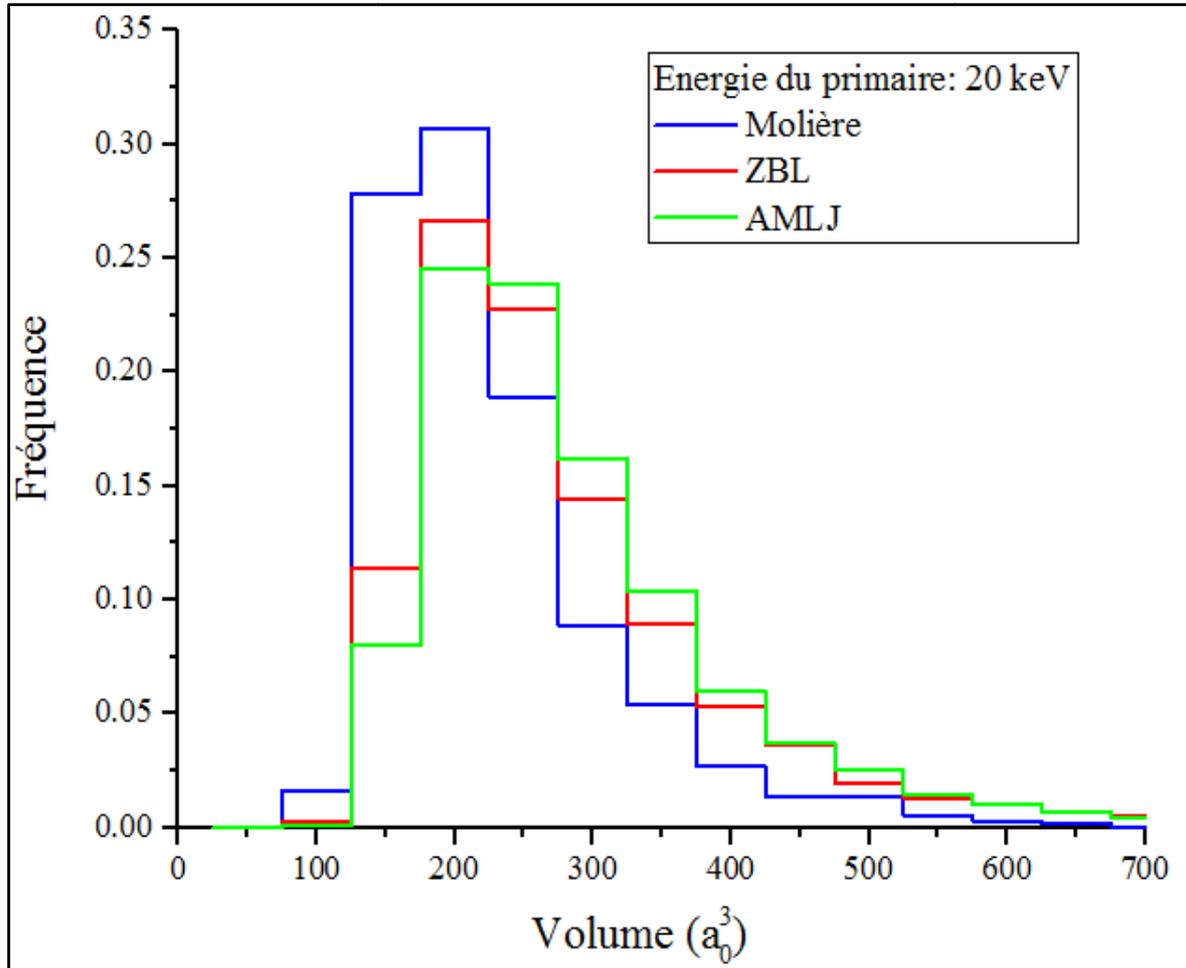


Figure 5.27. Distributions de volumes des cascades dans Ta_2O_5 pour des primaires de 20 keV.

5.4.6. Amas

La figure 5.28 illustre la distribution du nombre et de la taille des amas de lacunes dans le pentoxyde de tantale en fonction de l'énergie du primaire. Il ressort de nos calculs qu'il n'y a pas de différences appréciables entre les résultats trouvés pour les trois potentiels utilisés. De petits amas de lacunes sont formés essentiellement dans le cœur des cascades de déplacements dans le pentoxyde de tantale pour des énergies qui ne dépassent pas 20 keV. L'amas le plus important est trouvé pour l'énergie du primaire de 20 keV, et il est composé de six lacunes. Les lacunes qui constituent des défauts ponctuels isolés représentent 31 % du nombre total de lacunes produites dans la cascade de déplacements.

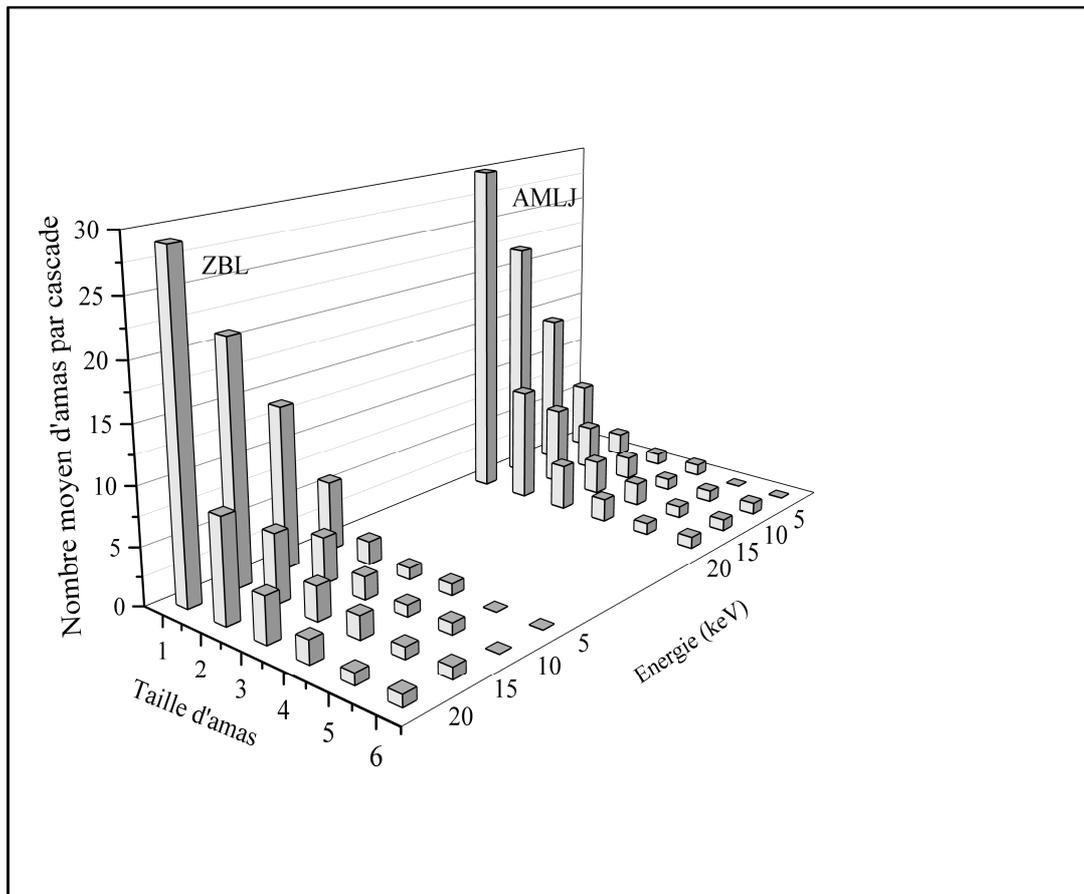


Figure 5.28. Nombre d'amas et leur taille en fonction de l'énergie du primaire dans Ta₂O₅.

5.5 Conclusion

Ce chapitre est destiné aux résultats obtenus par simulation des cascades de déplacements dans le tantale, le carbure de tantale et le pentoxyde de tantale. Nous avons constaté pour les trois matériaux irradiés, que la fraction des atomes déplacés qui constituent des défauts permanents est petite. La contribution des séquences de remplacements à la production des dommages est faible. Les distributions des volumes de cascades sont asymétriques et présentent une forte dispersion. Les amas de lacunes formés à des énergies de primaires qui ne dépassent pas 20 keV sont de petites tailles.

Conclusion générale

Conclusion générale

Le tantale, le carbure de tantale et le pentoxyde de tantale possèdent des propriétés physiques, chimiques et mécaniques attrayantes qui trouvent des applications dans de domaines très variés, notamment la microélectronique, l'aérospatiale et le nucléaire. Pour assurer le bon fonctionnement des dispositifs fabriqués à base de ces matériaux et améliorer leurs performances dans des milieux de rayonnements intenses, il est primordial de connaître l'étendue des dommages induits par irradiation dans ces matériaux.

Nous avons simulé l'irradiation du tantale, du carbure de tantale et du pentoxyde de tantale en générant des cascades de déplacements. L'étude des dégâts créés par irradiation passe par la détermination du nombre de défauts ponctuels produits, leur configuration spatiale, le volume de la zone endommagée et la taille des amas. Nous avons utilisé le programme de simulation Marlowe basé sur le modèle de l'approximation des collisions binaires. Ce modèle nous assure l'accumulation d'une très grande quantité de statistiques dans un temps de calcul relativement faible. Les primaires par lesquels les cascades sont initiées, sont lancés avec des énergies variant de 5 à 30 keV. Les interactions entre les atomes dans la cascade sont modélisées par le potentiel de Molière, le potentiel de Born-Mayer, le potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark, et le potentiel moyen modifié de Lenz-Jensen. Les vibrations thermiques des atomes du réseau sont prises en compte en utilisant le modèle de Debye. Les pertes d'énergie électroniques sont évaluées sur la base de la théorie de Lindhard-Schiott-Scharff.

Les résultats des simulations montrent qu'il y a certaines similitudes entre les cascades de déplacements développées dans les trois matériaux. La plupart des atomes déplacés pendant la phase balistique s'immobilisent au voisinage des sites vacants, favorisant ainsi la recombinaison. Les séquences de remplacements sont courtes. Elles sont d'autant moins nombreuses et plus courtes lorsque la structure cristalline est moins symétrique. Les distributions de volumes s'écartent d'une distribution gaussienne. Elles sont asymétriques, avec des queues étirées vers les volumes les plus élevés. Elles montrent une grande variabilité. Le nombre et la taille des amas de lacunes augmentent avec l'énergie du primaire. Pour des énergies du primaire qui ne dépassent pas 20 keV, les amas restent de petites tailles.

Dans le tantale, la configuration finale des cascades confirme l'image de Brinkman. En effet, les cascades sont constituées d'un cœur riche en lacunes et entouré d'une couronne

peuplée d'interstitiels. La fraction des atomes déplacés qui survivent à la recombinaison dans une cascade de 20 keV reste inférieure à 16 %. Les séquences de remplacements sont peu sensibles à la variation de la température du cristal, mais leur dépendance à l'énergie cinétique du primaire et au potentiel est forte. Leur nombre et leur longueur augmentent avec l'énergie cinétique du primaire et diminuent légèrement avec la température. Elles se propagent sur de courtes distances puisque celles de longueur 4 ne représentent que 4 % du nombre total des séquences produites. Un modèle de simulation avec le potentiel de Molière prédit plus d'atomes déplacés et des cascades plus volumineuses. Les caractéristiques des amas lacunaires formés sont en très bon accord avec la tendance observée dans les métaux cristallisant dans la structure cubique centrée tels que le fer, le tungstène et le vanadium. Pour un primaire d'énergie 20 keV, le plus grand amas est formé seulement de 5 lacunes. Environ 41 % des lacunes produites suite à l'irradiation du tantale sont considérées comme des défauts ponctuels isolés.

Dans le carbure de tantale, nous avons constaté la formation de paires de Frenkel du tantale dans une proportion près de deux fois plus importante que les paires de Frenkel du carbone. Les séquences de remplacements restent courtes et leur contribution à la production des défauts permanents n'est pas significative. La dépendance de la distribution des volumes des cascades au potentiel est faible. Les cascades sont moins volumineuses que dans le cas du tantale. Le plus grand amas trouvé pour l'énergie du primaire de 20 keV est composé de 7 lacunes. La fraction de lacunes qui constituent des défauts ponctuels isolés est d'environ 33 %.

Dans le pentoxyde de tantale, nous avons enregistré un déficit du nombre d'atomes de tantale déplacés par rapport à celui de l'oxygène. Les paires de Frenkel du tantale sont approximativement trois fois moins nombreuses que celles de l'oxygène. Les distributions des volumes des cascades obtenues pour les différents potentiels sont similaires et ont la même classe modale. De petits amas de lacunes sont formés essentiellement dans le cœur de la cascade de déplacements. Pour un primaire d'énergie 20 keV, l'amas le plus important est formé de 6 lacunes. Nous constatons pour ce matériau que la dépendance des caractéristiques étudiées des cascades au potentiel n'est pas aussi marquée que dans le cas du tantale.

Au terme de cette thèse, nous espérons avoir apporté une contribution significative à l'étude des défauts induits par irradiation dans le tantale, le carbure de tantale et le pentoxyde de tantale. Nous avons déterminé, pour chaque matériau, le nombre de défauts permanents produits, leur distribution spatiale, le nombre d'amas lacunaires et leur taille et nous avons estimé le volume de la zone endommagée. L'étude par la méthode de Monte-Carlo cinétique

de l'évolution temporelle des amas formés et de leurs effets sur les propriétés physiques et mécaniques pourra faire l'objet de développements futurs pour améliorer davantage notre compréhension du vieillissement de ces matériaux lorsqu'ils sont utilisés dans un environnement de rayonnements intenses.

Références bibliographiques

- [1] H.L. Olesen, *Radiation effects on electronic systems*, Plenum Press New-York, 1966.
- [2] T.P. Ma, P.V. Dressendorfer, *Ionizing Radiation Effects in MOS and circuits*, John Wiley & Sons, Inc., 1989.
- [3] R.D. Schrimpf, D.M. Fleetwood, *Radiation Effects and Soft Errors in Integrated Circuits and Electronic Devices*, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 2004.
- [4] Y. Piccin, *Durcissement par conception d'ASIC analogiques*, Thèse de Doctorat, Université de Bordeaux, France, 2014.
- [5] R. Durand, *Modélisation des effets de dose dans les circuits intégrés en environnement spatial*, Thèse de Doctorat, Université de Toulouse, France, 2007.
- [6] G. Was, Z. Jiao, E. Getto, K. Sun, A.M. Monterrosa, S.A. Maloy, O. Anderoglu, B.H. Sencer, M. Hackett, *Scripta Mater.* **88**, 33 (2014).
- [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] R.W. Buckman Jr., *JOM* **52**, 40 (2000).
- [10] Y. Huang, N. Maury, N.X. Zhang, T.G. Langdon, *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.* **63**, 012100 (2014).
- [11] J.B. Lambert, Tantalum and tantalum compounds, in: *Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology*, Wiley-Interscience, 2007, p. 313.
- [12] A. Bhandari, M.K. Agarwal, A.S. Kandari, V. Lingwal, N.S. Panwar, *IJIRST-Int. J. Innov. Res. Sci. Technol* **1**, 102 (2015).
- [13] J.S. Lee, S.J. Chang, J.F. Chen, S.C. Sun, C.H. Liu, U.H. Liaw, *Mater. Chem. Phys.* **77**, 242 (2002).
- [14] S. Park, Y. Baek, J. Lee, C. Park, H. Im, *J. Electron. Mater.* **21**, 635 (1992).
- [15] J.Y. Zhang, I.W. Boyd, *Appl. Phys. A* **70**, 657 (2000).
- [16] E. Atanassova, D. Spasov, *Microelectron. Reliab.* **42**, 1171 (2002).
- [17] C. Chaneliere, J.L. Autran, R.A.B. Devine, B. Balland, *Mater. Sci. Eng.* **R.22**, 269 (1998).
- [18] K. Kumar, N. Raju, A. Subrahmanyam, *Surf. Coat. Technol.* **205**, S261 (2011).

- [19] S. Pérez-Walton, C. Valencia-Balvin, A.C.M. Padilha, G.M. Dalpian, J.M. Osorio-Guillén, *J. Phys.: Condens. Matter* **28**, 035801 (2016).
- [20] S. Maeng, L. Axe, T. Tyson, L. Gladczuk, M. Sosnowski, *Corros. Sci.* **48**, 2154 (2006).
- [21] G.M. Choi, H.L. Tuller, J.S. Haggerty, *J. Electrochem. Soc.* **136**, 835 (1989).
- [22] Y.R. Denny, T. Firmansyah, S.K. Oh, H.J. Kang, D. Yang, S. Heo, J. Chung, J. Lee, *Mater. Res. Bull.* **82**, 1 (2016).
- [23] W.L. Yan, M. Sygnatowicz, G.H. Lu, F. Liu, D.K. Shetty, *Surf. Sci.* **644**, 24 (2016).
- [24] N. Zhao, Y. Xu, J. Wang, L. Zhong, V.E. Ovcharenko, X. Cai, *Surf. Coat. Technol.* **286**, 347 (2016).
- [25] J. Jiang, S. Wang, W. Li, Z. Chen, *Ceram. Int.* **42**, 7118 (2016).
- [26] D. Sciti, D.M. Trucchi, L. Zoli, E. Sani, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **161**, 1 (2017).
- [27] C. Zhang, A. Loganathan, B. Boesl, A. Agarwal, *Coatings* **7**, 111 (2017).
- [28] V. Valvoda, *Phys. Status Solidi* **64**, 133 (1981).
- [29] F. Rezaei, M.G. Kakroudi, V. Shahedifar, N.P. Vafa, M. Golrokhsari, *Ceram. Int.* **43**, 3489 (2016).
- [30] E. Wuchina, E. Opila, M. Opeka, W. Fahrenholtz, I. Talmy, *Electrochem. Soc. Interface* **16**, 30 (2007).
- [31] Y. Liu, Y. Jiang, R. Zhou, J. Feng, *J. Alloys. Compd.* **582**, 500 (2014).
- [32] X. Zhang, G.E. Hilmas, W.G. Fahrenholtz, *J. Am. Ceram. Soc.* **90**, 393 (2007).
- [33] P. Jung, W. Schilling, *Phys. Rev. B* **5**, 2046 (1972).
- [34] G. Youngblood, S. Myhra, J.W. DeFord, *Phys. Rev.* **188**, 1101 (1969).
- [35] G.L. Kulcinski, B. Mastel, *J. Appl. Phys.* **41**, 4752 (1970).
- [36] F.W. Wiffen, *J. Nucl. Mater.* **67**, 119 (1977).
- [37] K. Yasunaga, H. Watanabe, N. Yoshida, T. Muroga, N. Noda, *J. Nucl. Mater.* **258**, 879 (1998).
- [38] K. Yasunaga, H. Watanabe, N. Yoshida, T. Muroga, N. Noda, *J. Nucl. Mater.* **283**, 9th Int. Conf. on Fusion Reactor Materials, 179 (2000).
- [39] M.S. Daw, M.I. Baskes, *Phys. Rev. B* **29**, 6443 (1984).
- [40] R.A. Johnson, D.J. Oh, *J. Mater. Res.* **4**, 1195 (1989).
- [41] A.M. Guellil, J.B. Adams, *J. Mater. Res.* **7**, 639 (1992).
- [42] M.S. Daw, S.M. Foiles, M.I. Baskes, *Mater. Sci. Rep.* **9**, 251 (1993).
- [43] G. Wang, A. Strachan, T. Cagin, W.A. Goddard III, *Materials Science and Engineering A* **309**, 133 (2001).
- [44] Y. Li, D.J. Siegel, J.B. Adams, X.Y. Liu, *Phys. Rev. B* **67**, 125101 (2003).

- [45] A. Strachan, T. Cagin, O. Gulseren, S. Mukherjee, R.E. Cohen, W.A. Goddard III, *Modelling Simul. Mat. Sci. Eng.* **12**, S445 (2004).
- [46] Y. Mishin, In: *Handbook of materials modeling*, Ed. S. Yip, Netherlands: Springer, 2005.
- [47] R. Ravelo, T.C. Germann, O. Guerrero, Q. An, B.L. Holian, *Phys. Rev. B* **88**, 134101 (2013).
- [48] M.W. Finnis, J.E. Sinclair, *Philos. Mag. A* **50**, 45 (1984).
- [49] G.J. Ackland, R. Thetford, *Philos. Mag. A* **56**, 15 (1987).
- [50] X.D. Dai, Y. Kong, J.H. Li, B.X. Liu, *J. Phys. Condens. Matter* **18**, 4527 (2006).
- [51] Z.L. Liu, L.C. Cai, X.R. Chen, F.Q. Jing, *Phys. Rev. B* **77**, 024103 (2008).
- [52] B.J. Lee, M.I. Baskes, H. Kim, Y.K. Cho, *Phys. Rev. B* **64**, 184102 (2001).
- [53] Y. Mishin, A.Y. Lozovoi, *Acta Mater.* **54**, 5013 (2006).
- [54] A. Hashibon, A.Y. Lozovoi, Y. Mishin, C. Elsässer, P. Gumbsch, *Phys. Rev. B* **77**, 094131 (2008).
- [55] J.A. Moriarty, W. Xu, P. Söderlind, J.F. Belak, L.H. Yang, J. Zhu, *J. Eng. Mater. Technol.* **121**, 120 (1999).
- [56] J.A. Moriarty, J.F. Belak, R.E. Rudd, P. Söderlind, F.H. Streitz, L.H. Yang, *J. Phys. Condens. Matter* **14**, 2825 (2002).
- [57] J.A. Moriarty, V. Vitek, V.V. Bulatov, S. Yip, *J. Computer-Aided Mater. Design* **9**, 99 (2002).
- [58] J.A. Moriarty, L.X. Benedict, J.N. Glosli, R.Q. Hood, D.A. Orlikowski, M.V. Patel, P. Söderlind, F.H. Streitz, M. Tang, L.H. Yang, *J. Mater. Res.* **21**, 563 (2006).
- [59] C. Villagrasa-Roussel, C.H.M. Broeders, A.Y. Konobeyev, *Irradiation damages in tantalum spallation target*, *Kerntechnik* **71**, 113 (2006).
- [60] C.H.M. Broeders, A.Y. Konobeyev, *J. Nucl. Mater.* **328**, 197 (2004).
- [61] C.H.M. Broeders, A.Y. Konobeyev, *J. Nucl. Mater.* **336**, 201 (2005).
- [62] C.H.M. Broeders, A.Y. Konobeyev, *J. Nucl. Mater.* **342**, 68 (2005).
- [63] A. Djaafri, T. Djaafri, A. Elias, M. Driss-Khodja, *Afric. Rev. Phys.* **8**, 365 (2013).
- [64] J. Morillo, C.H. de Novion, J. Dural, *Radiation Effects* **55**, 67 (1981).
- [65] J. Morillo, C.H. de Novion, J. Dural, *Electron radiation defects in TaC_{1-x} and TiC_{0.97}*, In: *Science of Hard Materials*, Ed. R.K. Viswanadham, D.J. Rowcliffe, J. Gurland, Plenum Press, New York, 1983, p.103.
- [66] D. Gosset, J. Morillo, C. Allison, C.H. de Novion, *Radiat. Eff. Defects solids* **118**, 207 (1991).

- [67] D. Gosset, *Défauts d'irradiation aux électrons dans les carbures de tantale*, Commissariat à l'Energie Atomique, France, Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses, Rapport CEA-R-5381, 1987.
- [68] C.Y. Allison, R.E. Stoller, E.A. Kenik, *J. Appl. Phys.* **63**, 1740 (1988).
- [69] W. Möler, W. Eckstein, *Radiat. Eff. Defects Solids* **129**, 19 (1994).
- [70] C.P. Race, *The Modelling of Radiation Damage in Metals using Ehrenfest Dynamics*, Springer Theses, Springer-Verlag, Berlin 2010.
- [71] A. Souidi, A. Elias, A. Djaafri, C.S. Becquart, M. Hou, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **193**, 341 (2002).
- [72] W. Takeuchi, Y. Yamamura, *Radiat. Eff.* **71**, 53 (1983).
- [73] A. Kuzmichev, V. Perevertaylo, L. Tsybulsky, O. Volpian, *J. Phys. Conf. Ser.* **729**, 012005 (2016).
- [74] T.T. Nuver, H. Rudolph, P.A. Zeijlmans van Emmichoven, A. Niehaus, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **164-165**, 785 (2000).
- [75] A. De Backer, A. Sand, C.J. Ortiz, C. Domain, P. Olsson, E. Berthod, C.S. Becquart, *Phys. Scr.* **2016** (T167), 014018 (2016).
- [76] M. Hou, C.J. Ortiz, C.S. Becquart, C. Domain, U. Sarkar, A. De Backer, *J. Nucl. Mater.* **403**, 89 (2010).
- [77] L. Bukonte, F. Djurabekova, J. Samela, K. Nordlund, S.A. Norris, M.J. Aziz, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **297**, 23 (2013).
- [78] L. Priester, *Joints de grains et plasticité cristalline*, Hermes, 2012.
- [79] C. Ngô, H. Ngô, *Introduction à la physique des semi-conducteurs*, Ed. Dunod, Paris, 1998, p. 65.
- [80] J. Frenkel, *Z. Physik* **35**, 652 (1926).
- [81] C. Wagner, M. Schottky, *Z. Phys. Chem. B* **11**, 163 (1930).
- [82] C. Wagner, *Z. Phys. Chem. B* **22**, 181 (1933).
- [83] J.L. Martin, *Dislocations et plasticité des cristaux*, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 2000.
- [84] P. Pavlov, A. Khokhlov, *Physique du solide*, Ed. Mir, Moscow, 1989.
- [85] J.P. Bâillon, J.M Dorlot, *Des Matériaux*, Ed. Presses Internationales Polytechnique, 2002.
- [86] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 8th edition, John Willey & Sons, Inc, 2005.
- [87] M. Gerl, J.P. Issi, *Physique des Matériaux*, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 1997.
- [88] M. Dupeux, *Aide-mémoire science des matériaux*, Dunod, Paris, 2008.

- [89] 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.
- [90] R. Collongues, *Le solide cristallin*, Presses Universitaires de France, 1973.
- [91] L. Smart, *Introduction à la chimie de l'état solide*, Dunod, 1997.
- [92] J.M. Hedge, J.W. Mitchell, *Philos. Mag.* **44**, 223 (1953).
- [93] R. Schmidt, *Comportement des matériaux dans les milieux biologiques*, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 1999.
- [94] J.W. Morris, Jr., *Defects in Crystals*, In: *Materials Science and Engineering: An Introduction*. Ed. Wiley, 2013, pp. 76–107.
- [95] P. Robert, *Matériaux de l'électronique*, Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 1999.
- [96] M. Biscondi. *Structure et propriétés mécaniques des joints de grains*, *J. Phys. Colloques* **43**, C6-293 (1982).
- [97] 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.
- [98] C.H. de Novion, *Effets d'irradiation dans les matériaux (métaux, alliages, verres)*, 26^e Colloque de Métallurgie, Saclay, Paris, 1984.
- [99] 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.
- [100] 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.
- [101] F. Onimus, *Approche Expérimentale et Modélisation Micromécanique du Comportement des Alliages de Zirconium Irradiés*, thèse de Doctorat, École Centrale des Arts et Manufactures, 2003.
- [102] J.L. Boutard, *Endommagement des alliages métalliques par des neutrons rapides*, *Reflète de la physique* **38**, 17 (2014).
- [103] J. Philibert, A.Vignes, Y. Bréchet, P. Combrade, *Métallurgie, du minerai au matériau*, Dunod, 2002.
- [104] J. Bouchard, J.P. Deffan, A. Gouchet, *Introduction au génie atomique*, Presses des mines, Paris, 2007.

- [105] W. Eckstein, *Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1991.
- [106] G.S. Was, *Fundamentals of Radiation Materials Science*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007.
- [107] A.A. Abrahamson, *Phys. Rev.* **178**, 76 (1969).
- [108] V.I. Gaydaenko, V K. Nikulin, *Chem. Phys. Lett.* **7**, 360 (1970).
- [109] H.H. Andersen, P. Sigmund, *Nucl. Instrum. Methods* **38**, 238 (1965).
- [110] H.B. Huntington, *Phys. Rev.* **91**, 1092 (1953).
- [111] Y. Yamamura, W. Takeuchi, T. Kawamura, *The Screening Length of Interatomic Potential in Atomic Collisions*, Rapport de Recherche, NIFS-DATA-45, Nagoya, Japan, 1998.
- [112] O.B. Firsov, *Sov. Phys. JETP* **6**, 534 (1958).
- [113] J. Lindhard, V. Nielson, M. Scharff, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.* **36**, (No.10) (1968).
- [114] A. Sommerfeld, *Z. Phys.* **78**, 283 (1932).
- [115] J.A. Brinkman, *Radiation Damage in Solids*. Academic Press, New York, 1962.
- [116] G. Molière, *Z. Naturforsch A* **2**, 133 (1947).
- [117] M.T. Robinson, In: *Sputtering by Particle Bombardment I*, Ed. R. Behrisch, *Topics Appl. Phys.* Vol. 47, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1981, p.73.
- [118] W.D. Wilson, L.G. Haggmark, J.P. Biersack, *Phys. Rev. B* **15**, 2458 (1977).
- [119] 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.
- [120] W. Lenz: *Z. Phys.* **77**, 713 (1932)
- [121] S.T. Nakagawa, Y. Yamamura, *Radiat. Eff.* **105**, 239 (1988).
- [122] S.T. Nakagawa, *Radiat. Eff.* **112**, 1 (1990).
- [123] S.T. Nakagawa, *Radiat. Eff.* **116**, 21 (1991).
- [124] J.M. Hernandez-Mangas, J. Arias, L. Bailon, M. Jaraiz, J. Barbolla, *J. Appl. Phys.* **91**, 658 (2002).
- [125] L. Verlet, *Phys. Rev.* **159**, 98 (1967).
- [126] L. Verlet, *Phys. Rev.* **165**, 201 (1968).
- [127] R.W. Hockney, *Methods Comp. Phys.* **9**, 136 (1970).
- [128] W.C. Swope, H.C. Andersen, P.H. Berens, K.R. Wilson, *J. Chem. Phys.* **76**, 637 (1982).
- [129] C.W. Gear, *Numerical initial value problems in ordinary differential equations*, Ed. G. Forsythe, Prentice-Hall Series, Englewood Cliffs, N.J., 1971.

- [130] A. Elias, M. Driss-Khodja, *Physics Procedia* **2**, 1489 (2009).
- [131] M.T. Robinson, I. Torrens, *Phys. Rev. B* **9**, 5008 (1974).
- [132] M.T. Robinson, *Phys. Rev. B* **40**, 10717 (1989).
- [133] M.T. Robinson, *Nucl. Instrum. Methods B* **48**, 408 (1990).
- [134] M.T. Robinson, *Radiat. Eff. Defects Solids* **141**, 1 (1997).
- [135] R. Smith, *Atomic & ion collisions in solids and at surfaces: theory, simulation and applications*, Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1997.
- [136] 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.
- [137] J.A. Brinkman, *J. Appl. Phys.* **25**, 961(1954).
- [138] A. Seeger, Proc. 2nd. U.N. Conf on Peaceful Uses of Atomic Energy, IAEA, Geneva, Vol 6, 1958, p. 250.
- [139] L.A. Beavan, R.M. Scanlan, D.N. Seidman, *Acta Met.* **19**, 1339 (1971).
- [140] 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.
- [141] B. Domeij, F. Brown, J.A. Davies, G.R. Piercy, E.V. Kornelsen, *Phys. Rev. Lett.* **12**, 363 (1964).
- [142] J.R. Beeler, D.G. Besco. *J. Appl. Phys.* **34**, 2873 (1963).
- [143] A.I. Ryazanov, E.V. Metelkin, *Atomic Energy* **83**, 653 (1997).
- [144] A. Scholtz, C. Lehmann, *Phys. Rev. B* **6**, 813(1972).
- [145] G. Vizkelently, S.M. Foiles, *Nucl. Instrum. Methods B* **371**, 111 (2015).
- [146] N. Paour, *Etude de diffusion intervenant dans la résolution en profondeur en analyse SIMS : Application à l'AlGaAs*, Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble, France, 1997.
- [147] P.L. Grande, F.C. Zawislak, D. Fink, M. Behar, *Nucl. Instrum. Methods B* **61**, 282 (1991).
- [148] H. Bethe, *Z. Phys.* **14**, 531 (1938).
- [149] F. Bloch, *Z. Phys.* **81**, 363 (1933).
- [150] J.F. Ziegler, *The stopping and ranges of ions in matter*, Ed. J.F. Ziegler, Pergamon Press, New York, Vol 5-6, 1980.
- [151] U. Fano, *Penetration of Protons, Alpha particles and Mesons*, *Ann. Rev. Nucl. Sci.* **13**, 1 (1963).

- [152] J.E. Turner, *Atoms, Radiation, and Radiation Protection*, Ed. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, 2007.
- [153] W.H. Barkas, *Nuclear Research Emulsions*, Academic Press INC., New York, Vol. 1, 1963, p. 371
- [154] F. Hubert, R. Bimbot, H. Gauvin, *Nucl. Instrum. Methods B* **36**, 357 (1989).
- [155] O. B. Firsov, *Soviet Physics JETP* **36**, 1076 (1959).
- [156] 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).
- [157] P. Salou, *Interaction ion-surface: simulation de l'interaction plasma-paroi (ITER)*, Thèse de Doctorat, Université de Caen Basse-Normandie, France, 2013.
- [158] W. Möller, *Fundamentals of Ion-Surface Interaction*, Short resume of a lecture held at the Technical University of Dresden, 2004.
- [159] 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.
- [160] P. Chevallier, *Interaction du rayonnement avec la matière*, Techniques de l'ingénieur, 1986.
- [161] S.M. Bruemmer, E.P. Simonen, P.M. Scott, P.L. Andresen, G.S. Was, J.L. Nelson, *J. Nucl. Mater.* **274**, 299 (1999).
- [162] G.H. Kinchin, R.S. Pease, *Rep. Prog. Phys.* **18**, 1 (1955).
- [163] M.J. Norgett, M.T. Robinson, I.M. Torrens, *Nucl. Eng. Des.* **33**, 50 (1975).
- [164] D.R. Olander, A.T. Motta, *Light Water Reactor Materials*, American Nuclear Society Scientific Publications, Vol 1: Fundamentals (2006).
- [165] W.S. Snyder, J. Neufeld, *Phys. Rev.* **97**, 1636 (1955).
- [166] J.B Sanders, *On penetration depths and collision cascades in solid materials*, Thèse Doctorat, University of Leiden, Pays-Bas, 1968.
- [167] O.S. Oen, M.T. Robinson, *Appl. Phys. Lett.* **2**, 83 (1963).
- [168] M.T. Robinson, *J. Nucl. Mater.* **216**, 1 (1994).
- [169] M.J. Caturla, T.D. de la Rubia, M. Victoria, R.K. Corzine, M.R. James, G.A. Greene, *J. Nucl. Mater.* **296**, 90 (2001).
- [170] M.T. Robinson, *MARLOWE: computer simulation of atomic collisions in crystalline solids*, (Version 15a), RSICC Code Package PSR-137 (Report).
- [171] M.T. Robinson, *K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd.* **43**, 27 (1993).
- [172] M.T. Robinson, O.S. Oen, *Phys. Rev.* **132**, 2385 (1963).

- [173] M.T. Robinson, *Phys. Rev. B* **27**, 5347 (1983).
- [174] A. Souidi, M. Hou, C.S. Becquart, C. Domain, *J. Nucl. Mater.* **295**, 179 (2001).
- [175] M. Hou, A. Souidi, C.S. Becquart, *J. Phys. Condens. Matter* **13**, 5365 (2001).
- [176] M. Blackman, *Handbuch der Physik*, Vol. VII, Part.1, Springer-Verlag, Berlin,1955.
- [177] H. Jensen, *Z. Phys.* **77**, 722 (1932).
- [178] P.M. Morse, *Phys. Rev.* **34**, 57(1929).
- [179] L.A. Girifalco, V.G. Weizer, *Phys. Rev.* **114**, 687(1959).
- [180] D.E. Harrison, Jr., *CRC Crit. Rev. Solid. State Sci.* **14**, suppl.1, 1 (1988).
- [181] J. Lindhard, M. Scharff, *Phys. Rev.* **124**, 128(1961).
- [182] O.S. Oen, M.T. Robinson, *Nucl. Instrum. Methods* **132**, 647(1976).
- [183] D.P. Jackson, In: *Atomic Collisions in Solids*, Ed. S. Datz, B.R. Appleton. C.D. Moak, Plenum, New York, 1975, p. 185.
- [184] L.A. Stegun, In: *Handbook of Mathematical Functions*, Ed. M. Abramowitz, L.A. Stegun, Dover, New York, 1965, p. 998.
- [185] M. Hou, *Nucl. Instrum. Methods* **182-183**, 153 (1981).
- [186] A. Djaafri, A. Kadoun, M. Driss-Khodja, A. Elias, T. Djaafri, *Acta Physica Polonica A* **133**, 39 (2018).
- [187] A. Djaafri, A. Kadoun, M. Driss-Khodja, *Arab. J. Sci. Eng.* **43**, 3837 (2018).
- [188] D.R. Lide, ed., *Physical Constants of Inorganic Compounds in: CRC Handbook of Chemistry and Physics* (86th edition), CRC Press, Boca Raton, United States, 2005.
- [189] A. Dewaele, P. Loubeyre, M. Mezouar, *Phys. Rev. B* **70**, 094112 (2004).
- [190] F.R. De Boer, R. Boom, W.C.M. Mattens, A.R. Miedema, A.K. Niessen, *Cohesion in Metals: Transition Metal Alloys*, North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1989.
- [191] J.A. Brinkman, *Am. J. Phys.* **24**, 246 (1956).
- [192] G. Bohm, G. Zech, *Introduction to Statistics and Data Analysis for Physicists*, Ed. Deutsches Elektronen-Synchrotron, 2010.
- [193] F. Gao, D.J. Bacon, L.M. Howe, C.B. So, *J. Nucl. Mater.* **294**, 288 (2001).
- [194] D.J. Bacon, N.Y. Osetsky, R.E. Stoller, R.E. Voskoboynikov, *J. Nucl. Mater.* **323**, 152 (2003).
- [195] E. Alonso, M.J. Caturla, T.D. de la Rubia, J.M. Perlado, *J. Nucl. Mater.* **276**, 221 (2000).
- [196] K. Nakamura, M. Yashima, *Mater. Sci. Eng. B* **148**, 69 (2008).
- [197] M. Aizenshtein, N. Froumin, O. Nafman, N. Frage, *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, 2016.

- [198] A.F. Guillermet, J. Haglund, G. Grimvall, *Phys. Rev. B* **48**, 11673 (1993).
- [199] T.O. Owolabi, K.O. Akande, S.O. Olatunji, *International Journal of Materials Science and Engineering* **3**, 104 (2015).
- [200] C.Y. Ho, R.W. Powell, P.E. Liley, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **3**, I-10 (1974).
- [201] S. Ezhilvalavan, T. Tseng, *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **10**, 9 (1999).
- [202] N. Donkov, A. Zykova, *Prob. At. Sci. Technol. Ser. Plasma Phys.* **2011**(1), 131 (2011).
- [203] M. Audier, B. Chenevier, H. Roussel, L. Vincent, A. Pena, A. Lintanf Salaun, *J. Solid State Chem.* **184**, 2023 (2011).
- [204] L. Zhu, J. Zhou, Z. Guo, Z. Sun, *J. Phys. Chem. C* **120**, 2456 (2016).
- [205] E. Pehlivan, K. Koc, F.Z. Tepehan, G.G. Tepehan, *J. Sol-Gel. Sci. Technol* **77**, 172 (2016).
- [206] W. Yi, S.E. Savel'ev, G. Medeiros-Ribeiro, F. Miao, M.X. Zhang, J.J. Yang, A.M. Bratkovsky, R.S. Williams, *Nat. Commun.* **7**, 11142 (2016).
- [207] R. Simpson, R.G. White, J.F. Watts, M.A. Baker, *Appl. Surf. Sci.* **405**, 79 (2017).
- [208] C. Askeljung, B.O. Marinder, M. Sundberg, *Journal of Solid State Chemistry* **176**, 250 (2003).
- [209] R. Hollerweger, D. Holec, J. Paulitsch, M. Bartosik, R. Daniel, R. Rachbauer, P. Polcik, J. Keckes, C. Krywka, H. Euchner, P.H. Mayrhofer, *Acta Materialia* **83**, 276 (2015).
- [210] A.B. Cusick, High Energy Heavy Ion-Induced Structural Modifications in Binary Oxides, PhD thesis, University of Michigan USA, 2015.

Study of damage production in tantalum (Ta) and the compounds TaC and Ta₂O₅ by the binary collision approximation (BCA) model

Abstract

We used the binary collision approximation with the Marlowe code to simulate displacement cascades in tantalum, tantalum monocarbide, and tantalum pentoxide. We investigated the damage production, the spatial configuration of the resulting defects, and the vacancy clustering. Statistics over 5000 cascades were accumulated and primaries with kinetic energies up to 30 keV were launched from lattice sites. Elastic collisions between atoms were modelled by the universal Ziegler-Biersack-Littmark, Molière, Born-Mayer, and average modified Lenz-Jensen potentials. The Lindhard-Scharff-Schiott theory was used to account for the inelastic energy losses. Principal components analysis was utilized to evaluate the volume of the damaged zone. The obtained results show that with an appropriate recombination radius, less than 16 % of the created defects constitute permanent Frenkel pairs in tantalum. In tantalum carbide, the number of surviving tantalum Frenkel pairs is about twice the carbon one. In tantalum pentoxide, the number of oxygen Frenkel pairs is nearly 3 times higher than the tantalum one. The cascade volume distributions deviate clearly from a Gaussian distribution. They are large and stretched toward higher volumes for all used potentials. They display high variability. Only small vacancy clusters are observed in the three materials within the investigated range of the primary energies. A substantial part of the vacancies are produced as single defects.

Keywords

Binary collision approximation - tantalum - tantalum carbide - tantalum pentoxide - defects - Frenkel pair

Etude des dommages créés dans le tantale (Ta) et les composés TaC et Ta₂O₅ par l'approximation des collisions binaires (BCA)

Résumé

Nous avons utilisé le code Marlowe basé sur l'approximation des collisions binaires pour simuler des cascades de déplacements dans le tantale, le carbure de tantale et le pentoxyde de tantale. Nous avons étudié la production de défauts, leur configuration spatiale et la formation des amas de lacunes. Des statistiques de 5000 cascades ont été accumulées. Les cascades ont été initiées par des primaires d'énergie cinétique allant jusqu'à 30 keV. Les collisions élastiques entre les atomes ont été modélisées par le potentiel de Ziegler-Biersack-Littmark, le potentiel de Molière, le potentiel de Born-Mayer et le potentiel moyen modifié de Lenz-Jensen. La théorie de Lindhard-Scharff-Schiott a été utilisée pour tenir compte des pertes d'énergie inélastiques. L'analyse en composantes principales a été utilisée pour évaluer le volume de la zone endommagée. Les résultats obtenus montrent qu'avec un rayon de recombinaison approprié, moins de 16 % de défauts générés constituent des paires de Frenkel stables dans le tantale. Dans le carbure de tantale, le nombre de paires de Frenkel du tantale est environ le double de celui du carbone. Dans le pentoxyde de tantale, le nombre de paires de Frenkel d'oxygène est presque 3 fois plus élevé que celui du tantale. Les distributions de volumes des cascades s'écartent clairement d'une distribution gaussienne. Elles sont larges, asymétriques avec des queues étirées vers les volumes élevés. Seuls de petits amas lacunaires sont observés, dans les trois matériaux, dans la plage énergétique exploitée. Une partie substantielle de lacunes sont des défauts ponctuels isolés.

Mots clés

Approximation des collisions binaires - tantale - carbure de tantale - pentoxyde de tantale - défauts - paire de Frenkel

دراسة العيوب المتكونة في التنتالوم (Ta) و المركبات TaC و Ta₂O₅ بتقريب التصادمات الثنائية (BCA)

الملخص

استخدمنا البرنامج "مارلو" المعتمد على نموذج تقريب التصادمات الثنائية لمحاكاة شلالات الإنتقالات الذرية في التنتالوم، أحادي كربون التنتالوم، وخامسي أكسيد التنتالوم. قمنا بدراسة إنتاج العيوب النقطية وتوزيعها الفضائي، حجم المنطقة المتضررة و تكوين مجموعات الشواغر. راكمنا الإحصائيات من 5000 شلال ابتداء كل واحد منها بذرة تمهيدية تصل طاقتها الحركية إلى 30 كيلوالكترون فولط. إستعملنا كمونات "زغلر-بيرزك-لتمارك"، "موليير"، "بورن-ماير" و الكمون المتوسط المعدل لـ "النز-جنسن" لنمذجة التأثير المتبادل بين الذرات المتصادمة. استخدامنا نظرية "ليندهارد-شارف-شيوث" لحساب خسائر الطاقة غير المرنة كما استعملنا تحليل المكونات الرئيسية لتقييم حجم المنطقة المتضررة. تظهر النتائج أن أقل من 16% من العيوب الناتج إنشاؤها تشكل أزواج "فرنكل" دائمة في التنتالوم. في كربيد التنتالوم، عدد أزواج "فرنكل" التنتالوم الدائمة هي ضعف عدد مثيلاتها من الكربون. في خامسي أكسيد التنتالوم ، يكون عدد أزواج الأكسجين أعلى بثلاث مرات من التنتالوم. توزيع حجوم الشلالات يدل بوضوح على أنها تختلف عن توزيع "غوس". فهي غير متناظرة و تمتد أذيالها نحو الحجوم الكبيرة كما أنها عريضة و تظهر تشتت كبير. مجموعات اشواغر التي تم إيجادها ضمن مجالات الطاقة المستعملة هي صغيرة. و نسبة عالية من الشواغر تشكل عيوباً مفردة.

الكلمات المفتاحية

تقريب التصادمات الثنائية - التنتالوم - كربيد التنتالوم - أكسيد التنتالوم - العيوب - زوج فرنكل